

(12) NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT) VERÖFFENTLICHTE INTERNATIONALE ANMELDUNG

(19) Weltorganisation für geistiges Eigentum  
Internationales Büro



(43) Internationales Veröffentlichungsdatum  
14. September 2006 (14.09.2006)

PCT

(10) Internationale Veröffentlichungsnummer  
**WO 2006/094714 A1**

(51) Internationale Patentklassifikation:

*C01B 33/02* (2006.01)     *B01J 19/24* (2006.01)

*C01B 33/027* (2006.01)     *B01J 15/00* (2006.01)

(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP2006/001945

(22) Internationales Anmeldedatum:

3. März 2006 (03.03.2006)

(25) Einreichungssprache: Deutsch

(26) Veröffentlichungssprache: Deutsch

(30) Angaben zur Priorität:

10 2005 010 218.2     5. März 2005 (05.03.2005)     DE

(71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten mit Ausnahme von US): **JOINT SOLAR SILICON GMBH & CO. KG** [DE/DE]; Berthelsdorfer Strasse 111a, 09599 Freiberg (DE).

(72) Erfinder; und

(75) Erfinder/Anmelder (nur für US): **BERTHOLD, Rico**

[DE/DE]; Johanna-Römer-Strasse 3, 09599 Freiberg (DE). **BEYER, Christian** [DE/DE]; Herderstrasse 9, 09599 Freiberg (DE). **MÜLLER, Armin** [DE/DE]; Walterstal 96b, 09599 Freiberg (DE). **PÄTZOLD, Carsten** [DE/DE]; Schulstrasse 2, 02994 Wiednitz (DE). **SILL, Torsten** [DE/DE]; Brückenstrasse 7a, 09599 Freiberg (DE). **SINGLIAR, Ute** [DE/DE]; Freiburger Strasse 56, 09603 Grossschirma/OT Obergruna (DE). **SONNENSCHWEIN, Raymund** [DE/DE]; Grosse Rittergasse 13, 60594 Frankfurt (DE). **ZIEGENBALG, Gerald** [DE/DE]; Balthasar-Rössler-Strasse 36, 09599 Freiberg (DE).

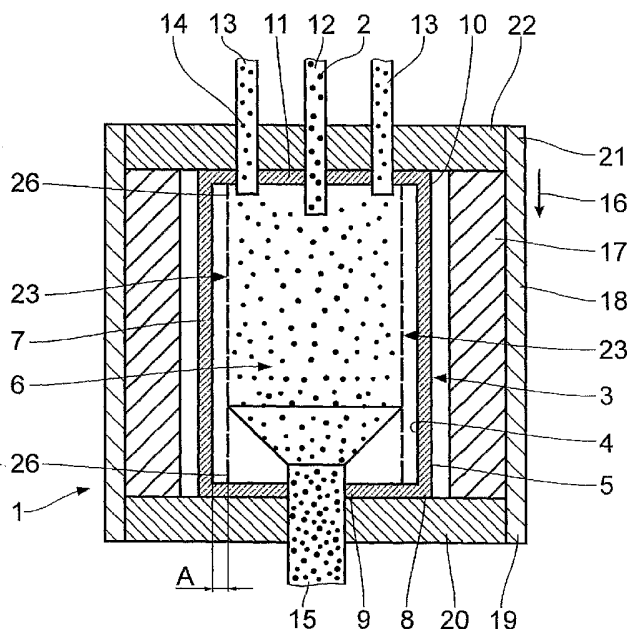
(74) Anwälte: **RAU, Albrecht** usw.; Königstrasse 2, 90402 Nürnberg (DE).

(81) Bestimmungsstaaten (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare nationale Schutzrechtsart): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV,

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

(54) Title: REACTOR AND METHOD FOR PRODUCING SILICON

(54) Bezeichnung: REAKTOR UND VERFAHREN ZUR HERSTELLUNG VON SILIZIUM



(57) Abstract: In a reactor (1) for decomposing a silicon-containing gas (2), to avoid silicon deposition on an inner wall (4) of a reactor vessel (3), it is provided that, within a reaction chamber (6) between at least one gas-feed line (12) and the inner wall (4), at least one catalytically active mesh (23) is provided. The mesh (23) accelerates the thermal decomposition of the gas (2) and decreases the deposition of silicon on the inner wall (4). In addition, a method for producing silicon using the inventive reactor (1), and the use of the silicon produced in photovoltaics, is described.

[Fortsetzung auf der nächsten Seite]

WO 2006/094714 A1



LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

**(84) Bestimmungsstaaten** (soweit nicht anders angegeben, für jede verfügbare regionale Schutzrechtsart): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), eurasisches (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), europäisches (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC,

NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

**Erklärung gemäß Regel 4.17:**

— *Erfindererklärung (Regel 4.17 Ziffer iv)*

**Veröffentlicht:**

— *mit internationalem Recherchenbericht*

*Zur Erklärung der Zweibuchstaben-Codes und der anderen Abkürzungen wird auf die Erklärungen ("Guidance Notes on Codes and Abbreviations") am Anfang jeder regulären Ausgabe der PCT-Gazette verwiesen.*

---

**(57) Zusammenfassung:** Bei einem Reaktor (1) zur Zersetzung eines Silizium enthaltenden Gases (2) ist zur Vermeidung von sich ablagernden Silizium an einer Innen-Wand (4) eines Reaktor-Behälters (3) vorgesehen, dass innerhalb einer Reaktions-Kammer (6) zwischen mindestens einer Gas-Zuführ-Leitung (12) und der Innen-Wand (4) mindestens ein katalytisch wirkendes Gitter (23) vorgesehen ist. Durch das Gitter (23) wird die thermische Zersetzung des Gases (2) beschleunigt und die Ablagerung von Silizium an der Innen-Wand (4) verringert. Des Weiteren wird ein Verfahren zur Herstellung von Silizium mit dem erfindungsgemäßen Reaktor (1) und die Verwendung des hergestellten Siliziums in der Photovoltaik beschrieben.

## Reaktor und Verfahren zur Herstellung von Silizium

Die Erfindung betrifft einen Reaktor zur Zersetzung eines Silizium enthaltenden Gases, insbesondere zur Zersetzung von Monosilan oder Trichlorsilan. Die Erfindung betrifft ferner ein Verfahren zur Herstellung von Silizium, das als Ausgangsstoff für die Fertigung von polykristallinen Siliziumblöcken oder Siliziumeinkristallen für die Photovoltaik geeignet ist. Die Erfindung betrifft des Weiteren die Verwendung des nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestellten Siliziums in der Photovoltaik. Die Erfindung betrifft ferner nach dem erfindungsgemäßen Verfahren hergestelltes Silizium.

Verfahren zur Herstellung von hochreinem Silizium sind seit Langem bekannt. In DE 10 2004 027 563.7 ist beispielsweise ein energie- und kostensparendes Herstellungsverfahren für hochreines Silizium bekannt, bei dem ein Monosilan-Wasserstoff-Gasgemisch thermisch zersetzt wird, und pulverförmiges Silizium in der Gasphase entsteht, das anschließend mechanisch verdichtet wird. Bei diesem Herstellungsverfahren ist es möglich, dass sich das aus der Gasphase abgeschiedene Silizium auf der beheizten Innen-Wand des Reaktor-Behälters als Schicht ablagert. Der Reaktor-Behälter besteht in der Regel aus Quarzglas, das einen im Vergleich zu Silizium unterschiedlichen Wärmeausdehnungskoeffizienten aufweist. Während des Reaktorbetriebs kommt es an der Innen-Wand des Reaktor-Behälters in zunehmenden Maße zu einer Ablagerung von Silizium. Dies führt einerseits dazu, dass sich die Wärmeleitung von der außerhalb der Reaktions-Kammer angeordneten Heiz-Vorrichtung zu der Reaktions-Kammer reduziert und andererseits dazu, dass nach Ablauf einer gewissen Zeitdauer der Reaktor-Behälter mechanisch oder chemisch von der abgelagerten Siliziumschicht gereinigt werden muss. Dies führt möglicherweise

zu Unterbrechungen des Reaktorbetriebs. Weiterhin kommt es infolge der unterschiedlichen Wärmeausdehnungskoeffizienten des Reaktor-Behälters und der Siliziumschicht bei einer Abkühlung des Reaktor-Behälters zu großen Kräften und Spannungen zwischen der abgelagerten Siliziumschicht und dem Quarzglas. Dies kann zu Beschädigungen des Reaktor-Behälters führen, insbesondere zu Rissen und Abplatzungen, die in das abgeschiedene pulverförmige Silizium gelangen und dieses verunreinigen.

Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, einen Reaktor zur Zersetzung eines Silizium enthaltenden Gases derart weiterzubilden, dass dieser wirkungsvoll und einfach vor Beschädigungen durch abgelagertes Silizium geschützt wird und gleichzeitig hochreines Silizium zur Weiterverarbeitung in der Photovoltaik energie- und kostensparend herstellbar ist.

Diese Aufgabe wird durch die Merkmale der Ansprüche 1, 12, 16 und 17 gelöst. Der Kern der Erfindung besteht darin, dass mindestens ein gasdurchlässiges Katalysator-Element vorgesehen ist, das innerhalb der Reaktions-Kammer zwischen der mindestens einen Gas-Zuführ-Leitung und der Innen-Wand des Reaktor-Behälters angeordnet ist. Bedingt durch die katalytische Wirkung des Katalysator-Elements wird das thermische Zersetzen des Gases und das Abscheiden von pulverförmigem Silizium aus der Gasphase beschleunigt und die Konzentration des Silizium enthaltenden Gases unmittelbar an der Innen-Wand des Reaktor-Behälters reduziert. Dies führt zu einer Reduzierung der Abscheidung von Silizium an der Innen-Wand des Reaktor-Behälters und infolge dessen zu einer deutlichen Erhöhung der Betriebszeit des Reaktors, da eine erforderliche Unterbrechung des kontinuierlichen Reaktorbetriebes zur Reinigung des Reaktor-Behälters nur noch in deutlich längeren Zeitabständen erfolgen muss. Weiterhin erfolgt aufgrund der katalytischen Wirkung des Katalysator-Elements die Zerset-

zung des Silizium enthaltenden Gases bei deutlich niedrigeren Temperaturen, wodurch eine Energieeinsparung möglich ist und der Wirkungsgrad des Reaktors verbessert wird. Weiterhin sind infolge der beschleunigten thermischen Zersetzung des Silizium enthaltenden Gases höhere Strömungsgeschwindigkeiten und höhere Konzentrationen des Gases in der Reaktions-Kammer möglich, wodurch die Raum-Zeit-Ausbeute des Reaktors verbessert und somit die Leistung des Reaktors erhöht wird.

Weitere vorteilhafte Ausgestaltungen der Erfindung ergeben sich aus den Unteransprüchen.

Zusätzliche Merkmale, Vorteile und Einzelheiten der Erfindung ergeben sich aus der nachfolgenden Beschreibung mehrerer Ausführungsbeispiele anhand der Zeichnungen. Es zeigen:

15

Fig. 1 einen Längsschnitt durch einen Reaktor gemäß einem ersten Ausführungsbeispiel,

20

Fig. 2 einen vergrößerten Ausschnitt eines Katalysator-Elements des Reaktors gemäß Fig. 1,

Fig. 3 einen Längsschnitt durch einen Reaktor gemäß einem zweiten Ausführungsbeispiel, und

25

Fig. 4 einen Längsschnitt durch einen Reaktor gemäß einem dritten Ausführungsbeispiel.

Im Folgenden wird unter Bezugnahme auf Figur 1 und 2 ein erstes Ausführungsbeispiel der Erfindung beschrieben. Ein Reaktor 1 zur Zersetzung

eines Silizium enthaltenden Gases 2 weist zur Aufnahme des Gases 2 einen Reaktor-Behälter 3 vorzugsweise aus Quarzglas, Graphit, CFC oder SiC auf. Der Reaktor-Behälter 3 weist eine Innen-Wand 4 und eine Außen-Wand 5 auf, wobei die Innen-Wand 4 eine Reaktions-Kammer 6 umschließt. Der Reaktor-Behälter 3 wird durch einen im Wesentlichen hohlzylinderförmigen Seiten-Abschnitt 7, einen den Seiten-Abschnitt 7 an einem ersten Ende 8 verschließenden scheibenförmigen Boden-Abschnitt 9 und einen den Seiten-Abschnitt 7 an einem zweiten Ende 10 verschließenden scheibenförmigen Deckel-Abschnitt 11 ausgebildet. Zur Zuführung des Gases 2 in die Reaktions-Kammer 6 ist mittig zu dem Deckel-Abschnitt 11 eine diesen durchbrechende Gas-Zuführ-Leitung 12 angeordnet. Konzentrisch zu der Gas-Zuführ-Leitung 12 ist weiterhin eine ringförmige und den Deckel-Abschnitt 11 durchbrechende Hilfsgas-Zuführ-Leitung 13 zur Zuführung eines Hilfsgases 14 angeordnet. Gegenüberliegend zu der Gas-Zuführ-Leitung 12 ist mittig zu dem Boden-Abschnitt 9 eine diesen durchbrechende trichterförmige Gas-Abführ-Leitung 15 zur Abführung des nach der Zersetzung entstandenen pulverförmigen Siliziums und des restlichen Gases 2 angeordnet. Das durch die Gas-Zuführ-Leitung 12 in die Reaktions-Kammer 6 eingeleitete Gas 2 weist im Wesentlichen eine Einström-Richtung 16 auf, die senkrecht zu dem Deckel-Abschnitt 11 des Reaktor-Behälters 3 ist, wobei das Gas 2 durch das Hilfsgas 14 in Form eines Ringstromes umgeben ist.

Außerhalb der Reaktions-Kammer 6 ist der Reaktor-Behälter 3 von einer hohlzylinderförmigen Heiz-Vorrichtung 17 umgeben, die zur Beheizung der Reaktions-Kammer 6 elektrisch beheizbar ist. Die Heiz-Vorrichtung 17 ist vollflächig um den Seiten-Abschnitt 7 des Reaktor-Behälters 3 und beabstandet von diesem angeordnet.

Die Heiz-Vorrichtung 17 und der Reaktor-Behälter 3 sind zum Schutz vor Beschädigungen von einer Schutz-Hülle 18 umgeben, die hohlzylinderförmig ausgebildet ist und an einem ersten freien Ende 19 durch einen Schutz-Boden 20 und an einem zweiten freien Ende 21 durch einen Schutz-Deckel 22 verschlossen ist. Der Schutz-Deckel 22 wird zur Zuführung des Gases 2 und des Hilfsgases 14 von der Gas-Zuführ-Leitung 12 und der Hilfsgas-Zuführ-Leitung 13 durchbrochen. Weiterhin wird der Schutz-Boden 20 zur Abführung des pulverförmigen Siliziums und des restlichen Gases 2 von der Gas-Abführ-Leitung 15 durchbrochen.

10

Innerhalb der Reaktions-Kammer 6 ist zwischen der Gas-Zuführ-Leitung 12 und der Innen-Wand 4 des Reaktor-Behälters 3 ein gasdurchlässiges Katalysator-Element 23 in Form eines elektrisch beheizbaren Gitters angeordnet. Das Gitter 23 ist in Form eines Hohlzylinders oder Zylindermantels ausgebildet und konzentrisch zu der Gas-Zuführ-Leitung 12 in der Reaktions-Kammer 6 ausgerichtet. Das Gitter 23 erstreckt sich vollflächig entlang dem Seiten-Abschnitt 7 des Reaktor-Behälters 3. Das Gitter 23 weist einen radialen Abstand A von der Innen-Wand 4 des Reaktor-Behälters 3 auf, der im Bereich von 1 mm bis 100 mm, insbesondere von 5 mm bis 60 mm, und insbesondere von 10 mm bis 50 mm, liegt. Die ringförmige Hilfsgas-Zuführ-Leitung 13 ist zwischen dem Gitter 23 und der Gas-Zuführ-Leitung 12 angeordnet, wobei der radiale Abstand von der Gas-Zuführ-Leitung 12 deutlich größer als der radiale Abstand von dem Gitter 23 ist.

25 Das Gitter 23 besteht aus mindestens einem Material, das bis zu einer Temperatur von mindestens 1200° C, insbesondere von mindestens 1600° C, und insbesondere von mindestens 2000° C, temperaturbeständig ist. Dieses Material wirkt als Katalysator und beschleunigt die Zersetzung des Gases 2. Vorteilhafterweise besteht das Gitter 23 aus einer Legierung oder

einem Metall, insbesondere aus mindestens einem der Elemente Molybdän, Tantal, Niob und Wolfram. Diese Elemente weisen eine gute elektrische Leitfähigkeit in Verbindung mit einer hohen Schmelztemperatur auf und verunreinigen das aus der Gasphase entstehende pulverförmige Silizium  
5 nur gering mit einer Konzentration von  $< 0,1$  ppma.

Das Gitter 23 ist aus mehreren beabstandet voneinander angeordneten Quer-Stäben 24 und mehreren senkrecht zu den Quer-Stäben 24 und beab-  
standet voneinander angeordneten Längs-Stäben 25 aufgebaut. Jeweils  
10 zwei benachbarte Quer-Stäbe 24 oder jeweils zwei benachbarte Längs-  
Stäbe 25 weisen einen freien Gitterabstand  $F$  auf, der im Bereich von  $0,1$   
mm bis  $10$  mm, insbesondere von  $0,5$  mm bis  $5$  mm, und insbesondere von  
 $0,9$  mm bis  $2$  mm, liegt. Die Stäbe 24, 25 sind aus einem im Querschnitt  
kreisförmigen Draht ausgebildet, der einen Durchmesser  $D$  im Bereich von  
15  $0,1$  mm bis  $5$  mm, insbesondere von  $0,5$  mm bis  $3$  mm, und insbesondere  
von  $0,9$  mm bis  $2$  mm, aufweist. Vorzugsweise ist das Gitter 23 ein Gewe-  
be aus Draht oder ein Geflecht aus Draht.

Das Gitter 23 ist im Bereich seiner freien Gitterenden 26 mit Anschlüssen  
20 an die Pole einer nicht dargestellten Spannungsquelle angeschlossen. Die  
Anschlüsse sind in abgedichteter Weise in den Reaktor-Behälter 3 geführt.  
Durch den freien Gitterabstand  $F$  und den Durchmesser  $D$  sind der elektri-  
sche Widerstand des Gitters 23, die maximale Heizleistung des Gitters 23  
und die Oberfläche des Gitters 23 im Verhältnis zueinander optimierbar.

25 Nach der Gas-Abführ-Leitung 15 ist zum Abtrennen des pulverförmigen  
Siliziums und zum Verdichten von diesem eine nicht dargestellte Entgas-  
ungs- und Verdichtungs-Vorrichtung angeordnet. Hinsichtlich des Auf-  
baus der Entgasungs- und Verdichtungs-Vorrichtung wird auf die



DE 10 2004 027 563.7 und die DE 10 2004 027 564.5 verwiesen.

Im Folgenden wird die Funktionsweise des Reaktors 1 zur Herstellung von Silizium, das als Ausgangsstoff für die Fertigung von polykristallinen Siliziumblöcken oder Siliziumeinkristallen für die Photovoltaik geeignet ist, beschrieben. Durch die Gas-Zuführ-Leitung 12 wird in Einström-Richtung 16 das Silizium enthaltende Gas 2, beispielsweise Monosilan  $\text{SiH}_4$  oder Trichlorsilan  $\text{SiHCl}_3$ , in die Reaktions-Kammer 6 eingeleitet. Durch die Einstellung der Einström-Geschwindigkeit ist die Verweildauer des Gases 2 und die Konzentration des Gases 2 innerhalb der Reaktions-Kammer 6 einstellbar.

Gleichzeitig zu dem Gas 2 wird durch die Hilfsgas-Zuführ-Leitung 13 das Hilfsgas 14, welches das Gas 2 im Wesentlichen ringförmig umgibt, in Einström-Richtung 16 eingeleitet, wobei das Hilfsgas 14 im Wesentlichen in Einström-Richtung 16 entlang des Gitters 23 und der Innen-Wand 4 strömt. Als Hilfsgas 14 wird beispielsweise ein Inertgas wie Argon Ar oder Wasserstoff  $\text{H}_2$  oder Stickstoff  $\text{N}_2$  verwendet. Die Reaktions-Kammer 6 ist beim Einleiten der Gase 2, 14 auf eine Betriebs-Temperatur  $T_R$  von  $700^\circ\text{C}$  bis  $1200^\circ\text{C}$  aufgeheizt. Weiterhin ist das Gitter 23 derart beheizt, dass dieses eine Temperatur  $T_G$  aufweist, die höher als eine Temperatur  $T_I$  an der Innen-Wand 4 in dem beheizten Seiten-Abschnitt 7 des Reaktor-Behälters 3 ist.

Das Gas 2 wird nach dem Einleiten in die Reaktions-Kammer 6 thermisch zersetzt und es wird aus der Gasphase pulverförmiges Silizium abgeschieden. Das abgeschiedene pulverförmige Silizium weist eine Reinheit derart auf, dass es zur Herstellung von Siliziumschmelze für die Fertigung von polykristallinen Siliziumblöcken oder Siliziumeinkristallen für die Pho-

5 tovoltaik geeignet ist. Das pulverförmige Silizium besteht aus Silizium-Teilchen, die einen mittleren Durchmesser von 0,1  $\mu\text{m}$  bis 20  $\mu\text{m}$ , insbesondere von 2  $\mu\text{m}$  bis 5  $\mu\text{m}$ , aufweisen. Durch die Einstellung der Verweildauer des Gases 2 und der abgeschiedenen Silizium-Teilchen mittels der Einström-Geschwindigkeit ist der mittlere Durchmesser der Silizium-Teilchen einstellbar.

10 Das in Einström-Richtung 16 zugeführte Gas 2 verteilt sich im Wesentlichen gleichmäßig innerhalb der Reaktions-Kammer 6 und passiert zu einem Teil das Gitter 23. Aufgrund der katalytischen Wirkung des Gitters 23 kommt es im Bereich um das Gitter 23, insbesondere beim Passieren von diesem, zu einem beschleunigten thermischen Zersetzen des Gases 2. Dieser Vorgang wird zusätzlich durch die im Vergleich zu der Temperatur  $T_R$  in der Reaktions-Kammer 6 und der Temperatur  $T_I$  der Innen-Wand 4 höhere Temperatur  $T_G$  des Gitters 23 beschleunigt. Aufgrund der Tatsache, dass sich das aus der Gasphase abgeschiedene pulverförmige Silizium bevorzugt an der heißesten Oberfläche ablagert, kommt es infolge der im Vergleich zu der Temperatur  $T_I$  der Innen-Wand 4 höheren Temperatur  $T_G$  des Gitters 23 zu einer deutlichen Reduzierung des sich an der Innen-Wand 20 4 ablagernden Siliziums. Zudem ist aufgrund der beschleunigten Zersetzung des Gases 2 in radialer Richtung vor dem Gitter 23 und beim Passieren des Gitters 23, die Konzentration des Gases 2 zwischen dem Gitter 23 und der Innen-Wand 4 deutlich reduziert, was die Reduzierung von auf der Innen-Wand 4 sich ablagernden Silizium-Teilchen ebenfalls begünstigt.

25

Aufgrund des katalytisch wirkenden Materials des Gitters 23 findet die thermische Zersetzung des Gases 2 bereits bei einer geringeren Temperatur statt, was in Verbindung mit der unmittelbaren Wärmeeinkopplung durch

das Gitter 23 in die Reaktions-Kammer 6 zu einem geringen Energieverbrauch führt. Aufgrund der beschleunigten Zersetzung des Gases 2 wird die Raum-Zeit-Ausbeute und somit die Leistung des Reaktors 1 verbessert. Die deutliche Reduzierung der Ablagerung von Silizium-Teilchen an der Innen-Wand 4 des Reaktor-Behälters 3 ermöglicht eine deutliche Verlängerung der Betriebsdauer des Reaktors 1, ohne dass der kontinuierliche Betrieb des Reaktors 1 durch eine erforderliche Reinigung des Reaktor-Behälters 3 unterbrochen werden muss. Ferner wird der Reaktor-Behälter 3 wirkungsvoll vor Beschädigungen durch die sich ablagernden Silizium-Teilchen geschützt.

Durch das ringförmige Einströmen des Hilfsgases 14, welches das Gas 2 umgibt, wird die Konzentration des Gases 2 im Bereich des Gitters 23 und der Innen-Wand 4 zusätzlich reduziert, sodass auch dadurch die Anzahl sich ablagernder Silizium-Teilchen reduziert wird.

Nach dem thermischen Zersetzen des Gases 2 wird das pulverförmige Silizium und das restliche Gas 2 durch die Gas-Abführ-Leitung 15 aus der Reaktions-Kammer 6 ausgeleitet und zum Abtrennen und Verdichten des gebildeten pulverförmigen Siliziums der Entgasungs- und Verdichtungs-Vorrichtung zugeführt. Für eine detaillierte Beschreibung der Funktionsweise der Entgasungs- und Verdichtungs-Vorrichtung wird auf die DE 10 2004 027 563.7 und auf die DE 10 2004 027 564.5 verwiesen.

Das hergestellte pulverförmige Silizium hat eine braune Farbe und weist Silizium-Teilchen mit einem mittleren Durchmesser von 0,1  $\mu\text{m}$  bis 20  $\mu\text{m}$ , insbesondere von 2  $\mu\text{m}$  bis 5  $\mu\text{m}$ , auf. Das hergestellte pulverförmige Silizium kann entweder direkt für die Fertigung von polykristallinen Silizium-

blöcken oder Siliziumeinkristallen für die Photovoltaik eingeschmolzen werden oder nach dem Einschmelzen formgebend behandelt, insbesondere zu einem Granulat verarbeitet werden.

- 5 Im Folgenden wird unter Bezugnahme auf die Figur 3 ein zweites Ausführungsbeispiel der Erfindung beschrieben. Konstruktiv identische Teile erhalten dieselben Bezugszeichen, wie bei dem ersten Ausführungsbeispiel, auf dessen Beschreibung hiermit verwiesen wird. Konstruktiv unterschiedliche, jedoch funktionell gleichartige Teile erhalten dieselben Bezugszeichen mit einem nachgestellten „a“. Der wesentliche Unterschied gegenüber
- 10 dem ersten Ausführungsbeispiel besteht in der Ausgestaltung und Anordnung des Gitters 23a. Das Gitter 23a ist derart ausgebildet, dass es die Gas-Zuführ-Leitung 12 vollständig umschließt. Hierzu weist das Gitter 23a einen hohlzylinderförmig ausgebildeten ersten Gitter-Abschnitt 27 auf, der
- 15 konzentrisch zu der Gas-Zuführ-Leitung 12 und zwischen der Gas-Zuführ-Leitung 12 und der Hilfgas-Zuführ-Leitung 13 angeordnet ist. Der erste Gitter-Abschnitt 27 erstreckt sich in Einström-Richtung 16 ungefähr bis zu einem Drittel der Reaktions-Kammer 6 und weist im Vergleich zu dem
- ersten Ausführungsbeispiel einen deutlich größeren radialen Abstand A zu
- 20 der Innen-Wand 4 des Reaktor-Behälters 3 auf. Der erste Gitter-Abschnitt 27 ist an dem dem Deckel-Abschnitt 11 des Reaktor-Behälters 3 abgewandten Gitterende 26a durch einen im Wesentlichen scheibenförmigen zweiten Gitter-Abschnitt 28 abgeschlossen. Das Gitter 23a ist derart ausgestaltet, dass es elektrisch beheizbar ist. Zur elektrischen Beheizung des
- 25 Gitters 23a ist dieses mit den Polen einer nicht dargestellten Spannungsquelle verbunden.

Nach dem Zuführen des Silizium enthaltenden Gases 2 in die Reaktions-Kammer 6 beginnt das thermische Zersetzen des Gases 2 und das Abschei-

den von pulverförmigem Silizium aus der Gasphase. Durch die Anordnung des Gitters 23a um die Gas-Zuführ-Leitung 12 muss das Gas 2 vollständig das Gitter 23a passieren. Aufgrund der Temperatur  $T_G$  des Gitters 23a und des katalytisch wirkenden Materials des Gitters 23a erfolgt die thermische  
5 Zersetzung des Gases 2 beschleunigt und im Wesentlichen beim Passieren des Gitters 23a. Die Konzentration des Gases 2 ist somit nach dem Passieren des Gitters 23a deutlich verringert, sodass die Abscheidung des Siliziums aus dem Gas 2 an der Innen-Wand 4 reduziert wird. Die Konzentration des Silizium enthaltenden Gases 2 wird zusätzlich durch die ringförmige  
10 Zuführung des Hilfsgases 14 im Bereich der Innen-Wand 4 reduziert. Weiterhin wird aufgrund der im Vergleich zu der Temperatur  $T_G$  des Gitters 23a niedrigeren Temperatur  $T_I$  der Innen-Wand 4 die Ablagerung von Silizium an der Innen-Wand 4 ebenfalls verringert.

15 Im Folgenden wird unter Bezugnahme auf die Fig. 4 ein drittes Ausführungsbeispiel der Erfindung beschrieben. Konstruktiv identische Teile erhalten dieselben Bezugszeichen wie bei dem ersten Ausführungsbeispiel, auf dessen Beschreibung hiermit verwiesen wird. Konstruktiv unterschiedliche, jedoch funktionell gleichartige Teile erhalten dieselben Bezugszeichen mit einem nachgestellten „b“. Der wesentliche Unterschied gegenüber  
20 den vorangegangenen Ausführungsbeispielen besteht im Aufbau des Reaktors 1b und in der Anordnung des Katalysator-Elements 23b.

Der Reaktor 1b ist prinzipiell in drei Abschnitte gegliedert. In einem Zuführungs-Abschnitt 29 ist das Katalysator-Element 23b ( $\text{SiH}_4$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{N}_2$ , He) in dem Reaktor-Behälter 3b angeordnet. Die Gas-Zuführ-Leitung 12b und die Hilfsgas-Zuführ-Leitung 13b ( $\text{H}_2$ ,  $\text{N}_2$ , He) münden in den Zuführungs-Abschnitt 29 des Reaktor-Behälters 3b, wobei sich die Gas-Zuführ-Leitung 12b bis zu dem Katalysator-Element 23b erstreckt, so dass das eingeleitete

Silizium enthaltende Gas 2 direkt auf das Katalysator-Element 23b trifft. Das Katalysator-Element 23b ist schräg zu der Einström-Richtung 16 angeordnet und als Gitter ausgebildet. Das Katalysator-Element 23b ist mittels elektrisch leitfähiger Katalysator-Element-Anschlüsse 30 an dem Reaktor-Behälter 3b befestigt, wobei die Katalysator-Element-Anschlüsse 30 aus dem Reaktor-Behälter 3b herausgeführt sind und zur elektrischen Beheizung des Katalysator-Elements 23b mit einer nicht näher dargestellten Spannungsquelle verbindbar sind. Im Bereich des Zuführungs-Abschnitts 29 ist weiterhin ein erstes Kühl-Element 31 angeordnet, das dem Katalysator-Element 23b in Einström-Richtung 16 nachgeordnet ist. Das erste Kühl-Element 31 ist als Wasser-Rohrleitung ausgebildet und umgibt den Reaktor-Behälter 3b spulenförmig. Zur Überwachung des Katalysator-Elements 23b weist der Reaktor-Behälter 3b ein Schauglas 32 auf, das im Bereich des Katalysator-Elements 23b angeordnet ist.

Dem Zuführungs-Abschnitt 29 ist in Einström-Richtung 16 ein Reaktions-Abschnitt 33 nachgeordnet. Der Reaktions-Abschnitt 33 des Reaktor-Behälters 3b weist eine weitere Gas-Zuführ-Leitung 34 ( $\text{SiH}_4$ ,  $\text{H}_2$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{He}$ ) auf, die seitlich in den Reaktor-Behälter 3b mündet. Der Gas-Zuführ-Leitung 34 ist in Einström-Richtung 16 die Heiz-Vorrichtung 17b zur Beheizung der Reaktions-Kammer 6b im Bereich des Reaktions-Abschnitts 33 nachgeordnet. Der Abstand des Katalysator-Elements 23b zu der Heiz-Vorrichtung 17b beträgt zwischen 1 mm und 500 mm, insbesondere zwischen 5 mm und 200 mm, und insbesondere zwischen 10 mm und 100 mm.

Dem Reaktions-Abschnitt 33 ist in Einström-Richtung 16 ein Abführungs-Abschnitt 35 nachgeordnet, der von einem zweiten Kühl-Element 36 umgeben ist. Das zweite Kühl-Element 36 ist ebenfalls als Wasser-Rohrleitung ausgebildet und umgibt den Abführungs-Abschnitt 35 des Re-

aktor-Behälters 3b spulenförmig. Dem Abführungs-Abschnitt 35 schließt sich die Gas-Abführ-Leitung 15b an, die in eine Entgasungs-Vorrichtung 37 mündet. Die Entgasungs-Vorrichtung 37 dient zum Abtrennen des erzeugten pulverförmigen Siliziums von dem Restgas. Zum Abtrennen und  
5 Abführen des Restgases sind Filter-Elemente 38 und eine Restgas-Abführ-Leitung 39 vorgesehen. Zum Austragen des abgetrennten Siliziums ist weiterhin ein Ventil 40 vorgesehen.

Nachfolgend wird die Funktionsweise des Reaktors 1b näher beschrieben.  
10 Das Silizium enthaltende Gas 2 und das Hilfgas 14 wird mittels der Gas-Zuführ-Leitung 12b und der Hilfgas-Zuführ-Leitung 13b in den Zuführungs-Abschnitt 29 des Reaktor-Behälters 3b eingeleitet, wobei das Hilfgas 14 entlang der Innen-Wand 4b strömt. Das Gas 2 trifft auf das elektrisch beheizte Katalysator-Element 23b, wo es in einen aktivierten  
15 Zustand übergeht. Ein thermisches Zersetzen des Silizium enthaltenden Gases 2 findet in diesem Teil der Reaktions-Kammer 6b, das heißt im Zuführungs-Abschnitt 29, im Wesentlichen nicht statt. Mittels des ersten Kühl-Elements 31 wird der Zuführungs-Abschnitt 29 gekühlt und von dem nachgeordneten Reaktions-Abschnitt 33 im Wesentlichen thermisch ent-  
20 koppelt. Die mittlere Temperatur des Gases 2 beträgt im Bereich der Reaktor-Kammer 6b weniger als 800°C, insbesondere weniger als 650°C, und insbesondere weniger als 500°C.

Das einen aktivierten Zustand aufweisende Gas 2 wird mittels der weiteren  
25 Gas-Zuführ-Leitung 34 mit weiterem Silizium enthaltenden Gas 2 vermischt. Dieses im Reaktions-Abschnitt 33 zugeführte Gas 2 befindet sich zunächst in einem nicht aktivierten Zustand. Die Heiz-Vorrichtung 17b weist eine Temperatur von über 600°C, insbesondere von über 700°C, und insbesondere von über 800°C auf. Dadurch, dass das Silizium enthaltende

Gas 2 sich teilweise in einem aktivierten Zustand befindet, setzt aufgrund dieser Temperatur das thermische Zersetzen des Gases 2 ein, wobei die thermische Zersetzung in Folge des mittels des Katalysator-Elements 23b erzeugten aktivierten Zustandes schneller und bei einer niedrigeren Temperatur erfolgt, als bei herkömmlichen Reaktoren.

Das abgeschiedene Silizium und das Restgas werden über den Abführungs-Abschnitt 35 und die Gas-Abführ-Leitung 15b in die Entgasungs- und Verdichtungs-Vorrichtung 37 eingeleitet, wo das pulverförmige Silizium von dem Restgas getrennt wird. Mittels des zweiten Kühl-Elements 36 wird das pulverförmige Silizium und das Restgas vor dem Eintritt in die Entgasungs- und Verdichtungs-Vorrichtung 37 gekühlt.

Dadurch, dass das Katalysator-Element 23b in dem gekühlten Zuführungs-Abschnitt 29 angeordnet und von der Heiz-Vorrichtung 17b beabstandet ist, wird ein Kontakt des Katalysator-Elements 23b mit abgeschiedenem pulverförmigen Silizium vermieden, so dass die Stabilität und Aktivität des Katalysator-Elements 23b für einen deutlich längeren Zeitraum erhalten bleibt, als bei einer Anordnung des Katalysator-Elements 23b unmittelbar im Bereich der Heiz-Vorrichtung 17b. Durch das Überführen eines Teils des Silizium enthaltenden Gases 2 in einen aktivierten Zustand mittels des Katalysator-Elements 23b wird das Abscheiden von pulverförmigem Silizium aus der Gasphase beschleunigt, so dass die Raum-Zeit-Ausbeute des Reaktors 1b und somit die Leistung des Reaktors 1b erhöht wird. Dadurch, dass die thermische Zersetzung bereits bei einer Temperatur stattfindet, wird eine Energieeinsparung erzielt und der Wirkungsgrad des Reaktors 1b verbessert. Ferner wird die Ablagerung von Silizium an der Innen-Wand 4b des Reaktor-Behälters 3b reduziert.



In weiteren Ausführungsbeispielen kann der Gas-Zuführ-Leitung 34 eine weitere Hilfsgas-Zuführ-Leitung zugeordnet sein. Alternativ kann die zweite Gas-Zuführ-Leitung 34 auch entfallen und das Silizium enthaltende Gas 2 vollständig mittels der ersten Gas-Zuführ-Leitung 12b eingeleitet werden. Prinzipiell können auch mehrere verschiedene Silizium enthaltende Gase 2 und mehrere verschiedene Hilfsgase 14 verwendet werden.

Weiterhin können in allen Ausführungsbeispielen die Gas-Zuführ-Leitungen mit einer zusätzlichen Kühlung ausgestattet sein, insbesondere mit einer Wasserkühlung. Die Gas-Zuführ-Leitungen können als Rohr oder als Düse, insbesondere als Einstoffdüse oder als Mehrstoffdüse, ausgebildet sein. Vorteilhaft ist eine Ausbildung als Zweistoffdüse, wobei das Silizium enthaltende Gas bevorzugt innen geführt wird.

Das Katalysator-Element kann prinzipiell beliebig zweidimensional oder dreidimensional ausgebildet sein, sofern es gasdurchlässig ist. Beispielsweise kann das Katalysator-Element als Gitter, als Rohr, als Topf oder als Halbkugel ausgebildet sein. Weiterhin ist es möglich, dass mehrere Katalysator-Elemente übereinander, nacheinander und/oder nebeneinander angeordnet sind, wobei jedes Katalysator-Element mit einer eigenen Spannungsquelle verbunden sein kann, so dass die Katalysator-Elemente mit unterschiedlichen oder identischen Temperaturen betrieben werden können. Weiterhin kann das Katalysator-Element als Monolith mit einer Wabenstruktur ausgebildet sein, wobei das Silizium enthaltende Gas mit oder ohne dem Hilfsgas durch die Wabenstruktur strömt. Vorteilhaft ist auch eine Ausbildung des Katalysator-Elements als Lochplatte oder poröse Platte, so dass ein möglichst inniger Kontakt zwischen dem Silizium enthaltenden Gas und dem Katalysator-Element erzielt wird.

Weiterhin kann das Katalysator-Element mit der Gas-Zuführ-Leitung bündig abschließen oder innerhalb der Gas-Zuführ-Leitung, insbesondere 1 mm bis 100 mm, insbesondere 2 mm bis 80 mm, und insbesondere 5 mm bis 50 mm innerhalb der Gas-Zuführ-Leitung, angeordnet sein.

5

Das erfindungsgemäße Verfahren kann so betrieben werden, dass die Silizium-Teilchen einen mittleren Durchmesser von 0,1  $\mu\text{m}$  bis 20  $\mu\text{m}$ , insbesondere von 2  $\mu\text{m}$  bis 5  $\mu\text{m}$  aufweisen. Das Verfahren kann jedoch auch anders gesteuert werden, so dass Silizium-Teilchen mit einem größeren

10 Durchmesser, beispielsweise von 5  $\mu\text{m}$  bis 200  $\mu\text{m}$ , insbesondere von 20  $\mu\text{m}$  bis 120  $\mu\text{m}$  erzeugt werden. Hierbei handelt es sich um zwei voneinander verschiedene Möglichkeiten, das erfindungsgemäße Verfahren zu betreiben.

15 Weitere Ausführungsbeispiele des Reaktors können um 180 ° gedreht sein, sodass die Gas-Zuführ-Leitung und die Hilfsgas-Zuführ-Leitung im Boden-Abschnitt und die Gas-Abführ-Leitung im Deckel-Abschnitt angeordnet sind. Die Einström-Richtung des Silizium enthaltenden Gases und des

20 Hilfsgases ist bei diesen Ausführungsbeispielen entgegen die Schwerkraft gerichtet. Dadurch, dass die Einström-Richtung der Gas-Zuführ-Leitung entgegen die Schwerkraft gerichtet ist, muss das Einleiten des Gases mit einer Einström-Geschwindigkeit derart erfolgen, dass die Schwerkraft auf das Gas überwunden wird. Durch die Einstellung der Einström-

25 Geschwindigkeit ist die Verweildauer des Gases und die Konzentration des Gases innerhalb des Reaktions-Kammer einstellbar. Hinsichtlich des weiteren Aufbaus und der Funktionsweise wird auf die vorangegangenen Ausführungsbeispiele verwiesen.

## Patentansprüche

1. Reaktor (1; 1a; 1b) zur Zersetzung eines Silizium enthaltenden Gases  
5 (2), umfassend
- a. einen Reaktor-Behälter (3; 3b) mit
    - i. einer von einer Innen-Wand (4; 4b) umschlossenen Reaktions-Kammer (6; 6b) zur Aufnahme eines Silizium enthaltenden Gases (2), und
    - 10 ii. mindestens einer Gas-Zuführ-Leitung (12; 12b) zur Zuführung des Gases (2) in die Reaktions-Kammer (6; 6b),
  - b. mindestens eine außerhalb der Reaktions-Kammer (6; 6b) angeordnete Heiz-Vorrichtung (17; 17b) zur Beheizung der Reaktions-Kammer (6; 6b), und
  - 15 c. mindestens ein gasdurchlässiges Katalysator-Element (23; 23a; 23b), das innerhalb der Reaktions-Kammer (6; 6b) zwischen der mindestens einen Gas-Zuführ-Leitung (12; 12b) und der Innen-Wand (4; 4b) des Reaktor-Behälters (3; 3b) angeordnet ist und mindestens ein Material aufweist, das als Katalysator wirkend die Zer-  
20 setzung des Gases (2) beschleunigt.
2. Reaktor nach Anspruch 1, **dadurch gekennzeichnet, dass** das mindestens eine Katalysator-Element (23; 23a; 23b) elektrisch beheizbar ist.
- 25 3. Reaktor nach Anspruch 1 oder 2, **dadurch gekennzeichnet, dass** das mindestens eine Katalysator-Element (23; 23a; 23b) aus mindestens einem Material besteht, das bis zu einer Temperatur von mindestens 1200° C, insbesondere von mindestens 1600 °C und insbesondere von mindestens 2000° C temperaturbeständig ist.

4. Reaktor nach Anspruch 1 bis 3, **dadurch gekennzeichnet, dass** das mindestens eine Katalysator-Element (23; 23a; 23b) aus einem Metall, insbesondere mindestens eines der Elemente Molybdän, Tantal, Niob und Wolfram enthaltend, besteht.
- 5
5. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 4, **dadurch gekennzeichnet, dass** sich das mindestens eine Katalysator-Element (23) zumindest vollflächig entlang eines Abschnitts (7) des Reaktor-Behälters (3) erstreckt, der durch die mindestens eine Heiz-Vorrichtung (17) beheizt wird.
- 10
6. Reaktor nach Anspruch 5, **dadurch gekennzeichnet, dass** zwischen der mindestens einen Gas-Zuführ-Leitung (12) und dem mindestens einen Katalysator-Element (23) mindestens eine Hilfsgas-Zuführ-Leitung (13) zur Zuführung eines Hilfsgases (14) angeordnet ist.
- 15
7. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 5, **dadurch gekennzeichnet, dass** das mindestens eine Katalysator-Element (23a) derart ausgebildet ist, dass es die mindestens eine Gas-Zuführ-Leitung (12) umschließt.
- 20
8. Reaktor nach Anspruch 7, **dadurch gekennzeichnet, dass** zwischen der Innen-Wand (4) und dem mindestens einen Katalysator-Element (23a) mindestens eine Hilfsgas-Zuführ-Leitung (13) zur Zuführung eines Hilfsgases (14) angeordnet ist.
- 25
9. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 8, **dadurch gekennzeichnet, dass** zwischen dem mindestens einen Katalysator-Element (23b) und der Heiz-Vorrichtung (17b) mindestens ein Kühl-Element (31) angeordnet ist.

10. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 9, **dadurch gekennzeichnet**,  
**dass** das mindestens eine Katalysator-Element (23b) entlang einer Ein-  
ström-Richtung (16) des Silizium enthaltenden Gases (2) einen Abstand  
im Bereich von 1 mm bis 500 mm, insbesondere von 5 mm bis 200  
5 mm, und insbesondere von 10 mm bis 100 mm zu der Heiz-Vorrichtung  
(17b) aufweist.
11. Reaktor nach einem der Ansprüche 1 bis 10, **dadurch gekennzeichnet**,  
**dass** der Reaktor (1b) derart ausgebildet ist, dass das Silizium enthal-  
10 tende Gas (2) im Bereich der Reaktions-Kammer (6; 6b) eine mittlere  
Temperatur von weniger als 800°C, insbesondere von weniger als  
650°C, und insbesondere von weniger als 500°C aufweist.
12. Reaktor gemäß einem der vorangehenden Ansprüche, **dadurch ge-**  
15 **kennzeichnet, dass** zwischen dem mindestens einen Katalysator-  
Element (23b) und der mindestens einen Heiz-Vorrichtung (17b) eine  
weitere Gas-Zuführ-Leitung (34) zur Zuführung eines Silizium enthal-  
tenden Gases angeordnet ist.
- 20 13. Verfahren zur Herstellung von Silizium, das als Ausgangsstoff für die  
Fertigung von polykristallinen Siliziumblöcken oder Siliziumeinkristal-  
len für die Photovoltaik geeignet ist, umfassend die folgenden Schritte:  
a. Bereitstellen eines Reaktors (1; 1a; 1b) zur Zersetzung eines Silizi-  
um enthaltenden Gases (2), umfassend  
25 i. einen Reaktor-Behälter (3; 3b) mit einer von einer Innen-Wand  
(4; 4b) umschlossenen Reaktions-Kammer (6; 6b) zur Aufnahme  
eines Silizium enthaltenden Gases (2), und mindestens einer  
Gas-Zuführ-Leitung (12; 12b) zur Zuführung des Gases (2) in  
die Reaktions-Kammer (6; 6b),

- ii. mindestens eine außerhalb der Reaktions-Kammer (6; 6b) angeordnete Heiz-Vorrichtung (17; 17b) zur Beheizung der Reaktions-Kammer (6; 6b), und
  - iii. mindestens ein gasdurchlässiges Katalysator-Element (23; 23a; 23b), das innerhalb der Reaktions-Kammer (6; 6b) zwischen der mindestens einen Gas-Zuführ-Leitung (12; 12b) und der Innen-Wand (4; 4b) des Reaktor-Behälters (3; 3b) angeordnet ist und mindestens ein Material aufweist, das als Katalysator wirkend die Zersetzung des Gases (2) beschleunigt,
- 5
- b. Zuführen des Silizium enthaltenden Gases (2) in die Reaktions-Kammer (6; 6b) derart, dass zumindest ein Teil des Gases (2) das mindestens eine Katalysator-Element (23; 23a; 23b) passiert,
  - c. thermisches Zersetzen des zugeführten Gases (2) unter Bildung von Silizium, und
- 10
- d. Abtrennen des gebildeten Siliziums von dem Gas (2).
- 15

14. Verfahren zur Herstellung von Silizium nach Anspruch 13, **dadurch gekennzeichnet, dass** das mindestens eine Katalysator-Element (23; 23a; 23b) mindestens bis zu einer Temperatur ( $T_G$ ) beheizt wird, die im Vergleich zu einer Temperatur ( $T_I$ ) der Innen-Wand (4, 4b) größer ist.

20

15. Verfahren zur Herstellung von Silizium nach Anspruch 13 oder 14, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Silizium enthaltende Gas (2) nach dem Passieren des mindestens einen Katalysator-Elements (23b) und vor dem thermischen Zersetzen mittels mindestens einem Kühl-Element (31) gekühlt wird.

25

16. Verfahren zur Herstellung von Silizium nach einem der Ansprüche 13 bis 15, **dadurch gekennzeichnet, dass** das Silizium enthaltende Gas

(2) beim Passieren des mindestens einen Katalysator-Elements (23b) eine mittlere Temperatur von weniger als 800°C, insbesondere von weniger als 650°C, und insbesondere von weniger als 500°C aufweist.

- 5 17. Verfahren nach Anspruch 13, **dadurch gekennzeichnet, dass** zwischen dem mindestens einen Katalysator-Element (23b) und der mindestens einen Heiz-Vorrichtung (17b) erneut Silizium enthaltendes Gas (2) dem Reaktor-Behälter (3b) zugeführt wird.
- 10 18. Verwendung des gemäß einem der Ansprüche 13 bis 17 hergestellten Siliziums zur Herstellung von Siliziumschmelze für die Fertigung von polykristallinen Siliziumblöcken oder Siliziumeinkristallen für die Photovoltaik.
- 15 19. Silizium, hergestellt nach dem Verfahren gemäß einem der Ansprüche 13 bis 17, **dadurch gekennzeichnet, dass**
- a. das Silizium in Form eines Pulvers oder eines verdichteten Pulvers vorliegt, und
  - b. das Pulver Silizium-Teilchen mit einem mittleren Durchmesser von
- 20 0,1 µm bis 20 µm, insbesondere von 2 µm bis 5 µm, aufweist.

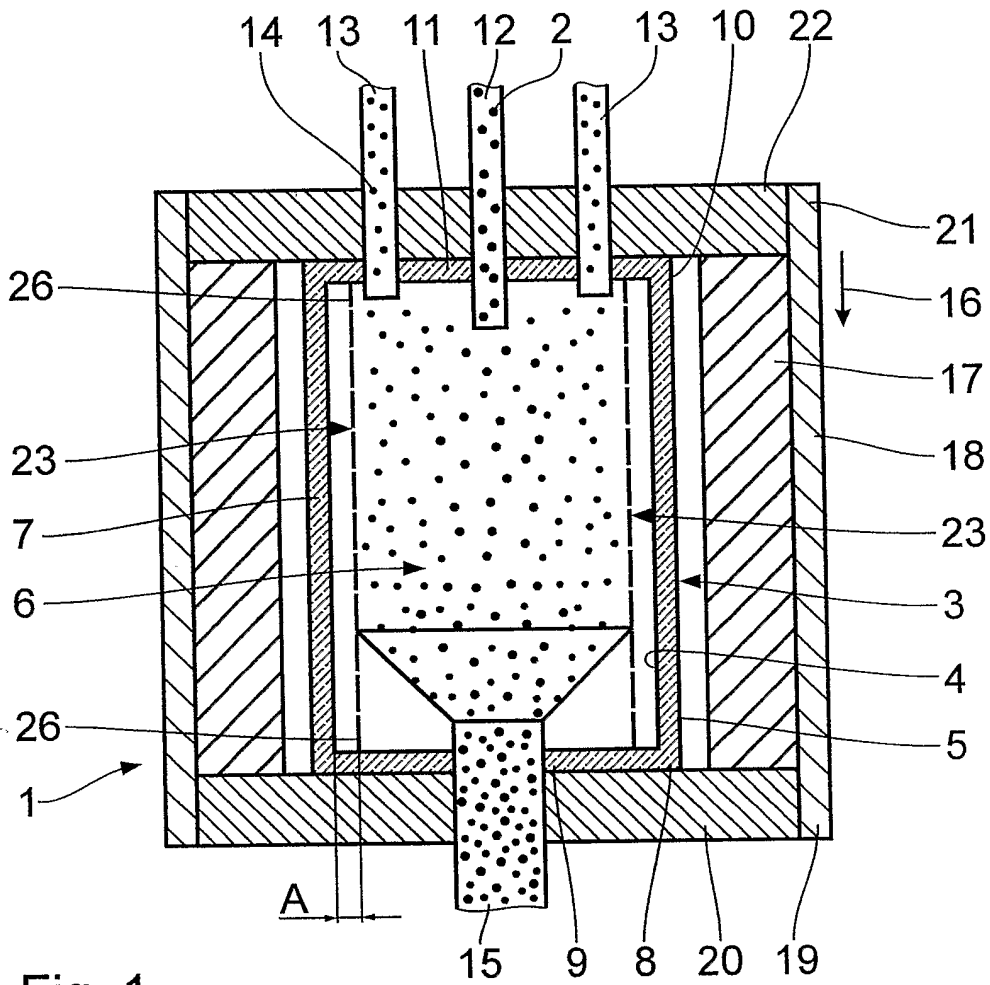


Fig. 1

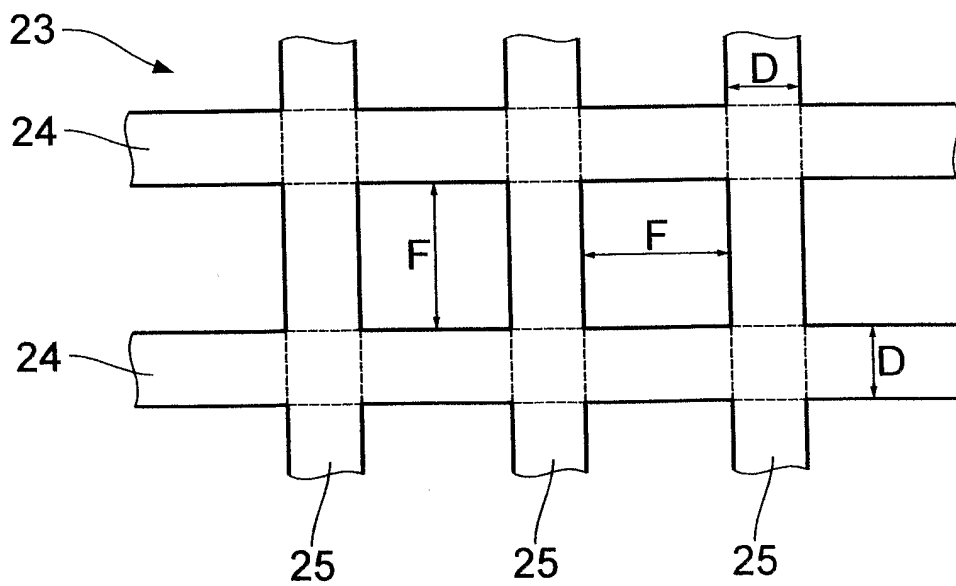


Fig. 2



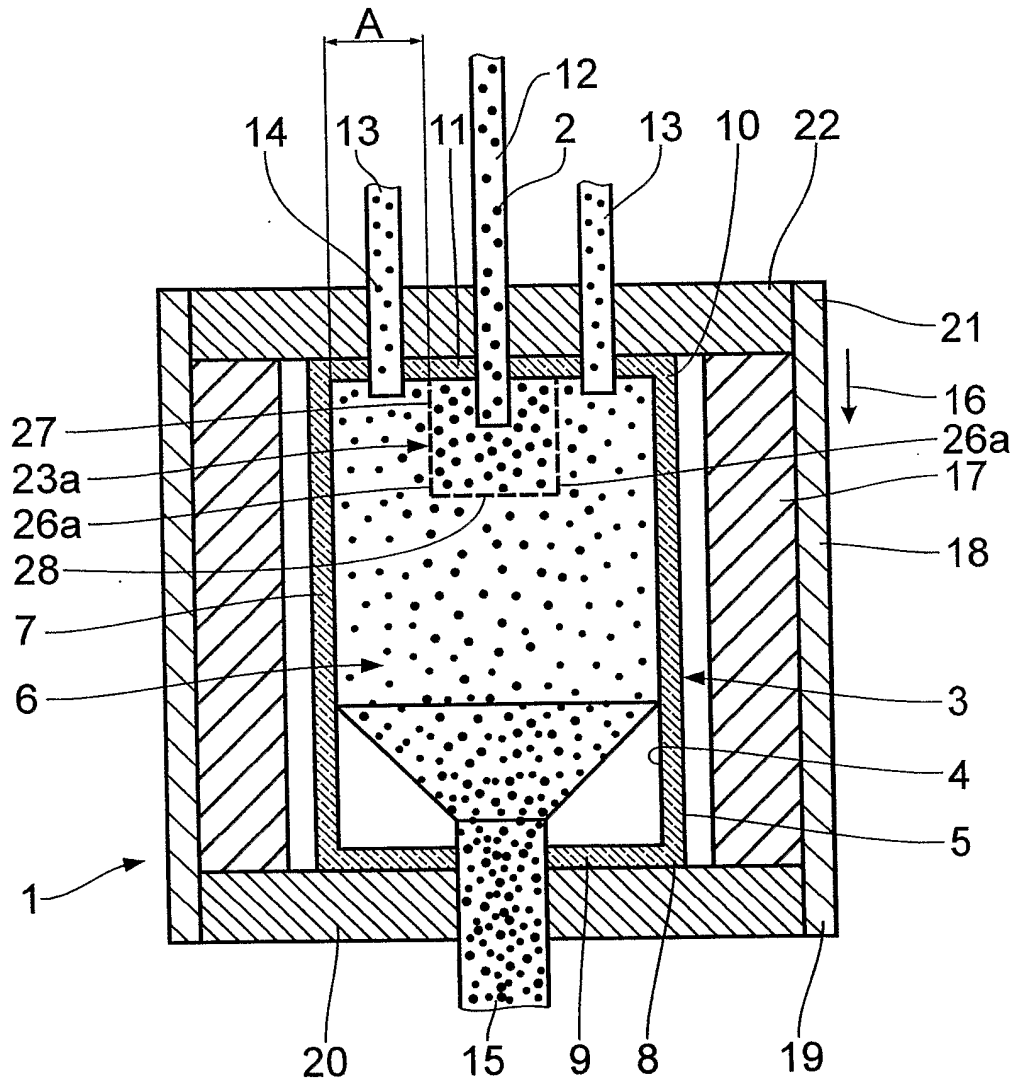


Fig. 3

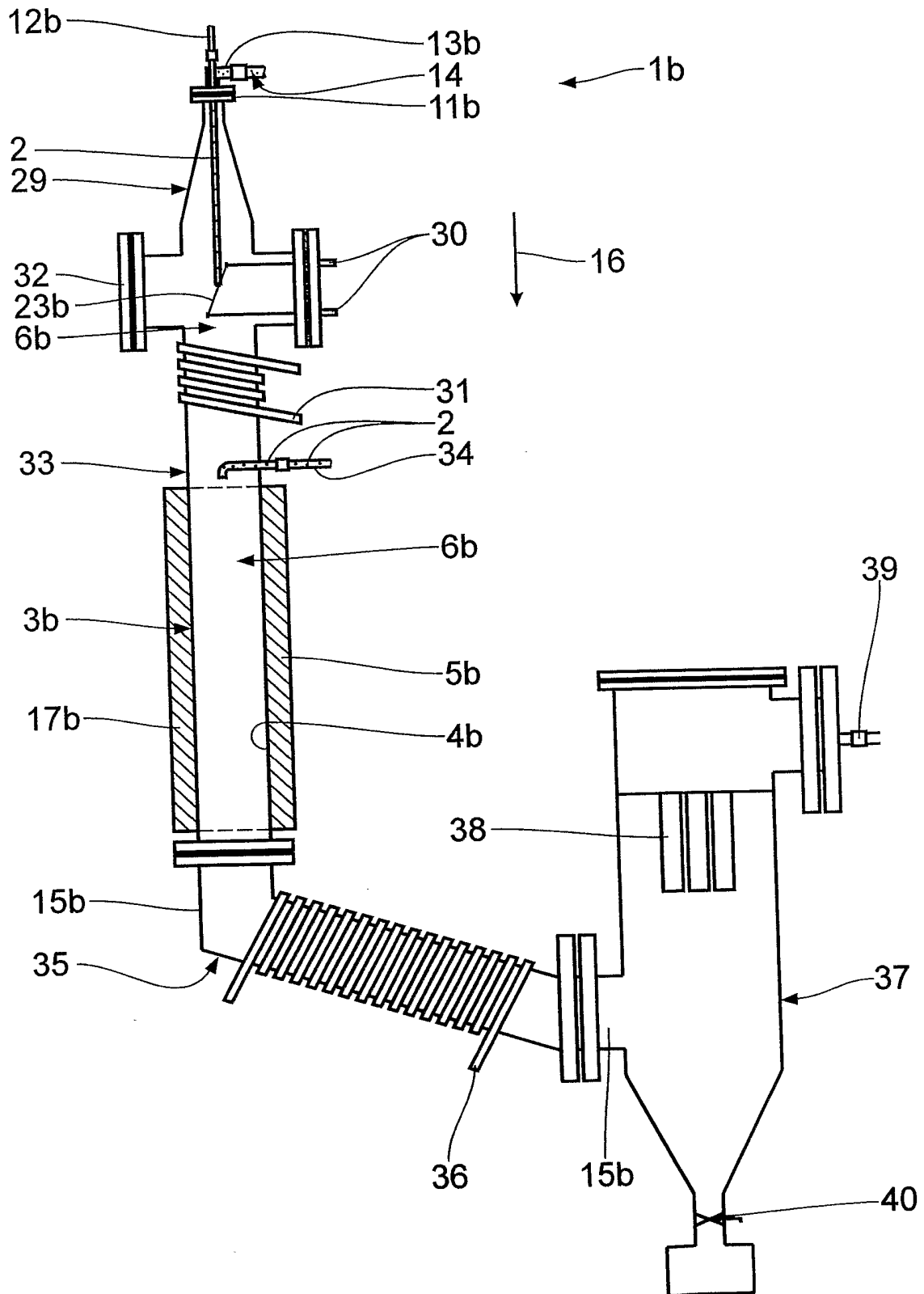


Fig. 4

BESTÄTIGUNGSKOPIE

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No  
PCT/EP2006/001945

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

INV. C01B33/02 C01B33/027 B01J19/24 B01J15/00

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)

C01B B01J

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

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

EPO-Internal, PAJ, WPI Data, CHEM ABS Data

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 4 354 987 A (IYA ET AL) 19 October 1982 (1982-10-19) column 1, lines 55-60 column 3, lines 32-44 -----	18, 19
X	US 4 661 335 A (BOUDOT ET AL) 28 April 1987 (1987-04-28)	19
A	claims 1,4 -----	18
A	US 4 314 525 A (HSU ET AL) 9 February 1982 (1982-02-09) column 6, line 18 - column 7, line 48; figure 1 -----	1-19
A	US 2003/175196 A1 (BLACKWELL BENNY E ET AL) 18 September 2003 (2003-09-18) paragraphs [0033], [0035]; figures 1,3 -----	1-12

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 document 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

17 May 2006

Date of mailing of the international search report

29/05/2006

Name and mailing address of the ISA/

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2  
NL - 2280 HV Rijswijk  
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,  
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Werner, H

# INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International application No

PCT/EP2006/001945

Patent document cited in search report	Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 4354987	A	19-10-1982 CA 1163065 A1	06-03-1984
US 4661335	A	28-04-1987 CA 1212520 A1 DE 3362428 D1 EP 0100268 A1 FR 2530607 A1 JP 59045918 A	14-10-1986 10-04-1986 08-02-1984 27-01-1984 15-03-1984
US 4314525	A	09-02-1982 NONE	
US 2003175196	A1	18-09-2003 AU 2003222264 A1 CN 1652868 A EP 1480740 A1 JP 2005519832 T WO 03078054 A1	29-09-2003 10-08-2005 01-12-2004 07-07-2005 25-09-2003

# INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

internationales Aktenzeichen

PCT/EP2006/001945

<b>A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES</b> INV. C01B33/02 C01B33/027 B01J19/24 B01J15/00		
Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPC) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPC		
<b>B. RECHERCHIERTE GEBIETE</b> Recherchierte Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole) C01B B01J		
Recherchierte, aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen		
Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe) EPO-Internal, PAJ, WPI Data, CHEM ABS Data		
<b>C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN</b>		
Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 4 354 987 A (IYA ET AL) 19. Oktober 1982 (1982-10-19) Spalte 1, Zeilen 55-60 Spalte 3, Zeilen 32-44 -----	18, 19
X	US 4 661 335 A (BOUDOT ET AL) 28. April 1987 (1987-04-28)	19
A	Ansprüche 1,4 -----	18
A	US 4 314 525 A (HSU ET AL) 9. Februar 1982 (1982-02-09) Spalte 6, Zeile 18 - Spalte 7, Zeile 48; Abbildung 1 -----	1-19
A	US 2003/175196 A1 (BLACKWELL BENNY E ET AL) 18. September 2003 (2003-09-18) Absätze [0033], [0035]; Abbildungen 1,3 -----	1-12
<input type="checkbox"/> Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen <input checked="" type="checkbox"/> Siehe Anhang Patentfamilie		
* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen : *A* Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist *E* älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist *L* Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt) *O* Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht *P* Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist *T* Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist *X* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden *Y* Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderischer Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist *&* Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist		
Datum des Abschlusses der internationalen Recherche 17. Mai 2006		Absenddatum des internationalen Recherchenberichts 29/05/2006
Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2 NL - 2280 HV Rijswijk Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl, Fax: (+31-70) 340-3016		Bevollmächtigter Bediensteter Werner, H

**INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT**

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

Internationales Aktenzeichen

PCT/EP2006/001945

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument		Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie		Datum der Veröffentlichung
US 4354987	A	19-10-1982	CA	1163065 A1	06-03-1984
US 4661335	A	28-04-1987	CA	1212520 A1	14-10-1986
			DE	3362428 D1	10-04-1986
			EP	0100268 A1	08-02-1984
			FR	2530607 A1	27-01-1984
			JP	59045918 A	15-03-1984
US 4314525	A	09-02-1982	KEINE		
US 2003175196	A1	18-09-2003	AU	2003222264 A1	29-09-2003
			CN	.1652868 A	10-08-2005
			EP	1480740 A1	01-12-2004
			JP	2005519832 T	07-07-2005
			WO	03078054 A1	25-09-2003