

(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 8 月 2 日(02.08.2012)



(10) 国際公開番号
WO 2012/101969 A1

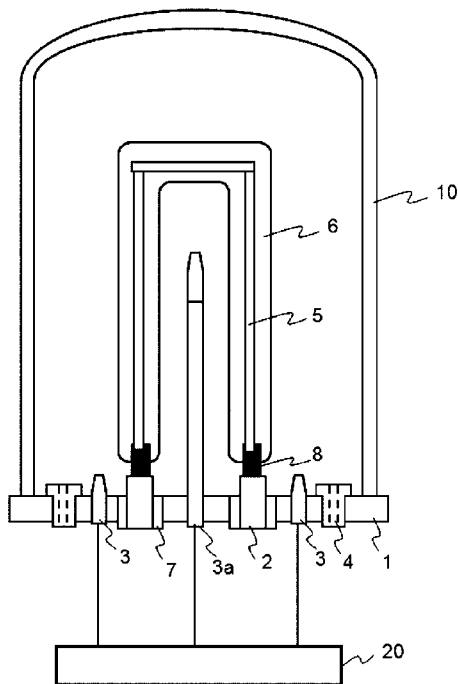
- (51) 国際特許分類:
C01B 33/035 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/000157
- (22) 国際出願日: 2012 年 1 月 12 日(12.01.2012)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2011-011744 2011 年 1 月 24 日(24.01.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 信越化学工業株式会社 (Shin-Etsu Chemical Co., Ltd.) [JP/JP]; 〒1000004 東京都千代田区大手町二丁目 6 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): 柵津 茂義 (NETSU, Shigeyoshi) [JP/JP]; 〒9428601 新潟県上越市頸城区西福島 2 8 - 1 信越化学工業株式会社 合成技術研究所内 Niigata (JP). 黒澤 靖志 (KUROSAWA, Yasushi) [JP/JP]; 〒9428601 新潟県上越市頸城区西福島 2 8 - 1 信越化学工業株式会社 合成技術研究所内 Niigata (JP).
- (74) 代理人: 大野 聖二, 外(OHNO, Seiji et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内 1 丁目 6 番 5 号 丸の内北口ビル 2 1 階 大野総合法律事務所 Tokyo (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, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV,

[続葉有]

(54) Title: REACTOR FOR MANUFACTURING POLYCRYSTALLINE SILICON AND METHOD FOR MANUFACTURING POLYCRYSTALLINE SILICON

(54) 発明の名称: 多結晶シリコン製造用反応炉および多結晶シリコンの製造方法

[図1]
100



(57) Abstract: At least one nozzle (3a) for supplying source gas and at least one pair of core wire holders (8) comprising a silicon core wire (5) are disposed on a bottom plate (1), a gas outlet part of the nozzle (3a) being disposed at a certain height from the upper end of the core wire holders (8). For example, at a point in time when the diameter of a silicon rod exceeds approximately 80 mm after a polycrystalline silicon precipitation reaction has started, the gas composition supplied through the nozzle (3a) is switched, and gas having a relatively low temperature is supplied through the nozzle (3a). By efficiently cooling an area where the temperature of gas easily rises and gas easily accumulates, the temperature distribution within a reactor may be made uniform, and the production of silicon powder and heavy metal pollution caused by a metal chloride is inhibited.

(57) 要約: 底板 1 に、シリコン芯線 5 を保持する少なくとも一対の芯線ホルダ 8 と、原料ガスを供給するノズル 3 a が少なくとも 1 つ設けられており、このノズル 3 a のガス吹出部が、芯線ホルダ 8 の上端を基準として所定の高さに設けられている。例えば、多結晶シリコンの析出反応開始後、シリコン棒の径がおよそ 80 mm を超える程度になった時点で、ノズル 3 a から供給するガス組成の切り替えを行い、相対的に低い温度のガスをノズル 3 a から供給する。ガス温度が高くなり易くガス滞留も生じ易い領域を効率的に冷却することで、炉内の温度分布の均一化を図り、金属塩化物起因の重金属汚染やシリコン粉の発生を抑制する。



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, RW, 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).

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：

多結晶シリコン製造用反応炉および多結晶シリコンの製造方法

技術分野

[0001] 本発明は多結晶シリコンの製造技術に関し、より詳細には、析出反応時に発生する金属塩化物やシリコン粉による金属汚染や形状異常を効果的に抑制する技術に関する。

背景技術

[0002] 多結晶シリコンは、半導体デバイス製造用の単結晶シリコン基板や太陽電池製造用基板の原料とされる。多結晶シリコンの製造方法としては、シーメンス法が知られている。シーメンス法は、クロロシランを含む原料ガスを加熱されたシリコン芯線に接触させ、これにより、該シリコン芯線の表面に多結晶シリコンをCVD法により気相成長させてシリコン棒として得る方法である。

[0003] シーメンス法により多結晶シリコンを気相成長する際、気相成長装置の反応炉内に、鉛直方向2本と水平方向1本のシリコン芯線を鳥居型に組み立てる。そして、この鳥居型のシリコン芯線の両端を、一对の芯線ホルダを介して反応炉底板上に配置した一对の金属電極に固定する。反応を起こさせる原料ガスの供給口及び反応排ガスの排気口も、この底板上に配置される。このような構成は、例えば、特公昭37-18861号公報（特許文献1）に開示されている。

[0004] 一般に、反応炉内には、底板上に配置した一对の金属電極に固定された鳥居型のシリコン芯線が数十個設けられ、多重環式に配置される。また、底板には、原料ガス供給用のノズル及び反応ガスの排気口も適当数設けられるが、これらは炉内のガス流れが最適となるように配置される。このような底板の構成は、例えば、特開2002-241120号公報（特許文献2）、特開2006-206387号公報（特許文献3）、特開2009-1078

８６号公報（特許文献４）に開示がされており、多結晶シリコン棒の水平断面方向の形状改善や表面での凸凹発生を抑制する手法についても言及されている。

[0005] シーメンス法により多結晶シリコンを析出させるには、シリコン芯線に電流を導通させ、シリコン芯線を 900°C 以上 1200°C 以下の温度範囲に加熱し、原料ガス（例えば、トリクロロシランと水素の混合ガス）を反応炉内に供給する。原料ガスの分解によりシリコン芯線上に多結晶シリコンが気相成長（析出）し、所望の直径の多結晶シリコン棒が逆Ｕ字状に形成される。通常は、シリコン芯線の反応炉内セットから多結晶シリコン棒の取出しまでがバッチ式に行われる。

[0006] ところで、クロロシランを原料ガスとして使用する場合、反応炉の構造材である金属とクロロシラン中の塩素分は反応し、反応炉内において金属塩化物が生成することが知られている。反応炉は１バッチ終了後に清掃されるが、一旦反応炉内に付着した金属塩化物は、この清掃においても完全には除去されず、反応炉内に微量の金属塩化物として残留することになる。

[0007] 金属塩化物は、一般に、純金属よりも昇華温度が低くガス化し易い。このため、多結晶シリコンの析出反応中に炉内ガス温度が一定温度以上になると、炉内の残留金属塩化物が昇華してガス化してしまう。このガス化した金属塩化物は多結晶シリコン内に取り込まれるため、多結晶シリコンの重金属汚染の原因となる。特に、炉内ガス温度が 350°C 以上となると、上記現象が顕著となる。

[0008] また、炉内ガス温度が一定温度以上になると、シランガスの熱分解反応により粉状のシリコンが発生する。このシリコン粉が反応炉内を浮遊して炉内壁や底板に接触すると重金属が付着し、その状態で多結晶シリコン棒の表面に付着した場合には、多結晶シリコン棒を重金属汚染させたり表面に突起を発生させるなどして多結晶シリコンの品質を悪化させてしまう。

[0009] さらに、多結晶シリコン棒の表面温度を一定温度以上の高温に維持しつつ析出反応を継続させると、析出反応工程の後期に多結晶シリコン棒の径が大

きくなってしまうことによる下記のような不都合も生じる。多結晶シリコンの生産性向上のためには、析出反応時の多結晶シリコン棒の表面温度をなるべく高くして反応速度を高めることが望ましい。一般に、析出反応時の多結晶シリコン棒の表面温度は900～1200℃程度であるが、このような比較的高温の状態では析出反応を継続してしまうと析出反応工程の後期に多結晶シリコン棒の径が大きくなってしまふ。かかる温度にある表面積が増大すると、炉内での対流伝熱や輻射伝熱が顕著になり、これにより炉内にガス滞留域や局部的な温度上昇域が発生し、シリコン粉の発生を助長させる結果ともなる。逆に、金属塩化物起因の重金属汚染やシリコン粉の発生を抑制するために析出反応時の多結晶シリコン棒の表面温度を低くしてしまうと、析出速度は低下して生産性も低下してしまう。

先行技術文献

特許文献

[0010] 特許文献1：特公昭37-18861号公報

特許文献2：特開2002-241120号公報

特許文献3：特開2006-206387号公報

特許文献4：特開2009-107886号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0011] 上述したとおり、従来の多結晶シリコンの製造技術においては、多結晶シリコンの析出速度を高めて生産性向上を図ろうとすると、金属塩化物に起因する重金属汚染やシリコン粉の発生による品質の悪化が助長され、逆に、金属塩化物起因の重金属汚染やシリコン粉の発生を抑制しようとする多結晶シリコンの生産性が低下せざるを得ないという問題があった。

[0012] 本発明者らはこれまで、金属塩化物起因の重金属汚染やシリコン粉の発生を抑制するための幾つかの試みを行ってきた。具体的には、(i) 炉内壁を冷却するための冷却水温度を低めにして炉内ガス温度を低下させる方法、(

i i) 多結晶シリコン棒の径の増大に伴って反応ガスの供給量を増やすことで多結晶シリコン棒の単位表面積当たりの原料ガス供給量を一定に保つ方法、(i i i) 反応温度を下げて析出させる方法、(i v) 原料ガス中のシラン濃度を下げる方法などである。

[0013] しかし、上記(i)および(i i)の方法は製造設備に新たな機能を付加する必要があり、多結晶シリコンの製造コスト上昇を招く。また、上記(i i i)および(i v)の方法も、多結晶シリコンの析出速度の低下などの理由により製造コスト上昇を招く。

[0014] 本発明は、上述したような問題に鑑みてなされたものであって、その目的とするところは、生産性を低下させることなく、金属塩化物起因の重金属汚染やシリコン粉の発生を抑制し得る技術を提供することにある。

課題を解決するための手段

[0015] 上述の課題を解決するために、本発明の多結晶シリコン製造用反応炉は、シーメンス法により多結晶シリコンを製造するための反応炉であって、該反応炉の底板には、シリコン芯線を保持する少なくとも一対の芯線ホルダと、原料ガスを供給する複数のノズルを備え、前記複数の原料ガス供給ノズルの一部のガス吹出部は前記芯線ホルダの上端を基準として所定の高さ($H > 0$)に設けられており、残りの原料ガス供給ノズルのガス吹出部は前記芯線ホルダの上端よりも下方に設けられていることを特徴とする。

[0016] また、本発明の他の態様の多結晶シリコン製造用反応炉は、シーメンス法により多結晶シリコンを製造するための反応炉であって、該反応炉の底板には、シリコン芯線を保持する少なくとも一対の芯線ホルダと、原料ガスを供給する複数のノズルを備え、前記複数の原料ガス供給ノズルのガス吹出部は前記芯線ホルダの上端よりも下方に設けられており、さらに、前記複数の原料ガス供給ノズルの一部のガス吹出部を前記芯線ホルダの上端を基準として所定の高さ($H > 0$)に調整する制御部を備えていることを特徴とする。

[0017] 例えば、前記ガス吹出部の所定の高さは、前記シリコン芯線の垂直方向の長さの $1/3$ を超える値、あるいは、前記芯線ホルダの上端を基準として5

0 cmを超える値である。

[0018] 本発明の多結晶シリコン製造用反応炉は、前記所定の高さにあるガス吹出部と他のガス吹出部に、トリクロロシラン／水素比の異なるガスを供給する原料ガス供給システムを備えている態様としてもよい。

[0019] 好ましくは、前記原料ガス供給システムは、前記所定の高さにあるガス吹出部に、前記他のガス吹出部よりも水素比の大きなガスを供給する。

[0020] さらに好ましくは、前記原料ガス供給システムは、前記水素比の大きなガスを100℃以下の温度で供給する。

[0021] 本発明の多結晶シリコンの製造方法は、上述の本発明の多結晶シリコン製造用反応炉を用い、炉内温度が均一になるように前記所定の高さを設定して多結晶シリコンを析出させる。

発明の効果

[0022] 本発明が備える原料ガス供給用ノズルによれば、炉内ガス温度の局所的な上昇を抑制することができる。また、シリコン棒の径が大きくなっても炉内上部から下部へのダウンフローを促進できる。

[0023] このため、反応炉内の平均ガス温度が下がるだけでなく、炉内でのガス滞留が抑制され、熱分解によるシリコン粉の生成を抑制できる。

[0024] このように、本発明は、生産性を低下させることなく、金属塩化物起因の重金属汚染やシリコン粉の発生を抑制し得る多結晶シリコンの製造技術を提供する。

図面の簡単な説明

[0025] [図1]本発明の多結晶シリコン製造用反応炉の構成例を示す概略断面図である。

[図2]本発明の多結晶シリコン製造用反応炉の他の構成例を示す概略断面図である。

[図3]本発明の多結晶シリコン製造用反応炉の他の構成例を示す概略断面図である。

[図4]従来型の多結晶シリコン製造用反応炉の構成例を示す概略断面図である。

。

発明を実施するための形態

[0026] 以下に、図面を参照して本発明の実施の形態について説明する。

[0027] 図1～図3は何れも本発明の多結晶シリコン製造用反応炉の構成例を示す概略断面図で、図4は後述するノズル3のみで原料ガスを供給する、従来型の多結晶シリコン製造用反応炉の構成例を示す概略断面図である。なお、これらの図において、同一の構成要素には同じ符号を付した。

[0028] 反応炉100は、底板1とベルジャ10により内部が密閉され、当該密閉空間内に鳥居型に組んだシリコン芯線5を配置させてこのシリコン芯線5の表面に多結晶シリコン6を析出させて多結晶シリコン棒が得られる。底板1には、鳥居型シリコン芯線5の両端から交流又は直流電流を通電させて芯線表面温度を900～1200℃に制御するための芯線ホルダ8、金属電極2、及び絶縁物7と、ベルジャ10内部に原料ガスを供給するためのノズル3および3aと、反応後のガスをベルジャ10外部に排出するための反応排ガス口4が設置されている。原料ガス供給ノズル3、3aからは、水素ガスとシリコン原料ガス（一般にはトリクロルシランガス）が供給される。なお、図中には、シリコン芯線5は一对のみ図示されているが、一般には複数対が配置される。

[0029] ノズル3、3aのガス吹出口からは、原料ガス供給システム20により、流速・流量が制御された原料ガスが供給される。図1および図2に示した態様の反応炉100は、底板1の上面近傍の上方に吹出口を有するノズル3のほか、芯線ホルダ8の上端を基準として所定の高さに吹出口が設けられているノズル3aを備えている。図1と図2に示した態様は、原料ガス供給ノズル3aの配置位置においてのみ構成が相違している。

[0030] ノズル3、3aは高温の反応炉内に設置されるから、その材質は高温下でも重金属汚染を発生させないセラミックス、例えば、窒化珪素やカーボンが望ましい。特に、炭素源を含まない窒化珪素は好適なノズル材料である。

[0031] なお、図3に示した態様の反応炉100のように、底板1の上面近傍の上

方に吹出口を有するノズル 3 のほか、制御部 9 により芯線ホルダ 8 の上端を基準として所定の高さに吹出口の位置調整が可能なノズル 3 a を備えている構成としてもよい。また、これらの図中には 3 つのノズルが図示されているが、ノズル数は 3 に限定されるものではない。図 3 では、原料ガス供給システム 20 の図示は省略した。

[0032] つまり、本発明に係る多結晶シリコン製造用反応炉の第 1 の態様のものは、シーメンス法により多結晶シリコンを製造するための反応炉 100 であって、反応炉 100 の底板 1 に、シリコン芯線 5 を保持する少なくとも一对の芯線ホルダ 8 と、原料ガスを供給するノズル 3 a が少なくとも 1 つ設けられており、このノズル 3 a のガス吹出部が、芯線ホルダ 8 の上端を基準として所定の高さに設けられている構成を有している。

[0033] また、本発明に係る多結晶シリコン製造用反応炉の第 2 の態様のものは、シーメンス法により多結晶シリコンを製造するための反応炉 100 であって、反応炉 100 の底板 1 に、シリコン芯線 5 を保持する少なくとも一对の芯線ホルダ 8 と、原料ガスを供給するノズル 3 a が少なくとも 1 つ設けられており、さらに、上記ノズル 3 a のガス吹出部を芯線ホルダ 8 の上端を基準として所定の高さに調整する制御部 9 を備える構成を有している。

[0034] 上記原料ガス供給ノズル 3 a のガス吹出部の「所定の高さ」(H) は後述の機能を得るため必ず正の値 ($H > 0$) であり、例えば、シリコン芯線 5 の垂直方向の長さ(高さ)の $1/3$ を超える値である。また、この「所定の高さ」は、例えば、50 cm を超える値である。

[0035] つまり、本発明の多結晶シリコン製造用反応炉は、ガス吹出口が上記「所定の高さ」にある乃至は位置調整されるノズル 3 a を備えている点において従来型のものと相違する。なお、本発明においてノズル 3 a のガス吹出部を上記「所定の高さ」としたのは、本発明者らが行った実験結果の検討によるものである。例えば、本発明者らの行った実験によれば、一般的な反応炉の場合、炉内の平均ガス温度に近くなる領域は、芯線ホルダ 8 の上端を基準として 50 cm を越える高さにある。

[0036] 既に説明したように、シリコン芯線5に多結晶シリコン6が析出してシリコン棒の径が大きくなると、シリコン棒相互間の輻射が顕著になる。反応炉内のガス温度は輻射により高まり、炉内で生成した金属塩化物が昇華してガス化する。特に、シリコン棒の最終直径として120mm程度を想定して設計されている反応炉において、反応工程終盤となりシリコン棒の直径がおよそ80mmを超えた環境下の炉内の平均ガス温度は350℃以上ともなるため、ガス化した金属塩化物が多結晶シリコンを重金属汚染させる原因となる。

[0037] 加えて、上記反応炉内でシリコン棒の直径がおよそ80mmを超える程度に大きくなると反応炉上部ガスの流れが悪くなり、ガスの滞留部が発生する傾向が大きくなる。さらに、シリコン棒間の輻射も顕著になるから、シリコン棒間に滞留するガスの温度が部分的に高まって当該領域での熱分解反応が盛んになってシリコン粉の発生が助長される。

[0038] なお、本発明者らの検討によれば、シリコン粉の発生は供給原料ガス中のクロロシラン濃度が高まると顕著となる。トリクロロシランを原料ガスとした場合、供給原料ガス中のトリクロロシランの濃度が25%以上になるとシリコン粉の発生が起こる。

[0039] 本発明では、上述の「所定の高さ」にある吹出口から原料ガスを供給するノズル3aを設けることで、炉内の中心に近い領域や上部領域のようなガス温度の上昇が起こり易い領域に、相対的に低い温度のガスを効率的に供給することで、炉内の温度分布の均一化を図り、生産性を低下させることなく金属塩化物起因の重金属汚染やシリコン粉の発生を抑制する。

[0040] 例えば、多結晶シリコンの析出反応開始後、シリコン棒の径が80mmを超えた時点で、ノズル3aから供給するガス組成の切り替えを行い、他のノズル3から供給されるガスとはトリクロロシラン／水素比の異なる相対的に低い温度のガスをノズル3aから供給する。本発明者らの検討によれば、上述した「所定の高さ」から上方の炉内領域はガス温度が高くなり易くガス滞留も生じ易いため、金属塩化物起因の重金属汚染やシリコン粉の発生が起こ

り易い領域であるが、かかる領域を効率的に冷却することで、炉内の温度分布の均一化を図るのである。

[0041] ここで、ノズル 3 a から供給される相対的に低い温度のガスは、シリコン源の供給を抑える意味で、ノズル 3 から供給されるガスよりも水素比の大きなガスであることが好ましく、水素ガスのみであってもよい。また、当該水素比の大きなガスの温度は、例えば 100℃以下とする。

[0042] このようなガス供給を行うと、炉内でガス温度が高くなる領域の反応ガス中のシリコン濃度が相対的に低下し、熱分解反応によるシリコン粉の発生が抑制される。

[0043] ノズル 3 a から供給するガス組成の切り替えに伴い、他のノズル 3 から供給するガス中のトリクロロシラン濃度も切り替えることが好ましい。これは、ガス組成の切り替えによりノズル 3 a から炉内に供給されるシリコン源が抑えられるため、その分を補うシリコン源を他のノズル 3 から供給するためである。

[0044] このような原料ガス供給を行うと、炉内での平均ガス温度は下がり、金属塩化物のガス化が抑制される。また、シリコン棒の径が大きくなっていても、炉内上部領域に送り込まれたガスは炉内上部から下部へのダウンフローを促進し、炉内でのガス滞留が解消されて局所的なガス温度上昇も発生し難くなり、シリコン粉の発生も抑制される。

[0045] 上述したようなノズル 3 a からのガス供給は析出反応の最初から行ってもよいが、シリコン棒の径が細いうちから炉内上部領域へのトリクロロシラン供給を抑えてしまうと、多結晶シリコンの析出速度が低下して生産性は悪くなる。

実施例

[0046] 以下に、実施例 1 及び 2 と比較例 1 及び 2 の結果を示す。なお、これらの多結晶シリコンの製造において、実施例 1 及び 2 では、図 1 に示したような、ノズル 3 a を底板中央に 1 本だけ設けた反応炉を用い、ノズル 3 a のガス吹出部を芯線ホルダの上端を基準として 80 cm の高さに位置させた。一方

、比較例 1 及び 2 では、図 4 に示したように、ノズル 3 のみを設けた反応炉を用いた。

[0047] 実施例 1 では、ノズル 3 a から、析出反応初期はトリクロロシランガスと水素ガス（60℃）の混合ガスであってトリクロロシランの濃度が 25% の原料ガスを供給し、多結晶シリコン棒の径が概ね 80 mm となった時点で水素ガス（60℃）のみの供給に切り替え、当該ノズル 3 a から、炉内に供給する全水素ガスの 25% に相当する量の水素ガスを供給した。

[0048] また、実施例 2 では、析出反応初期から終了まで、トリクロロシランガスと水素ガス（60℃）の混合ガスであってトリクロロシランの濃度が 25% の原料ガスを供給した。

[0049] 一方、比較例 1 および比較例 2 でノズル 3 から供給したガスは、それぞれ、トリクロロシランガスと水素ガス（60℃）の混合ガスであってトリクロロシランの濃度が 15% および 25% の原料ガスである。

[0050] これら実施例 1、2 および比較例 1、2 の反応温度は 1100℃、多結晶シリコンの最終径は 120 mm ϕ 、芯線長さは 180 cm である。

[0051] 結果を表 1 に示す。なお、当該表中の「重金属濃度」は、Na、Cr、Fe、Ni、Cu、Zn の 6 種の金属の総計を ICP-MS により測定した値である。また、「炉内粉発生量」および「表面突起発生」は、それぞれ、反応バッチ終了後に底板上に存在したシリコン粉の量および多結晶シリコン棒の表面を目視にて確認した結果である。

[0052] [表 1]

項目	比較例 1	比較例 2	実施例 1	実施例 2
生産性	15.6kg/hr	20.5kg/hr	20.1kg/hr	19.8kg/hr
重金属濃度	112pptw	243pptw	67pptw	53pptw
炉内粉発生	発生無し	発生多い	発生無し	発生無し
表面突起発生	無し	発生多い	発生無し	発生無し

[0053] 比較例 2 のものは、炉内粉発生および表面突起発生の何れもが認められており、多結晶シリコン中の重金属も高い値にある。また、比較例 1 のものは、炉内粉発生および表面突起発生の何れも認められないが、多結晶シリコン中の重金属が十分に低いとは言えない。

[0054] これに対し、実施例 1 および実施例 2 のものは、何れも、炉内粉発生および表面突起発生の何れが認められないことに加え、多結晶シリコン中の重金属も十分に低い値となっている。

[0055] 以上説明したように、本発明に係る反応炉によれば、多結晶シリコンの径が大きくなっても、炉内ガス温度の均一化が図られ、従来の構造のものに比較して、金属塩化物の昇華に起因する重金属汚染やシリコン粉の発生が効果的に抑制される。

産業上の利用可能性

[0056] 本発明によれば、生産性を低下させることなく、金属塩化物起因の重金属汚染やシリコン粉の発生を抑制し得る多結晶シリコンの製造技術が提供される。

符号の説明

- [0057] 1 底板
2 金属電極
3、3 a 原料ガス供給ノズル
4 反応排ガス口
5 シリコン芯線
6 多結晶シリコン
7 絶縁物
8 芯線ホルダ
9 ノズルの吹出口位置の制御部
10 ベルジャ
20 原料ガス供給システム
100 反応炉

請求の範囲

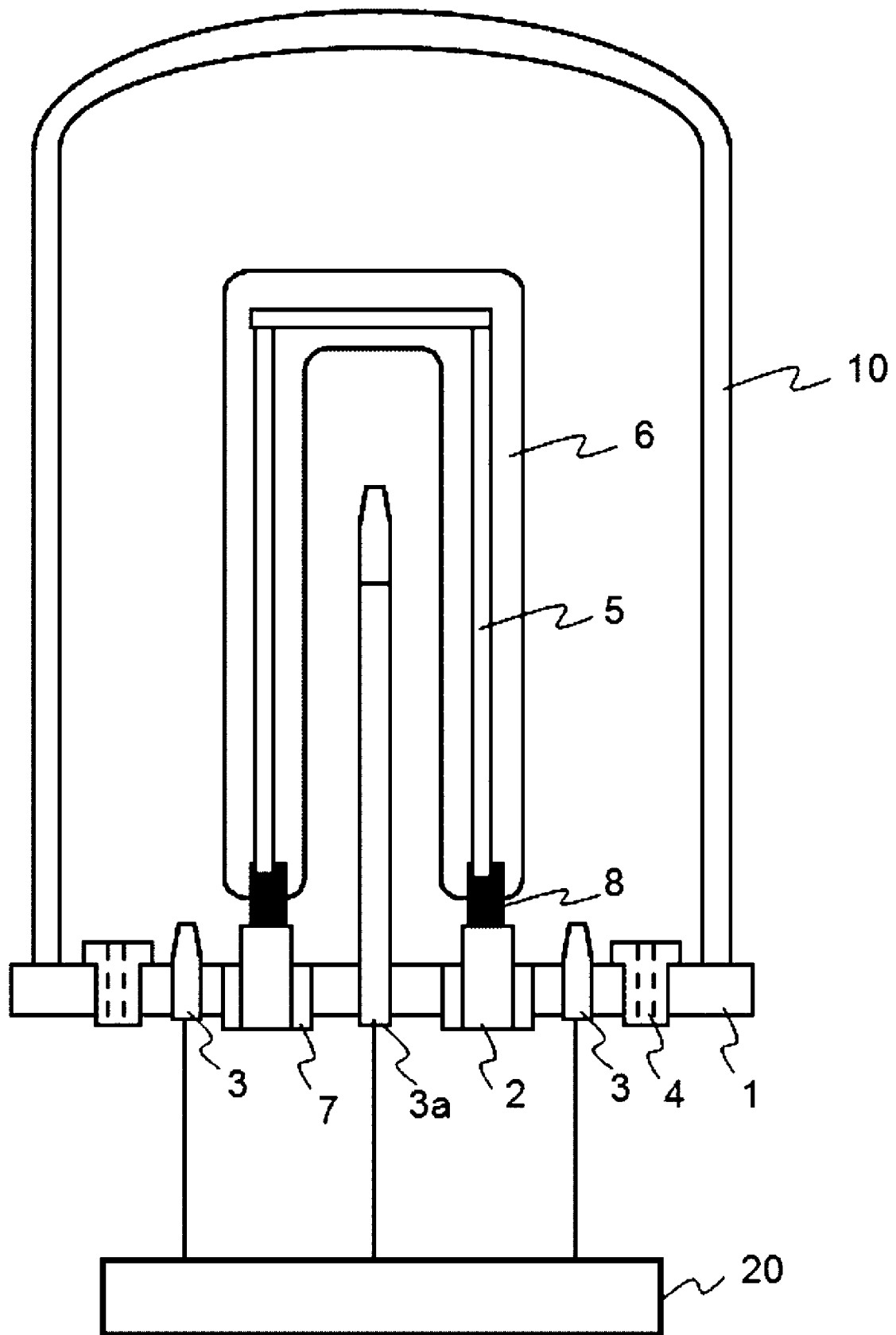
- [請求項1] シーメンス法により多結晶シリコンを製造するための反応炉であって、
該反応炉の底板には、シリコン芯線を保持する少なくとも一對の芯線ホルダと、原料ガスを供給する複数のノズルを備え、
前記複数の原料ガス供給ノズルの一部のガス吹出部は前記芯線ホルダの上端を基準として所定の高さ（ $H > 0$ ）に設けられており、残りの原料ガス供給ノズルのガス吹出部は前記芯線ホルダの上端よりも下方に設けられていることを特徴とする多結晶シリコン製造用反応炉。
- [請求項2] シーメンス法により多結晶シリコンを製造するための反応炉であって、
該反応炉の底板には、シリコン芯線を保持する少なくとも一對の芯線ホルダと、原料ガスを供給する複数のノズルを備え、
前記複数の原料ガス供給ノズルのガス吹出部は前記芯線ホルダの上端よりも下方に設けられており、さらに、
前記複数の原料ガス供給ノズルの一部のガス吹出部を前記芯線ホルダの上端を基準として所定の高さ（ $H > 0$ ）に調整する制御部を備えていることを特徴とする多結晶シリコン製造用反応炉。
- [請求項3] 前記ガス吹出部の所定の高さは前記シリコン芯線の垂直方向の長さの $1/3$ を超える値である、請求項 1 又は 2 に記載の多結晶シリコン製造用反応炉。
- [請求項4] 前記ガス吹出部の所定の高さは 50 cm を超える値である、請求項 1 又は 2 に記載の多結晶シリコン製造用反応炉。
- [請求項5] 前記所定の高さにあるガス吹出部と他のガス吹出部に、トリクロロシラン／水素比の異なるガスを供給する原料ガス供給システムを備えている、請求項 1 又は 2 に記載の多結晶シリコン製造用反応炉。
- [請求項6] 前記原料ガス供給システムは、前記所定の高さにあるガス吹出部に、前記他のガス吹出部よりも水素比の大きなガスを供給する、請求項

5 に記載の多結晶シリコン製造用反応炉。

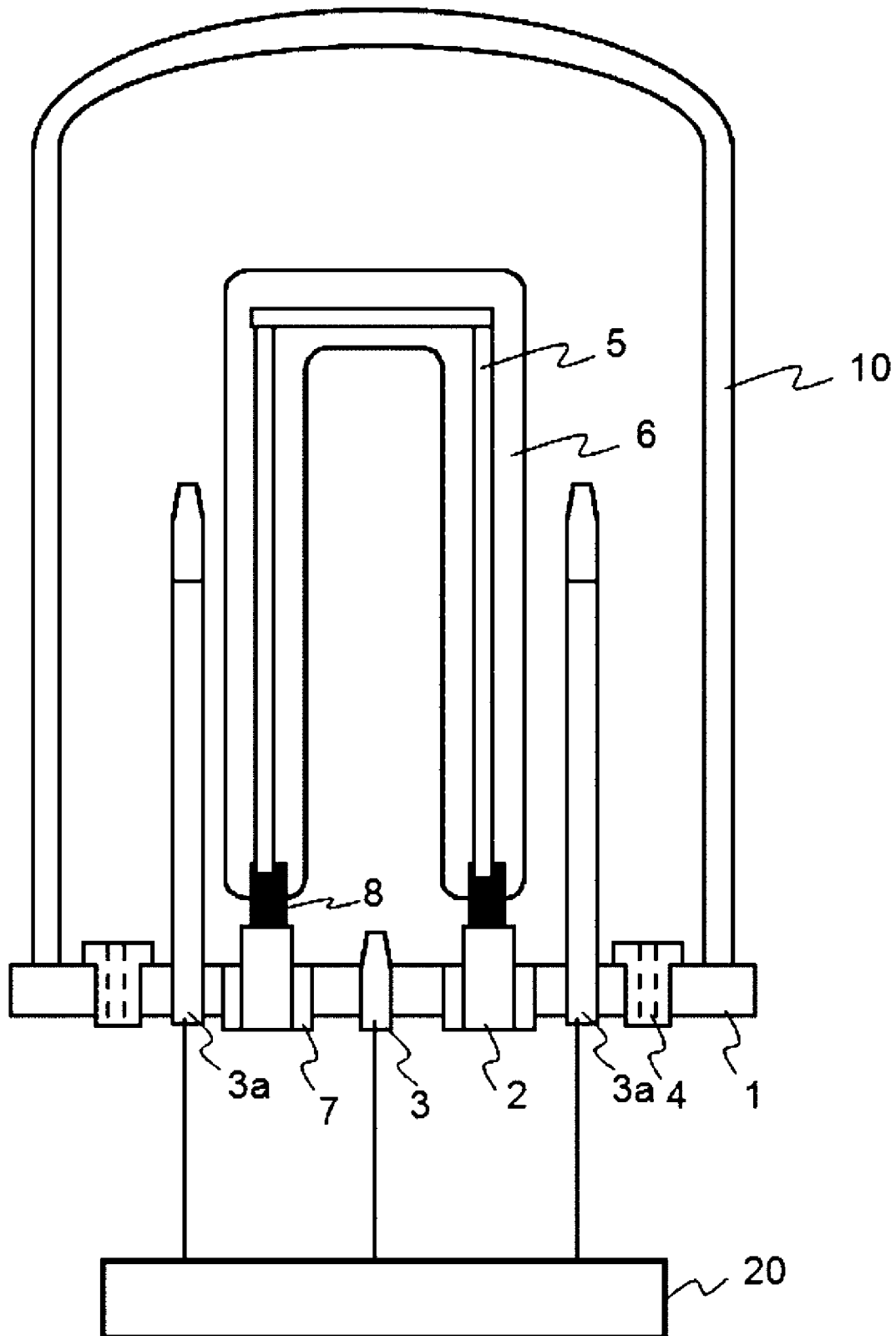
[請求項7] 前記原料ガス供給システムは、前記水素比の大きなガスを 100℃ 以下の温度で供給する、請求項 6 に記載の多結晶シリコン製造用反応炉。

[請求項8] 請求項 1 又は 2 に記載の多結晶シリコン製造用反応炉を用い、炉内温度が均一になるように前記所定の高さを設定して多結晶シリコンを析出させる、多結晶シリコンの製造方法。

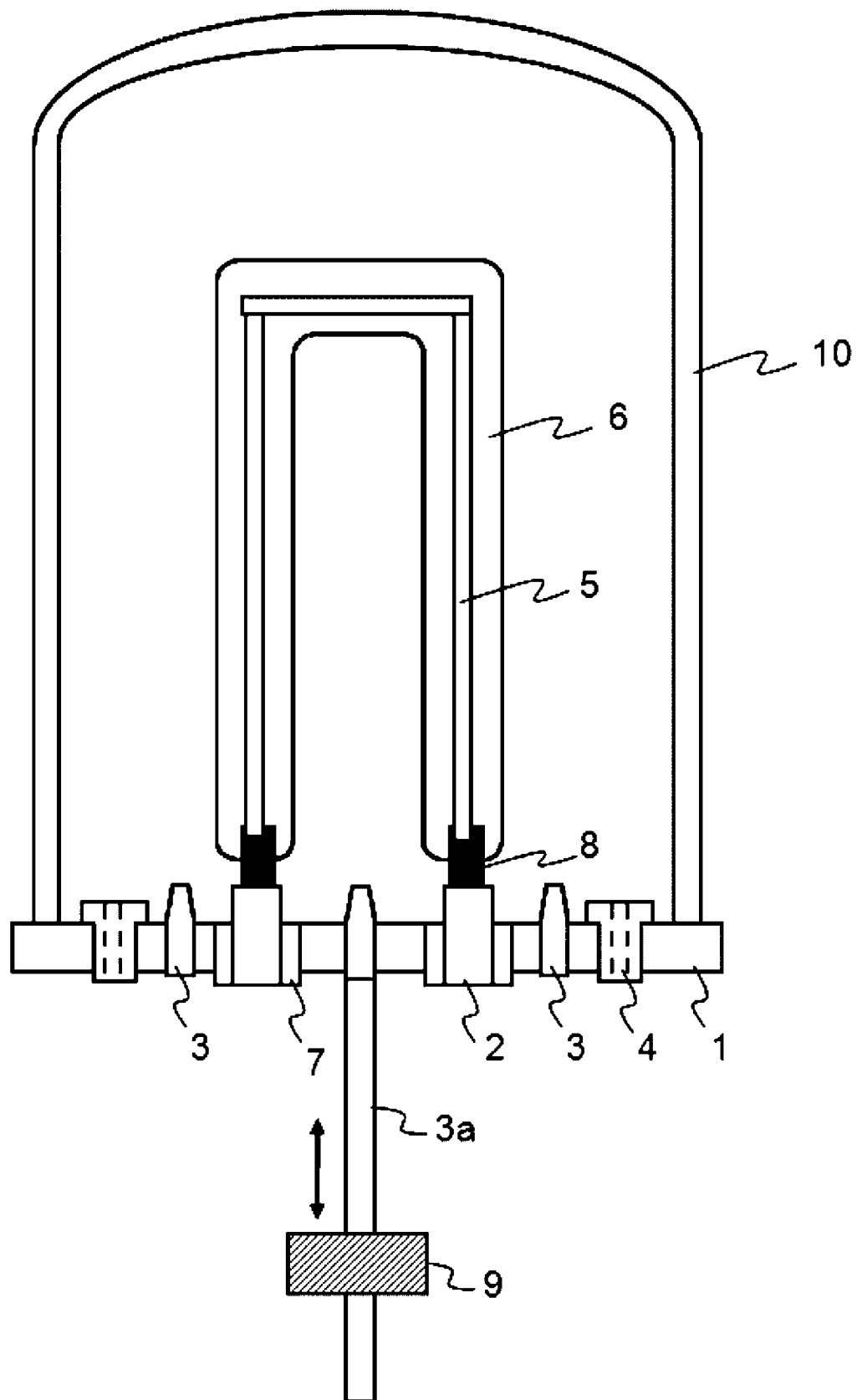
[図1]

100

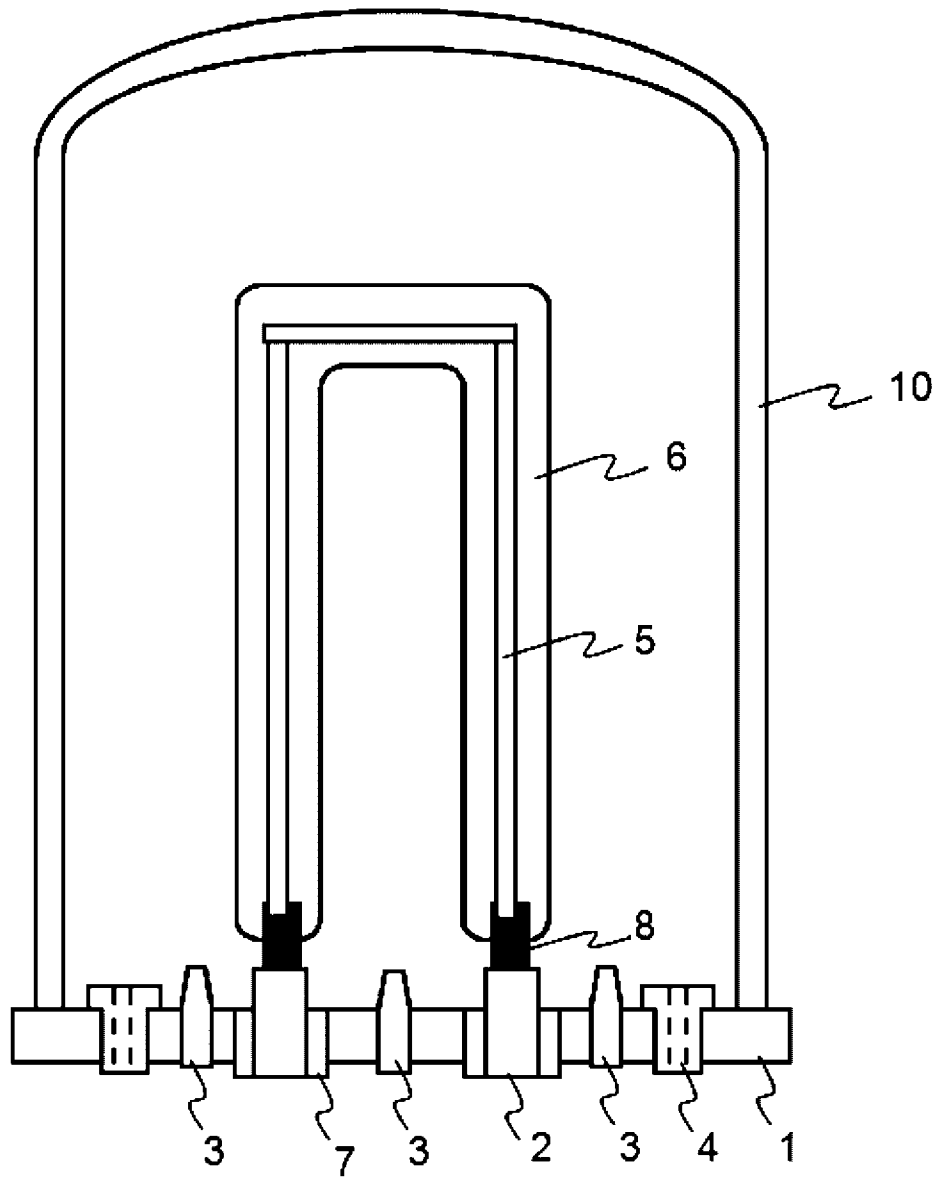
[図2]

100

[図3]

100

[図4]

100

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/000157

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C01B33/035(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)

C01B33/02-33/039

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	1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2012	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2012

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 2009-149495 A (Mitsubishi Materials Corp.), 09 July 2009 (09.07.2009), claims; drawings & EP 2077252 A2 & US 2009/0136408 A1 & KR 10-2009-55488 A & CN 101445239 A	1-8
A	WO 2009/128886 A1 (HEMLOCK SEMICONDUCTOR CORP.), 22 October 2009 (22.10.2009), paragraphs [0024] to [0028]; fig. 1, 6 & EP 2265883 A1 & JP 2011-517734 A & US 2011/0036292 A1 & KR 10-2011-8078 A	1-8

☒ 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
06 April, 2012 (06.04.12)

Date of mailing of the international search report
17 April, 2012 (17.04.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/000157

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 2-6317 A (Union Carbide Corp.), 10 January 1990 (10.01.1990), claims; drawings & EP 324504 A2 & US 4805556 A & KR 10-1993-11998 B1	1-8

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. C01B33/035 (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. C01B33/02-33/039

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	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2012年
日本国実用新案登録公報	1996-2012年
日本国登録実用新案公報	1994-2012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 2009-149495 A (三菱マテリアル株式会社) 2009.07.09, 特許請求の範囲, 図面 & EP 2077252 A2 & US 2009/0136408 A1 & KR 10-2009-55488 A & CN 101445239 A	1-8

☒ 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

06.04.2012

国際調査報告の発送日

17.04.2012

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)

永田 史泰

4 G

3029

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	WO 2009/12886 A1 (HEMLOCK SEMICONDUCTOR CORPORATION) 2009. 10. 22, [0024]-[0028], 図 1, 6 & EP 2265883 A1 & JP 2011-517734 A & US 2011/0036292 A1 & KR 10-2011-8078 A	1-8
A	JP 2-6317 A (ユニオン、カーバイド、コーポレーション) 1990. 01. 10, 特許請求の範囲, 図面 & EP 324504 A2 & US 4805556 A & KR 10-1993-11998 B1	1-8