

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2012 年 1 月 19 日(19.01.2012)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2012/008003 A1

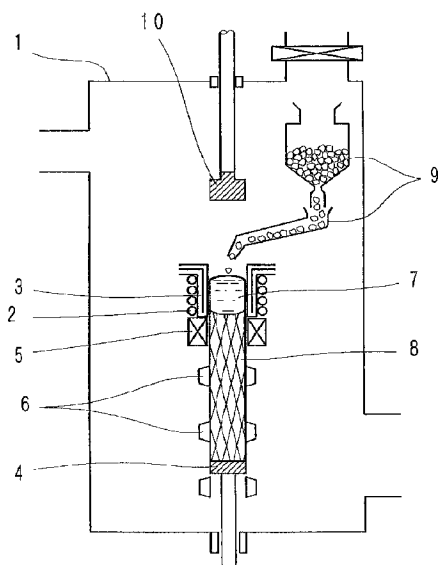
- (51) 国際特許分類:
C01B 33/02 (2006.01) H01L 31/04 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2010/006919
- (22) 国際出願日: 2010 年 11 月 26 日(26.11.2010)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2010-158593 2010 年 7 月 13 日(13.07.2010) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 株式会社 S U M C O (SUMCO CORPORATION) [JP/JP]; 〒1058634 東京都港区芝浦一丁目 2 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 八木 大地 (YAGI, Daichi) [JP/JP]; 〒1058634 東京都港区芝浦一丁目 2 番 1 号株式会社 S U M C O 内 Tokyo (JP). 杉村 渉 (SUGIMURA, Wataru) [JP/JP]; 〒1058634 東京都港区芝浦一丁目 2 番 1 号株式会社 S U M C O 内 Tokyo (JP).
- (74) 代理人: 森 道雄, 外 (MORI, Michio et al.); 〒6600892 兵庫県尼崎市東難波町五丁目 1 7 番 2 3 号森道雄特許事務所 Hyogo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR CASTING POLYCRYSTALLINE SILICON

(54) 発明の名称: 多結晶シリコンの casting 方法

[図1]



(57) Abstract: Disclosed is a method for casting polycrystalline silicon used as a substrate material for solar cells that reduces the amount of metal carried in when supplying raw material to a crucible. Said method for casting polycrystalline silicon uses a bottomless cooling crucible and continuously casts polycrystalline silicon by electromagnetic induction. High-purity silicon with a maximum particle diameter of 40 mm, wherein 0% to 40% of the particles have a diameter 0.6 to 3 mm and 100% to 60% of the particles have a diameter greater than 3 mm and up to 40 mm, is used as the raw material. This reduces contamination by heavy metals and enables polycrystalline silicon used as substrate material for solar cells that can maintain a good conversion efficiency to be readily produced using an electromagnetic casting device that uses a simple and small raw material supply pipe.

(57) 要約: 原料のルツボ内への供給時における金属の持ち込みを少なくし、太陽電池の基板材として用いられる多結晶シリコンの casting 方法であり、無底の冷却ルツボを用い、電磁誘導により多結晶シリコンを連続的に casting する多結晶シリコンの casting 方法であって、原料として、最大粒径が 40 mm であり、かつ、粒径が 0.6 mm ~ 3 mm のものが 0 ~ 40 %、粒径が 3 mm を超え 40 mm 以下のものが 100 ~ 60 % である高純度シリコンを使用する。これにより、重金属による汚染が少なく、良好な変換効率を維持できる太陽電池の基板材としての多結晶シリコンを、簡素で小型の原料供給配管を採用した電磁 casting 装置を使用して容易に製造することができる。



添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明 細 書

発明の名称 ： 多結晶シリコンの鑄造方法

技術分野

[0001] 本発明は、太陽電池の基板材として用いられる多結晶シリコンの鑄造方法に関する。

背景技術

[0002] 現在製造されている太陽電池の大半は、シリコン結晶が基板材として用いられている。シリコン結晶としては単結晶と多結晶とがあり、一般に、単結晶を基板に用いた方が、変換効率（入射した光のエネルギーに対し、電気エネルギーに変換して取り出すことができるエネルギーの割合）の高い太陽電池を作製することができる。

[0003] 単結晶シリコンはチョクラスキー法により製造され、高品質な無転位の結晶が得られるが、多結晶シリコンに比べ製造コストが上昇するため、太陽電池の製造コストが高くなる。一方、多結晶シリコンは、溶融シリコンをルツボや鑄型（モールド）内で凝固させる鑄造法（以下、「キャスト法」という）、または電磁誘導による連続鑄造法（以下、「電磁鑄造法」という）で製造されるのが一般的であり、チョクラスキー法で製造される単結晶シリコン基板よりも低コストで基板材料を製造することができる。

[0004] しかしながら、キャスト法は溶融シリコンを石英ルツボや黒鉛製の鑄型で凝固させる造塊法であることから、例えば、溶融したシリコンとルツボなどの容器壁とが接触することによって不純物汚染が生じ、また、インゴットと鑄型との融着を防止するために用いられる離型剤が溶融したシリコンに混入する等の問題がある。さらに、キャスト法では連続した鑄造が困難であることから、生産効率の低下は避けられない。

[0005] 電磁鑄造法は、このような問題を解決するために開発された方法であり、この電磁鑄造法によれば、溶融シリコンをルツボや鑄型にほとんど接触させることなく、シリコン結晶を鑄造することができる。

- [0006] この電磁鑄造法では、高周波誘導コイルの内側に、周方向に相互に電氣的に絶縁され、かつ内部が水冷された、電気伝導性と熱伝導性のよい物質（通常は銅）を短冊状に並べた無底の冷却ルツボを用いる。コイルの形状および無底ルツボとして機能する短冊状の物体で囲まれた部分の形状は、円筒状、角筒状のいずれでもよい。また、無底ルツボの下部には下方に移動可能な支持台を設ける。
- [0007] 溶解容器として構成された銅製の冷却ルツボに原料シリコンを装入し、高周波誘導コイルに交流電流を通じると、冷却ルツボを構成する短冊状の各素片は互いに電氣的に分割されているので、各素片内で電流がループを作り、冷却ルツボの内壁側の電流が冷却ルツボ内に磁界を形成して、ルツボ内のシリコンを加熱溶解することができる。ルツボ内の溶融シリコンは、冷却ルツボ内壁の電流がつくる磁界と溶融シリコン表皮の電流の相互作用によって溶融シリコン表面の内側法線方向の力を受け、ルツボと非接触の状態で溶解される。
- [0008] このようにルツボ内のシリコンを溶解させながら、溶融シリコンと鑄塊を下部で保持する支持台を下方へ移動させると、高周波誘導コイルの下端から遠ざかるにつれて誘導磁界が小さくなるために、発生電流が低下して発熱量が減少し、溶融シリコンの底部で上方に向けて凝固が進行する。支持台の下方への移動に合わせて、ルツボの上方から原料を連続的に投入し、溶解および凝固を継続することにより、一方向に凝固させながらシリコン多結晶を連続して鑄造することができる。シリコン溶融液を凝固させて鑄塊にする際には、結晶粒を大きく成長させるとともに、凝固に伴う体積膨張による割れを防ぐため、一方向凝固が採用されるが、この装置を使用すれば、下方から上方への一方向凝固を容易に行うことが可能である。
- [0009] この電磁鑄造法によれば、溶融シリコンがルツボ壁にほとんど接触することがなく、不純物汚染を防ぐことができる。ルツボからの汚染がないので、ルツボの材質として高純度材料を使用する必要がないという利点もある。また、連続して鑄造することができるので、製造コストの大幅な低下が可能で

ある。

[0010] しかしながら、実際の操業においては、ルツボや鑄型からの溶出による直接の汚染は避けられるものの、原料供給系や雰囲気（ヒューム）からの汚染が生じる場合がある。具体的には、原料自体に含まれる金属類の混入、原料のルツボ内への供給時における金属配管の摩耗に伴う金属の混入等、原料供給系からの汚染、雰囲気中の金属を含んだ微粉末の溶融シリコンへの溶け込みやインゴットへの付着・拡散等に起因する汚染、あるいは、インゴットを保温するための保温筒（カーボンヒータ）やその下方に設けられた均熱筒（金属ヒータ）に起因する汚染である。

[0011] 太陽電池の基板では、光によって発生するキャリアの寿命が長いほど高い変換効率が得られるが、多結晶シリコン基板に前記のような金属不純物による汚染が生じると、これらがトラップ（捕獲）準位となり、キャリアが再結合して消滅し、その結果、変換効率が低下する。

[0012] 前記原料供給系からの汚染に関連して、例えば、特許文献1には、可動式の閉止板を設けた原料供給装置が開示されている。この閉止板は、ホッパに供給された原料を傾斜投入管及び垂直投入管を介してルツボ内の原料融液に供給できるように構成された原料供給装置において、傾斜投入管と垂直投入管の接続部に設けられている。傾斜投入管の上端に供給され原料が同管の上端から下端まで移動することにより増大した運動エネルギーは閉止板で吸収されるので、その後に原料の流入により垂直投入管に加わる摩耗、破損等のダメージを軽減することができる。

[0013] この原料供給装置を適用すれば、原料やドーパントのルツボ内への供給時における金属配管の摩耗等に伴う溶融シリコンへの金属の持ち込みを低減することが可能と考えられる。しかし、閉止板を設けることにより装置が大型化、複雑化し、設備コストが増大する。

先行技術文献

特許文献

[0014] 特許文献1：特開2006-21973号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

- [0015] 本発明は、電磁鑄造法により太陽電池の基板材として用いられる多結晶シリコンを製造するに際し、原料のルツボ内への供給時における金属配管の摩耗等に伴う金属の持ち込みをできるだけ少なくし、変換効率を良好に維持することができる多結晶シリコンの鑄造方法を提供することを目的としている。

課題を解決するための手段

- [0016] 本発明者らは、上記の課題を解決するために検討を重ねた結果、無底の冷却ルツボ内に連続的に投入されるシリコン原料の粒径を最大40mmとし、かつ小粒径の原料と大粒径の原料を所定の配合比で使用することにより、得られる多結晶シリコンインゴットにおける金属汚染量を低減させ得ることを知見した。金属汚染量を低減させることにより、前述のように、光によって発生するキャリアの再結合を抑制して、変換効率を高く維持することが可能になる。
- [0017] 前記小粒径の原料と大粒径の原料の配合比については、種々検討の結果、小粒径の原料の粒径範囲を0.6mm～3mmとし、大粒径の原料の粒径範囲を3mmを超え40mm以下として、小粒径の原料を0～40質量%（以下、原料の配合比を表す「%」は「質量%」を意味する）、大粒径の原料を100～60%の割合で配合するのがよいことが判明した。
- [0018] 本発明はこのような知見に基づいてなされたもので、下記の多結晶シリコンの鑄造方法を要旨とする。
- すなわち、無底の冷却ルツボを用い、電磁誘導により多結晶シリコンを連続的に鑄造する多結晶シリコンの鑄造方法であって、原料として、最大粒径が40mmであり、かつ、粒径が0.6mm～3mmのものが0～40%、粒径が3mmを超え40mm以下のものが100～60%である高純度シリコンを使用することを特徴とする鑄造方法である。
- [0019] ここで、「最大粒径が40mmの原料」とは、目の大きさが40mmの篩

の篩下に相当する原料である。また、「粒径が0.6mm～3mmのもの」とは、目の大きさが0.6mmの篩の篩上で、かつ目の大きさが3mmの篩（3mm篩）の篩下に相当する原料を指し、「粒径が3mmを超え40mm以下のもの」とは3mm篩の篩上で、かつ40mm篩の篩下に相当する原料であることを意味する。

[0020] 本発明の多結晶シリコンの鑄造方法において、原料として、粒径が0.6mm～3mmのものが20%、粒径が3mmを超え40mm以下のものが80%である高純度シリコンを使用することとすれば、金属汚染が特に少なく望ましい。

発明の効果

[0021] 本発明の多結晶シリコンの鑄造方法は、電磁鑄造法により多結晶シリコンを製造するに際し、原料として使用する高純度シリコンの粒径を規定することを特徴とする鑄造方法である。この方法によれば、重金属による汚染が少なく、良好な変換効率を維持できる太陽電池の基板材としての多結晶シリコンを製造することができる。また、本発明の鑄造方法の実施に際して、大型で複雑な装置は必要なく、簡便な構造で小型の原料供給配管を採用することが可能である。

図面の簡単な説明

[0022] [図1]図1は、本発明の多結晶シリコンの鑄造方法の実施に好適な電磁鑄造装置の構成例を模式的に示す図である。

発明を実施するための形態

[0023] 本発明の多結晶シリコンの鑄造方法は、電磁鑄造法の適用を前提としている。この電磁鑄造法によれば、熔融シリコンをルツボや鑄型の内壁にほとんど接触させずに多結晶シリコンを鑄造することができ、ルツボや鑄型からの不純物汚染を防ぐことができる。また、多結晶シリコンを連続して鑄造することができるので、キャスト法に比べて製造コストの大幅な低下が可能である。

[0024] 図1は、本発明の多結晶シリコンの鑄造方法の実施に好適な電磁鑄造装置

の構成例を模式的に示す図である。同図に示すように、加熱用誘導コイル２の内側に、内部を水冷できる縦方向に長い銅製の板状片３が、誘導コイル２の巻き軸方向と平行に、かつ誘導コイル２内では相互に絶縁された状態で配列されている。この板状片３によって囲まれた空間がルツボ（すなわち、側壁部が水冷されている無底の冷却ルツボ）を構成する。冷却ルツボには、通常、板状片３を銅片とした水冷銅ルツボが用いられる。

[0025] 加熱用誘導コイル２の下端位置（すなわち、冷却ルツボの底部に相当する位置）には下方に移動できる支持台４が設置されている。

[0026] 支持台４の上方には、溶融後下方へ引き抜くことによってルツボ断面と同じ形状の断面を有する鋳塊８すなわち多結晶シリコン（インゴット）が形成される。この鋳塊８は搬送機６により下方に引き抜きが可能である。

[0027] 加熱用誘導コイル２の下側には、凝固した鋳塊８を保温するための保温装置（ヒータ）５が設置されている。鋳塊８は、加熱用誘導コイル２から下方へ離れることにより急速に冷却され、温度差による収縮の相違から過大な熱応力が発生し、鋳塊８に割れが発生することがあるからである。

[0028] 水冷ルツボの上方には、溶解中に原料をルツボ内に投入できる原料投入機９が設置されている。さらに、この例では、ルツボの上方に、原料シリコンを加熱するための発熱体１０が取り付けられている。発熱体１０としてプラズマトーチを配置し、必要に応じてプラズマアークによる超高温加熱を行うのが望ましい。

[0029] これらの諸装置は、溶融シリコンおよび高温の結晶（鋳塊）が大気と直接触れることがないように、密閉容器１内に設置され、容器１内は真空、不活性ガス、あるいは減圧された不活性ガス雰囲気で置換して連続鋳造が行えるように構成されている。

[0030] 多結晶シリコンの製造に際しては、ルツボに相当する空間にシリコン原料を充填し、加熱用誘導コイル２に高周波誘導電流を通じると、原料は発熱し、溶解する。このとき、発熱体１０を併用することもできる。ルツボ内の溶融シリコン７は、誘導電流により板状片３と反発し、ルツボの側壁とは接触

しない。溶融シリコン7が十分均一化した後、支持台4を少しずつ下方に移動させていけば、誘導コイル2から離れることにより冷却が始まり、ルツボ内の溶融シリコン7に向けての一方向性凝固が進行する。

[0031] 支持台4の下方への移動分に対応して溶融シリコン7の量が減少するので、その分の原料シリコンを原料投入機9から供給し、溶融シリコンの上面が常に同じ高さレベルを保つようにして、加熱溶解、引き抜き、原料供給を継続していくことにより、多結晶シリコン鑄塊を連続して製造することができる。

[0032] 本発明の多結晶シリコンの鑄造方法では、上記のように、電磁鑄造法の適用を前提とし、原料として、最大粒径が40mmであり、かつ、粒径が0.6mm～3mmのものが0～40%と、粒径が3mmを超え40mm以下のものが100～60%とで構成される高純度シリコンを使用する。

[0033] 原料としての高純度シリコンは、高純度シリカ（ SiO_2 ）を出発原料とし、常用されている方法、すなわち、中間生成物として得られるトリクロロシラン（ SiHCl_3 ）を分解する方法、またはモノシラン（ SiH_4 ）を分解する方法により製造される高純度シリコンを用いればよい。

[0034] 本発明において、原料として使用する高純度シリコンの最大粒径を40mmと規定するのは、粒径が40mmを超える原料粒が溶融シリコンに落下した場合、液跳ねにより溶融シリコンの飛沫が溶融シリコンの直上に設置されている発熱体（例えば、プラズマトーチ）の先端部に次々に付着し、塊状となって融液内に落下し、多結晶シリコンインゴットの品質に悪影響を与えるからである。

[0035] 粒径が40mm以下の原料を使用することにより、液跳ねが減少し、プラズマトーチ先端部への原料付着を抑制することが可能である。また、粒径40mm以下の原料の使用は、原料供給配管中での原料詰まりを回避する上でも有効である

[0036] さらに、粒径の小さい原料を使用することは、原料のルツボ内への供給時における配管内面の磨耗を低減させる効果がある。これは配管の寿命延長に

繋がるだけでなく、得られるシリコン多結晶の金属による汚染の低減にも有効である。原料の投入により金属製の原料供給配管が磨耗した場合には、汚染された原料が熔融シリコン内に投入されることになり、製品の金属汚染が増大するからである。

[0037] 使用する原料の粒径は、小さい程、液跳ねも減少し、原料供給配管の内面に与える摩耗や破損等のダメージが少なく、金属による汚染が低減する。しかしながら、粒径が過度に小さくなると、同じ質量でも表面積が増えるため、雰囲気（ヒューム）からの汚染を受けやすく、原料投入前から原料に含まれる（原料表面に付着している）金属不純物の濃度が高くなる。すなわち、原料粒径との関係でみた場合、原料供給配管の摩耗に伴う汚染を低減させることと、雰囲気からの汚染を低減させることは二律背反の関係にあり、原料全体としての汚染を最小限に抑えるためには、原料の粒径を適度な範囲に調整することが必要になる。

[0038] そこで、本発明においては、まず、投入する原料の粒径が過度に小さくなるのを避けるために、粒径の下限を規定する。さらに、原料を粒径の大きいものと小さいものの二種類に分別しておき、ルツボ内への原料供給時に両者を適宜配合することとする。このような方法を採用することにより、実際の作業の中で、粒径の調整を比較的容易に実施して、原料全体としての汚染を最小限に抑えることが可能となる。

[0039] 投入する原料の粒径の下限は0.6 mmとし、前記粒径範囲が異なる二種類の原料として、粒径範囲が0.6 mm～3 mmの原料と、粒径範囲が3 mmを超え40 mm以下の原料を使用する。後述する実施例に示すように、これら二種類の原料のうちの粒径が0.6 mm～3 mmの原料の比率を0～40%とし、粒径が3 mmを超え40 mm以下の原料の比率を100～60%とすれば、原料供給配管の摩耗に伴う汚染を低減するとともに、雰囲気からの汚染も減少させ、原料全体としての汚染を最小限に抑えることが可能となる。

[0040] さらに、このように粒径範囲が異なる二種類の原料を用いることによって

、原料の溶解を効率よく行うことができるという副次的な効果も得られる。前記図 1 に示したように、通常、原料投入機 9 に取り付けられている原料供給配管は、発熱体 10 からの輻射熱を遮らないように、斜め上方から延伸させてその先端が水冷ルツボの中央真上に位置するように配設されている。原料の粒径が同一の場合には、原料供給配管から排出された原料は溶融シリコン上のある一定の箇所に集中して落下し、島状に固まるので、原料の溶解が困難となる。これに対し、粒径範囲が異なる二種類の原料を用いると、原料が溶融シリコン内へ落下する際に、粒径の大きいものは勢いよく排出されてルツボの周辺部近傍にまで拡がり、粒径の小さいものはルツボの中央部近傍により多く落下することとなり、適度にばらつくので、原料の溶解が効率よく行われやすい。

- [0041] 粒径範囲が異なる二種類の原料の配合比率は、粒径範囲が 0.6 mm ~ 3 mm の原料の比率を 20 % とし、粒径範囲が 3 mm を超え 40 mm 以下の原料の比率を 80 % とするのが望ましい。この場合は、後述する実施例に示すように、金属汚染量が最小となり、太陽電池の変換効率が最大となる。

実施例

- [0042] (実施例 1)

最薄部の肉厚が 3 mm の、SUS 系合金製の原料供給配管に、様々な粒径の原料をそれぞれ 3000 kg ずつ落下させた後の配管内面の磨耗及び破損状態を目視観察により調査した。

- [0043] 調査結果を表 1 に示す。表 1 において、原料供給配管の内面の状況が「変化なし」の場合は、良好と評価した。

- [0044]

[表1]

表 1

試験 No.	原料粒径 (mm)	原料供給配管の内面の状態
1	0.3	変化なし
2	1	変化なし
3	3	変化なし
4	5	変化なし
5	10	変化なし
6	15	変化なし
7	20	変化なし
8	25	変化なし
9	30	変化なし
10	40	変化なし
11	50	摩耗が観察された
12	60	クラックが観察された
13	80	複数のクラックが観察された
14	100	割れが観察された

[0045] 表1から明らかなように、原料粒径が40mm以下の場合（試験No. 1～10）は、原料供給配管の内面に磨耗及び破損は認められず、良好であった。これに対し、原料粒径が50mmの場合（試験No. 11）、原料供給配管の内面に磨耗が観察され、粒径が60mm（試験No. 12、13）ではクラックが発生し、粒径が100mm（試験No. 14）では配管に割れが発生した。この結果から、原料の粒径の上限を40mmと規定する必要があることが確認できた。

[0046] （実施例2）

図1に例示した構成の電磁鑄造装置を使用し、最薄部の肉厚が3mmの、SUS系合金製の原料供給配管を取り付け、粒径範囲が「0.6mm～3mm」及び「3mmを超え40mm以下」の二種類の原料を使用して、その配合比率を変えて得られた各インゴット（450mm×350mm×7mの直方体）から多結晶シリコンウェーハを切り出した。これらの多結晶シリコン

ウェーハを基板として太陽電池を構成し、その変換効率を調査した。

[0047] 変換効率は、それぞれのインゴットから切り出した多結晶シリコンウェーハを基板として構成した太陽電池の電流電圧特性（I V特性）を測定して求めた。

[0048] 調査結果を表2に示す。表2において、変換効率がBase以上であれば、良好と評価した。

[0049] [表2]

表 2

試験 No.	原料配合割合（％）		変換効率（％）
	粒径 0.6mm～3mm	粒径 3mm 超 40mm 以下	
1	0	100	Base+0.1
2	10	90	Base+0.2
3	20	80	Base+0.4
4	30	70	Base+0.3
5	40	60	Base
6	50	50	Base-0.7
7	60	40	Base-1.0
8	80	20	Base-1.2
9	100	0	Base-1.3

[0050] 表2から明らかなように、粒径が3mmを超え40mm以下の原料を100%使用した場合は、粒径が0.6mm～3mmの原料の配合比率を40%以上と多くした場合（試験No. 5～No. 9）に比べて、変換効率が高かった。これは、原料の表面積が小さいため、原料投入前から原料表面に付着している金属不純物濃度が低かったことによるものと考えられる。一方、粒径が0.6mm～3mmの原料の配合比率が比較的小さい場合（試験No. 2～No. 4）に比べて変換効率が低かったのは、原料投入時に原料供給配管の内面に衝突した際の摩擦により金属汚染量が増加したことによるものと推察される。

[0051] 粒径0.6mm～3mmの原料の割合を100%とした場合は、粒径が3

mmを超え40mm以下の原料を比較的少なく配合した場合（試験N o. 6～N o. 8）に比べて変換効率が若干低下した。これは、原料供給配管の摩耗による金属汚染は減少したが、表面積が大きく、原料投入前から原料表面に付着している金属不純物濃度が高かったためと考えられる。

[0052] 表2に示した結果から、良好な変換効率を得るためには、粒径範囲が0.6mm～3mmの原料の配合比率を0～40%、粒径範囲が3mmを超え40mm以下の原料の配合比率を100～60%とすることが必要であることがわかる。

[0053] 粒径範囲が0.6mm～3mmの原料比率を20%とし、粒径範囲が3mmを超え40mm以下の原料比率を80%とした場合（試験N o. 3）、変換効率が最高値を示しており、金属汚染量が最も低いと考えられる。

産業上の利用可能性

[0054] 本発明の多結晶シリコンの鑄造方法によれば、重金属による汚染が少なく、良好な変換効率を維持できる太陽電池の基板材としての多結晶シリコンを、簡素な構造で小型の原料供給配管を採用した電磁鑄造装置を使用して容易に製造することができる。したがって、本発明は、太陽電池の製造分野において有効に利用することができ、自然エネルギー利用技術の進展に大きく寄与することができる。

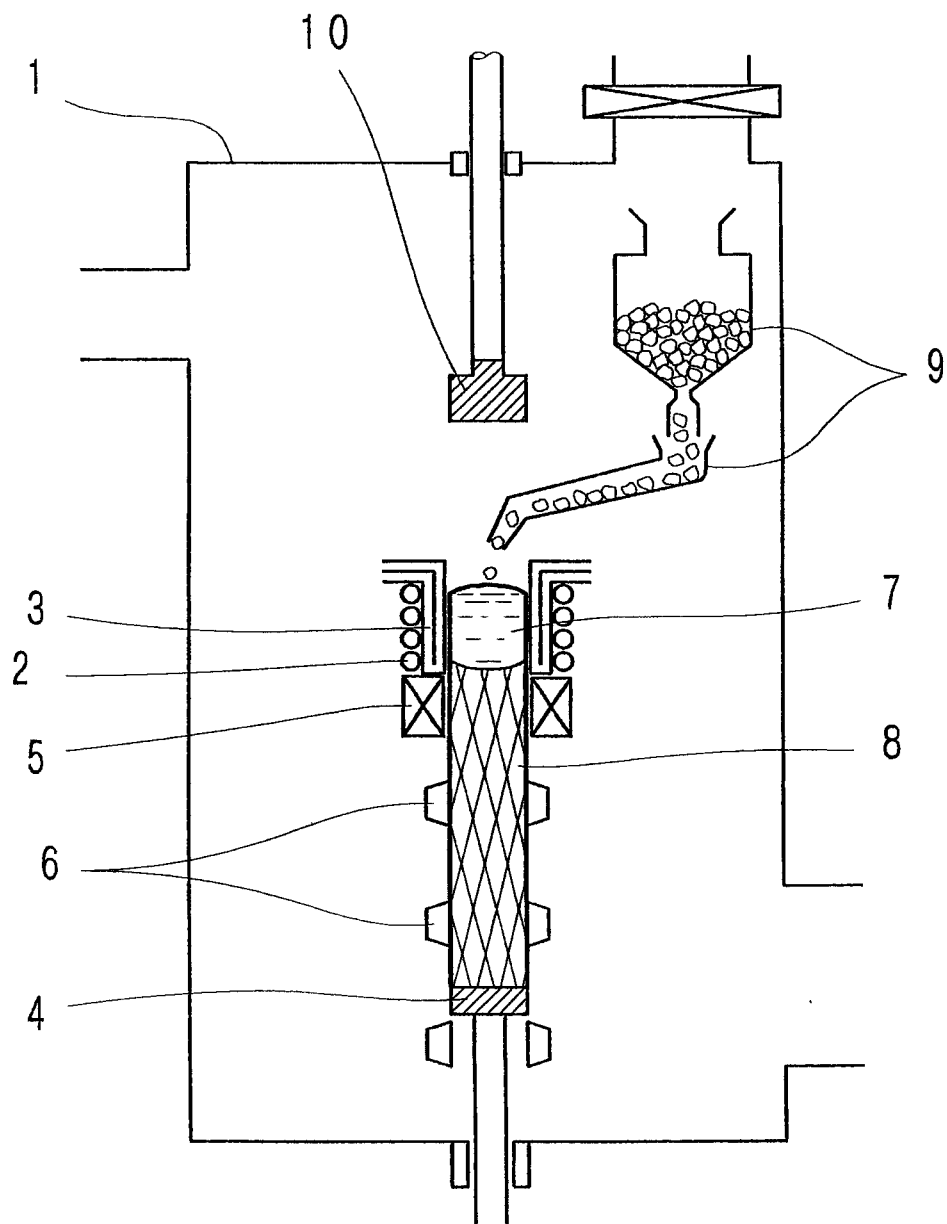
符号の説明

[0055] 1：密閉容器、 2：加熱用誘導コイル、 3：板状片、 4：支持台、
5：保温装置（ヒータ）、 6：搬送機、 7：溶融シリコン、
8：鑄塊、 9：原料投入機、 10：発熱体

請求の範囲

- [請求項1] 無底の冷却ルツボを用い、電磁誘導により多結晶シリコンを連続的に鑄造する多結晶シリコンの鑄造方法であって、
- 原料として、最大粒径が40mmであり、
- かつ、粒径が0.6mm～3mmのものが0～40質量%、粒径が3mmを超え40mm以下のものが100～60質量%である高純度シリコンを使用することを特徴とする多結晶シリコンの鑄造方法。
- [請求項2] 原料として、粒径が0.6mm～3mmのものが20質量%、粒径が3mmを超え40mm以下のものが80質量%である高純度シリコンを使用することを特徴とする請求項1に記載の多結晶シリコンの鑄造方法。

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/006919

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B33/02 (2006.01) i, H01L31/04 (2006.01) i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C01B33/00-33/193, H01L31/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2011

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2011 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2011

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 11-314911 A (Sumitomo Sitix of Amagasaki, Inc.), 16 November 1999 (16.11.1999), claims; paragraphs [0016] to [0018]; examples; fig. 4 (Family: none)	1-2
A	JP 2004-149342 A (Kyocera Corp.), 27 May 2004 (27.05.2004), claims; paragraphs [0020] to [0029]; fig. 1 (Family: none)	1-2
A	JP 10-182131 A (Kawasaki Steel Corp.), 07 July 1998 (07.07.1998), claims; examples (Family: none)	1-2



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T"

later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y"

document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&"

document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

16 February, 2011 (16.02.11)

Date of mailing of the international search report

01 March, 2011 (01.03.11)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2010/006919

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2008-174397 A (SUMCO Solar Corp.), 31 July 2008 (31.07.2008), claims; examples; fig. 1 & US 2008/0210156 A1 & EP 1947221 A2	1-2
A	JP 2009-234850 A (Kyocera Corp.), 15 October 2009 (15.10.2009), claims; examples (Family: none)	1-2

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））
Int.Cl. C01B33/02 (2006.01)i, H01L31/04 (2006.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C01B33/00-33/193, H01L31/04

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 1 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 1 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 1 年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 11-314911 A（株式会社住友シチックス尼崎）1999.11.16, 特許請求の範囲、【0016】－【0018】、実施例、図4（ファミリーなし）	1－2
A	JP 2004-149342 A（京セラ株式会社）2004.05.27, 特許請求の範囲、【0020】－【0029】、図1（ファミリーなし）	1－2
A	JP 10-182131 A（川崎製鉄株式会社）1998.07.07, 特許請求の範囲、実施例（ファミリーなし）	1－2

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。

☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）

「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&」同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

1 6 . 0 2 . 2 0 1 1

国際調査報告の発送日

0 1 . 0 3 . 2 0 1 1

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官（権限のある職員）

大工原 大二

4 G

9 3 4 3

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2008-174397 A (SUMCOソーラー株式会社) 2008.07.31, 特許請求の範囲、実施例、図1 & US 2008/0210156 A1 & EP 1947221 A2	1 - 2
A	JP 2009-234850 A (京セラ株式会社) 2009.10.15, 特許請求の範囲、実施例 (ファミリーなし)	1 - 2