



(12) 发明专利

(10) 授权公告号 CN 101432470 B

(45) 授权公告日 2011. 12. 21

(21) 申请号 200780015545. 8

(22) 申请日 2007. 08. 09

(30) 优先权数据

10-2006-0075897 2006. 08. 10 KR

(85) PCT申请进入国家阶段日

2008. 10. 29

(86) PCT申请的申请数据

PCT/KR2007/003827 2007. 08. 09

(87) PCT申请的公布数据

W02008/018760 EN 2008. 02. 14

(73) 专利权人 韩国化学研究院

地址 韩国大田

(72) 发明人 金希永 尹卿求 朴容起 崔源春

(74) 专利代理机构 中国国际贸易促进委员会专

利商标事务所 11038

代理人 郭建新

(51) Int. Cl.

C30B 29/06 (2006. 01)

C30B 25/00 (2006. 01)

(56) 对比文件

US 5382412 A, 1995. 01. 17, 全文.

US 7029632 B1, 2006. 04. 18, 全文.

CN 1363417 A, 2002. 08. 14, 全文.

US 6827786 B2, 2004. 12. 07, 全文.

审查员 马骁

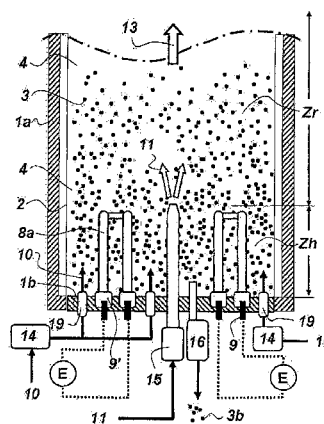
权利要求书 5 页 说明书 36 页 附图 7 页

(54) 发明名称

制备粒状多晶硅的方法和装置

(57) 摘要

公开了应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法。所述床的上部和下部空间分别被规定为反应区和加热区,将反应气体出口的高度选定为参比高度。本发明通过有效提供所需的热和稳定地保持反应区的反应温度而使反应器的生产率最大化,不影响流化床反应器的机械稳定性。这是通过加热区内的电阻加热实现的,其中,将内部加热器安装在反应气体供给装置和反应器管内壁之间,于是对加热区中的流化气体和硅颗粒进行加热。通过以可使硅颗粒在反应区和加热区之间呈连续、流化状态相互混合的速率供给流化气体来将加热区内产生的热转移到反应区。



1. 应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,它包括如下步骤:

在反应器壳体内竖立安装的反应器管内,在将流化气体输入硅颗粒床的流化气体供给装置上形成硅颗粒床;

在硅颗粒床内竖直安装反应气体供给装置,使所述反应气体供给装置的反应气体出口位于高于所述流化气体供给装置的流化气体出口;

将反应器管的上部和下部空间分别设定为反应区和加热区,将反应气体出口处的高度选定为参比高度;

利用在反应气体供给装置和反应器管内壁之间的空间安装的内部加热器进行电阻加热,从而对加热区中的流化气体和硅颗粒加热;

以使硅颗粒在反应区和加热区之间呈连续的、流化态相互混合的速率供给流化气体,于是将反应区的反应温度保持在预定的反应温度范围内;

利用反应气体供给装置供给反应气体,以便硅颗粒通过反应区中的硅沉积发生尺寸增大;

利用气体排放装置将废气排出流化床反应器,所述废气包含流过反应区的流化气体,未反应的反应气体和反应副产物气体;以及

利用颗粒排放装置将一部分硅颗粒作为硅产品颗粒排出流化床反应器。

2. 权利要求1的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,应用不被流化气体的流动而流化的填充材料在一定空间形成填充床,它包括于加热区内并且被反应器管内壁、所述流化气体供给装置、反应气体供给装置和内部加热器包围,于是流化气体可在流过填充床时被加热。

3. 权利要求2的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,在滞留于或者通过在填充材料之间形成的空间之后,通过颗粒排放装置将硅产品颗粒排出流化床反应器。

4. 权利要求1的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,将反应温度保持在从600至1,200°C的范围之内。

5. 权利要求1或权利要求2的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,所述内部加热器包括一个或多个加热单元,而所述加热单元包括发生电阻加热的电阻元件,其中,为了防止硅颗粒被电阻元件污染,将该电阻元件安装在保护管内和/或在电阻元件表面形成一层或多层隔离层。

6. 权利要求1或权利要求2的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,所述流化气体选自由氢、氮、氩、氦、四氯硅烷、三氯硅烷、二氯硅烷、氯化氢及其混合物组成的组。

7. 权利要求6的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,每单位时间输入加热区的流化气体的进料速率(mole/sec)是最小流化态时进料速率的1.0-5.0倍,在最小流化态时,在不提供反应气体的情况下硅颗粒就开始在反应区内在反应温度范围内被流化。

8. 权利要求1的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,所述反应气体选自下组作为含硅组分的物质:甲硅烷、二氯硅烷、三氯硅烷和四氯硅烷及其混合物。

9. 权利要求8的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,所述反应气体还包含至少一种选自下组的物质:氢、氮、氩、氦、氯化氢及其混合物。

10. 权利要求1或权利要求2的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,通过晶种供给装置将在流化床反应器外部制备的硅晶种输入反应器管。

11. 权利要求 1 或权利要求 2 的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,暴露于加热区的所述反应气体供给装置呈同轴多管的形式构造,其中,一个或多个喷嘴围绕用于供给反应气体的反应气体喷嘴,于是可保护反应气体喷嘴。

12. 权利要求 11 的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,包含选自氢、氮、氩、氦及其混合物的至少一种的惰性气体在同轴多管的环形区流动,从而可防止硅沉积物在反应气体喷嘴内壁积聚。

13. 权利要求 12 的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,连续地、间歇地或定期地将氯化氢加入所述惰性气体,以便防止硅沉积物在反应气体喷嘴的出口积聚或者去除已经形成的硅沉积物。

14. 权利要求 1 的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,将反应器管竖立安装在反应器壳体内从而被反应器壳体包围,由此将反应器壳体的内部空间分为在反应器管内形成的内部区和在反应器壳体与反应器管之间形成的外部区,其中,在内部区存在硅颗粒床并且反应区和加热区含于内部区,而在外部区不存在硅颗粒床,也不发生硅沉积。

15. 权利要求 14 的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,将选自由氢、氮、氩、氦及其混合物组成的组的惰性气体输入外部区而在外部区中保持基本上惰性的气氛。

16. 权利要求 14 的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,将所述外部区压力 P_0 和内部区压力 P_1 之间的压差保持在 $0 \text{ 巴} \leq |P_0 - P_1| \leq 1 \text{ 巴}$ 的范围内。

17. 权利要求 16 的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,将外部区压力或内部区压力保持在 1-20 巴的范围内。

18. 权利要求 14 的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,除了内部加热器之外,还应用外部区中安装的辅助加热器加热内部区。

19. 权利要求 18 的应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,所述辅助加热器的热负荷在内部加热器的热负荷的 10-100% 范围内。

20. 用于制备粒状多晶硅、包含流化床反应器的装置,它包括:

反应器管;

包围反应器管的反应器壳体;

用于将流化气体导向反应器管内形成的硅颗粒床底部的流化气体供给装置;

在硅颗粒床内竖立安装的、用于将硅沉积所需的反应气体输入硅颗粒床的反应气体供给装置,以便反应气体供给装置的反应气体出口位于高于流化气体供给装置处;

在反应气体供给装置和反应器管内壁之间的空间安装的内部加热器;

反应区和加热区,它们分别是反应器管的上部空间和下部空间,将反应气体出口的高度选作参比高度;

在反应器管,内部加热器和反应气体供给装置之间形成的空间,其中,通过内部加热器的电阻加热来加热流化气体和硅颗粒,于是反应区和加热区之间的颗粒互混保持呈连续的、流化状态;

将废气排出流化床反应器的气体排放装置,所述废气包含流过反应区的流化气体,未反应的反应气体和反应副产物气体;以及

颗粒排放装置,用于将反应器管内通过硅沉积制备的硅颗粒的一部分作为硅产品颗粒排出流化床反应器。

21. 权利要求 20 的制备粒状多晶硅的装置,其中,在一空间内形成填充材料的填充床,它是在加热区内应用不被流化气体的流动而流化的填充材料形成的,并且被反应器管内壁、所述流化气体供给装置、反应气体供给装置和内部加热器包围。

22. 权利要求 21 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述填充材料具有 5-50mm 的平均直径并且具有选自下组的形状:颗粒、碎片、块、环及其混合物。

23. 权利要求 21 或权利要求 22 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述填充材料由选自下组的材料制造:石英、二氧化硅、氮化硅、一氮化硼、碳化硅、石墨、硅、玻璃碳及其混合物。

24. 权利要求 23 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述填充材料由单组分材料组成或者由多层组成,所述多层的各层沿厚度方向由不同的材料制造。

25. 权利要求 20 的制备粒状多晶硅的装置,其中,将反应器管的内部空间规定为内部区,其中存在硅颗粒床而且发生硅沉积;而反应器管和反应器壳体之间的空间被规定为外部区,其中不存在硅颗粒床而且不发生硅沉积。

26. 权利要求 25 的制备粒状多晶硅的装置,它包括:用于保持外部区内基本上惰性的气氛的惰性气体连接装置,用于检测和/或控制内部区的压力 P_i 和/或外部区的压力 P_o 的压力控制装置以及用于将外部区的压力 P_o 和内部区的压力 P_i 之间的压差保持在 $0 \text{ 巴} \leq |P_o - P_i| \leq 1 \text{ 巴}$ 的范围内的压差控制装置。

27. 权利要求 25 的制备粒状多晶硅的装置,其中,将隔热材料装在所述外部区。

28. 权利要求 25 的制备粒状多晶硅的装置,其中,还在所述外部区安装辅助加热器。

29. 权利要求 25 的制备粒状多晶硅的装置,其中,进一步与反应器壳体耦合安装传输微波发生器由电能产生的微波的波导管或者安装微波发生器,从而将微波输入所述内部区进行加热。

30. 权利要求 20 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述反应器壳体由至少一种选自碳钢和不锈钢的金属制造。

31. 权利要求 20 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述反应器管由选自下组的单组分材料或者多种材料制造:石英、二氧化硅、氮化硅、一氮化硼、碳化硅、石墨、玻璃碳、硅及其混合物。

32. 权利要求 31 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述反应器管由单层或者多层构成,所述多层的各层沿厚度方向由不同的材料制造。

33. 权利要求 20 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述内部加热器包括一个或多个加热单元。

34. 权利要求 33 的制备粒状多晶硅的装置,其中,很多加热单元相互呈串联和/或并联电连接。

35. 权利要求 33 的制备粒状多晶硅的装置,其中,通过与反应器壳体耦合安装的电连接装置将所述加热单元与电源电连接。

36. 权利要求 35 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述电连接装置包括安装在反应器壳体内部和/或外部的电极,并且由该电极呈串联和/或并联将所述加热单元电相互连接。

37. 权利要求 36 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述电极由金属制造,或者由表面处理成碳化硅的石墨制造。

38. 权利要求 33 的制备粒状多晶硅的装置,其中,包括于发生电阻加热的加热单元中

的电阻元件呈具有圆形、椭圆形或多边形截面的棒、线、丝、杆、条或带的形式,或者呈具有同心圆形、椭圆形或多边形截面的导管、管、圆柱或管道形式,截面的形状和 / 或尺寸沿长度方向是均匀或可变的。

39. 权利要求 38 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述电阻元件由选自石墨、碳化硅和硅的一种或两种材料制造。

40. 权利要求 38 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述电阻元件由选自下组的金属或合金制造:钨(W)、铼(Re)、锇(Os)、钽(Ta)、钼(Mo)、铌(Nb)、铱(Ir)、钌(Ru)、铊(Tl)、铪(Hf)、铑(Rh)、钒(V)、铬(Cr)、锆(Zr)、铂(Pt)、钍(Th)、镧(La)、钛(Ti)、钇(Y)、铁(Fe)、镍(Ni)、镁(Mg)、铝(Al)及其混合物。

41. 权利要求 38 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述电阻元件由选自下组的陶瓷金属制造:硅化钼(Mo-Si)、亚铬酸镧(La-Cr-O)、氧化锆及其混合物。

42. 权利要求 38 的制备粒状多晶硅的装置,其中,通过在电阻元件外部安装保护管、在电阻元件表面形成一层或多层隔离层或者在其上形成隔离层后在电阻元件外部安装保护管来构建加热单元,以便防止电阻元件与硅颗粒直接接触。

43. 权利要求 42 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述保护管在厚度方向具有同心圆形、椭圆形或多边形截面。

44. 权利要求 42 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述隔离层和 / 或保护管包括 1 至 5 个隔离层,各层由不同的隔离组分制造。

45. 权利要求 44 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述隔离组分包括防止杂质迁移到硅颗粒和 / 或流化气体迁移到电阻元件的组分。

46. 权利要求 44 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述隔离组分包含电绝缘组分。

47. 权利要求 44 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述隔离组分包括硅(Si)或硼(B)的氮化物、氧化物、碳化物或氧氮化物。

48. 权利要求 44 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述隔离组分包含选自下组的一种或多种金属元素的氮化物、氧化物、硅化物、硼化物、碳化物、氧氮化物或氧化硅:钨(W)、铼(Re)、锇(Os)、钽(Ta)、钼(Mo)、铌(Nb)、铱(Ir)、钌(Ru)、铊(Tl)、铪(Hf)、铑(Rh)、钒(V)、铬(Cr)、锆(Zr)、铂(Pt)、钍(Th)、镧(La)、钛(Ti)、钇(Y)、铁(Fe)、镍(Ni)、镁(Mg)、及铝(Al)。

49. 权利要求 44 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述隔离层的厚度在从 1 μ m 至 5mm 的范围内和 / 或所述保护管的厚度在从 1mm 至 20mm 的范围内。

50. 权利要求 44 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述隔离层还包括厚度在从 1 μ m 至 5mm 的范围内的硅层,其中硅是隔离组分。

51. 权利要求 20 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述流化气体供给装置包括一个呈隔栅、盘或锥形板形式的气体分配板或者气体分配组合件,它具有很多用于在加热区底部分配流化气体的孔;和 / 或包括很多流化气体供应喷嘴。

52. 权利要求 20 的制备粒状多晶硅的装置,其中,暴露于加热区的反应气体供给装置的截面呈同轴多管的形式构建,其中,供应反应气体的反应气体喷嘴被一个或多个喷嘴包围。

53. 权利要求 20 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述颗粒排放装置与反应气体供给

装置一起呈同轴多管的形式构建或者呈与反应气体供给装置分开的独立形式构建。

54. 权利要求 20 的制备粒状多晶硅的装置,其中,构成流化气体供给装置、反应气体供给装置和 / 或颗粒排放装置的材料包含至少一种选自下组的物质:石英、二氧化硅、氮化硅、一氮化硼、碳化硅、石墨、硅、玻璃碳及其混合物。

55. 权利要求 54 的制备粒状多晶硅的装置,其中,所述流化气体供给装置、反应气体供给装置和 / 或颗粒排放装置由单组分材料或者多层构成,所述多层的各层沿厚度方向由不同的材料制造。

制备粒状多晶硅的方法和装置

技术领域

[0001] 本发明涉及应用流化床反应器制备粒状多晶硅 (polycrystalline silicon, multicrystalline silicon 或 poly-Si) 的方法和装置,更具体地涉及制备粒状多晶硅的方法和装置,它能通过将在硅颗粒表面进行硅沉积时高温下的硅颗粒加热期间出现的问题最小化而长时间稳定地操作反应器。

背景技术

[0002] 通常,高纯多晶硅被广泛地用作要求半导体性质和高纯度的半导体装置、太阳能电池等中的化学的或工业的原材料。还有,它被用于生产功能精密装置和小尺寸的、高度集成精密系统。

[0003] 高纯多晶硅是基于高纯度含硅的反应气体的热分解和 / 或氢还原,通过硅颗粒表面的重复硅沉积制备的。

[0004] 在多晶硅的工业规模生产中,迄今主要应用钟罩型反应器。应用钟罩型反应器生产的多晶硅产品呈棒状并且直径约为 50-300mm。应用钟罩型反应器基于电阻加热制备多晶硅不能以连续方式操作,因为硅沉积的棒直径增大有限。此外,沉积效率差,是由于硅沉积所需的表面积受限制,而且过多的热损耗导致每单位体积的产品的高能量消耗。

[0005] 为了解决这些问题,近年来开发了这样的硅沉积法,它应用流化床反应器生产呈尺寸约为 0.5-3mm 的颗粒形式的多晶硅。根据该方法,从反应器的底部向顶部供给气体形成将硅颗粒流化的流化床。硅颗粒的尺寸随输入受热流化床的含硅反应气体沉积的硅成分而增大。

[0006] 如常规钟罩型反应器中,基于 Si-H-Cl 的硅烷化合物,例如甲硅烷 (SiH_4)、二氯硅烷 (SiH_2Cl_2)、三氯硅烷 (SiHCl_3)、四氯硅烷 (SiCl_4) 及其混合物作为含硅反应气体被用于流化床反应器。通常,反应气体可能还包含至少一种选自氢、氮、氩、氦等的物质。

[0007] 为了实现生产多晶硅的硅沉积,反应温度,或硅颗粒的温度,对于甲硅烷来说应当保持在约 600-850°C,而对于在工业规模生产最广泛应用的三氯硅烷来说应当保持在约 900-1,100°C。

[0008] 在硅沉积过程中,含硅的反应气体的热分解和 / 或氢还原的过程中发生很多单元反应。此外,硅成分以不同方式生长成颗粒,取决于反应气体的组成。不论其中包括的单元反应和颗粒生长的方式如何,流化床反应器都生产粒状多晶硅产品。

[0009] 随着细硅颗粒的硅沉积和 / 或结合的继续进行,小的硅晶种尺寸长大并且逐渐沉积到流化床底部。晶种可能在流化床反应器内直接产生,或者在流化床外部制备后被连续地、定期地或间歇地输入流化床反应器。可从反应器底部连续地、定期地或间歇地取出由于硅沉积而长大的所述多晶硅产品或硅颗粒。

[0010] 流化床反应器在产率方面优于钟罩型反应器,是由于可发生硅沉积的大的表面积。此外,在硅应用方法中可容易操作粒状多晶,包括单晶生长,晶块或膜的制备,表面处理和修饰,供反应或分离的化学物质的制备,或者硅颗粒的成型或粉碎等,不同于棒状产品。

另外, 粒状多晶硅产品能以连续或半连续方式操作这样的工艺。

[0011] 应用流化床反应器以连续或半连续方式生产粒状多晶的最困难步骤在于, 加热硅颗粒以便保持沉积所需的温度。如下问题涉及加热硅颗粒以便保持沉积所需的温度, 同时将流化床反应器内硅颗粒的杂质污染减到最小。供给流化床反应器的反应气体可导致在约 300°C 或更高温度下的硅沉积。但是, 由于在反应气体加热装置壁上发生硅沉积, 并且硅沉积物随着操作的进行而积聚, 反应气体在被输送入流化床反应器以前不能被有效地预热。此外, 由于还在持续暴露于热反应气体的反应器组件的表面发生硅沉积, 所以硅沉积物自然在其上积聚。因此, 难以通过加热反应器壁的常规方法充分地加热硅颗粒, 还不可能长时间稳定地操作反应器。此外, 现有方法很少能有效地加热硅颗粒而将杂质污染减到最小。

[0012] 人们提出了解决这些问题的很多技术办法。它们大部分基于将流化床反应器的内部空间分为在硅颗粒的表面进行沉积的反应区以及加热硅颗粒的加热区并且通过加热区间接地加热反应区。

[0013] 将流化床反应器的内部空间分为加热区和反应区的方法之一是, 将管式分配器安装在硅颗粒层的内部, 于是包围分配器的外部空间被外部加热器加热, 而分配器的内部空间变为反应区, 其中发生硅沉积。根据该方法, 如日本专利 No. 1984-045917 与美国专利 No. 4, 416, 914(1983), 4, 992, 245(1991) 和 5, 165, 908(1992) 等所述, 随着硅颗粒在加热区内向下移动以及它们在反应区内由反应气体携带向上移动而形成连续循环的流化床。但是, 该方法具有如下问题。由于同轴地分配反应区和加热区的分配器的直径小于加热区的外径, 在暴露于反应区的分配器内表面严重发生硅沉积和积聚, 使得难以长时间操作反应器。还有, 由于硅颗粒沿周边方向的循环不均匀, 所以该方法不适合大规模生产。

[0014] 作为将流化床反应器的内部空间分为加热区和反应区的另一个方法, 可以确定硅颗粒床中的反应气体供给装置的反应气体出口, 所以可将上部和下部空间分别规定为反应区和加热区, 以反应气体出口处的高度作为分配的参考。对加热区内的硅颗粒加热以保持反应区的反应温度。根据该方法, 从反应器底部向顶部输入不引起硅沉积的流化气体, 例如氢, 于是加热区内硅颗粒的全部或部分被流化。此外, 反应区内的硅颗粒被反应气体流化。随着硅颗粒在两个区的界面相互混合, 热量从加热区连续地转移到反应区。涉及该方面, 美国专利 No. 5, 374, 413(1994), 5, 382, 412(1995), 6, 007, 869(1999), 6, 541, 377(2003) 和 7, 029, 632(2006) 与日本专利 No. 2001-146412 公开了将硅颗粒的空间分为反应区和加热区的方法, 并且通过应用电阻加热器、微波加热器等的常规方法对加热区加热以保持反应区内的反应温度。但是, 考虑到流化床反应器的生产率问题, 或者对大规模反应器来说其实难以将硅颗粒床保持在预定的反应温度, 对于应用流化床反应器大规模生产多晶硅来说需要能更有效地对加热区加热的方法。此外, 由于要求利用大量的能量对加热区内迅速地流动的流化气体加热, 所以硅颗粒的加热不充分。

[0015] 在这方面, 美国专利 No. 6, 827, 786(2004) 提出了一个流化床反应体系, 其中, 将硅颗粒床的上部和下部空间分为反应区和加热区, 并且由加热器加热的管将少量流化气体通入加热区, 所以可将流化气体加热到反应温度或以上, 而不引起加热区内的硅颗粒的流化。一个脉冲装置使硅颗粒发生前后脉动, 所以它们能在加热区和反应区的界面定期地相互混合, 于是维持沉积反应温度。如美国专利 No. 6, 827, 786 提出的利用脉冲装置对硅颗粒床施加脉动的物理冲击导致加热区和反应区内的一些硅颗粒相互混合。但是, 应用该方法,

在大规模反应器中,难以均匀地混合颗粒而将两个区的温差最小化。与化学方法中常用的其它组件不同,对流化床反应器的组件的材料选择有限制。尤其,接触硅颗粒的反应器管不能成为制备高纯多晶硅的杂质污染源。反应器管,用于多晶硅生产的流化床反应器的关键组件,与热流化的硅颗粒持续接触,所以通常由高纯石英或硅制造以防杂质污染。由于硅颗粒的运动引起不规则的振动和剧烈的应力,所以反应器管易受机械冲击而损坏。于是,如美国专利 No. 6, 827, 786 公开的利用脉冲装置对硅颗粒床定期施加的物理冲击可能显著地影响反应器管的稳定性并且使得难于安全的、持久地操作流化床反应器。

[0016] 因此,构建能够解决前述问题的加热区和稳定地维持反应区内的反应温度而不影响流化床反应器的机械稳定性及其操作方法是大规模生产粒状多晶硅的先决条件。另外,需要供给足够的热量以便通过增大反应压力大为改善流化床反应器的生产率。重要的是构建和操作流化床反应器可将加热区供给的热有效地用于反应区,同时将加热区内的热负荷最大化。

[0017] 因此,本发明一个目的是提供能改善流化床反应器的生产率的方法和装置,它通过足量提供制备粒状多晶硅所需的热而稳定地保持硅沉积条件,不会牺牲流化床反应器的机械稳定性。

[0018] 为了达到上述目的,本发明人基于如下实验发现而完成了本发明,即,优选的是按下列条件安全地操作制备粒状多晶硅的流化床反应器:

[0019] (1) 通过反应气体供给装置将反应器管内硅颗粒床分为反应区和加热区;

[0020] (2) 利用安装在加热区内部空间的内部加热器加热加热区内的硅颗粒和连续流过该区的流化气体而提供给反应区内硅沉积所需的热;以及

[0021] (3) 硅颗粒需要在反应区和加热区之间呈连续的流化态相互混合,于是可将供给加热区的热迅速地转移到反应区。

[0022] 附图简述

[0023] 将通过参照附图图解说明的某些列举的实施方案来描述本发明的上述和其它特征,其中:

[0024] 图 1 示意性地图解了按本发明制备粒状多晶硅的方法;

[0025] 图 2 也示意性地图解了按本发明制备粒状多晶硅的方法;

[0026] 图 3 示意性地图解了按本发明制备粒状多晶硅的流化床反应器的结构;

[0027] 图 4 也示意性地图解了按本发明制备粒状多晶硅的流化床反应器的结构;

[0028] 图 5 示意性地图解了按本发明制备粒状多晶硅的流化床反应器的结构,其中,还将微波发生器加到所述内部区;

[0029] 图 6 示意性地图解了本发明的 U 形内部加热器的截面,其中,电阻元件的截面是圆形的或同心圆的;以及

[0030] 图 7 示意性地图解了本发明的散热管形内部加热器的截面。

[0031] 发明描述

[0032] 为了达到前述目的,本发明提供了应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,它包括:在反应器壳体内竖立安装的反应器管内,在将流化气体输入硅颗粒床的流化气体供给装置表面形成硅颗粒床;在硅颗粒床内竖直建立反应气体供给装置,所以反应气体供给装置的反应气体出口可位于高于流化气体供给装置的流化气体出口;将反应器管的上方和

下方空间分别规定为反应区和加热区,将反应气体出口的高度选定为参比高度;利用反应气体供给装置和反应器管内壁之间的空间安装的内部加热器进行电阻加热,于是对加热区中的流化气体和硅颗粒加热;以可使硅颗粒在反应区和加热区之间呈连续的、流化态相互混合的速率供给流化气体,于是将反应区的反应温度保持在预定的反应温度范围内;利用反应气体供给装置供给反应气体,所以硅颗粒可通过反应区中的硅沉积发生尺寸增大;利用气体排放装置将废气排出流化床反应器,所述废气包含流过反应区的流化气体,未反应的反应气体和反应副产物气体;以及利用颗粒排放装置将一部分硅颗粒作为硅产品颗粒排出流化床反应器。

[0033] 任选地,可应用不被流化气体的流动而流化的填充材料在一定空间形成填充床,它包括于加热区内并且被反应器管内壁、所述流化气体供给装置、反应气体供给装置和内部加热器包围,所以流化气体可在流过填充床时被加热。

[0034] 任选地,在滞留于或者通过填充材料之间形成的空间之后,通过颗粒排放装置将硅产品颗粒排出流化床反应器。

[0035] 在一个优选的实施方案中,将反应温度保持在 600 至 1,200°C 范围内。

[0036] 在一个优选的实施方案中,所述内部加热器包括一个或多个加热单元。各加热单元包括发生电阻加热的电阻元件。为了防止保护管内的污染或使它最小化,可将所述电阻元件安装在保护管内。也可在电阻元件表面形成一层或多层隔离层。另一方面,可通过在电阻元件上形成隔离层来构建所述加热单元。

[0037] 在一个优选的实施方案中,所述流化气体可能包含至少一种选自下组的气体:氢(H_2)、氮(N_2)、氩(Ar)、氦(He)、四氯硅烷($SiCl_4$)、三氯硅烷($SiHCl_3$)、二氯硅烷(SiH_2Cl_2)、氯化氢(HCl)及其混合物。

[0038] 在一个优选的实施方案中,所述反应气体可能包含至少一种选自下组的含硅组分:甲硅烷(SiH_4)、二氯硅烷、三氯硅烷、四氯硅烷及其混合物。

[0039] 任选地,所述反应气体可能还包含至少一种选自下组的物质:氢、氮、氩、氦、氯化氢及其混合物。

[0040] 任选地,可利用晶种供给装置将流化床反应器外部制备的硅晶种输入反应器管。

[0041] 在一个优选的实施方案中,每单位时间输入加热区的流化气体进料速率是最小流化态时进料速率的 1.0-5.0 倍,在最小流化态时,不提供反应气体而使反应区内硅颗粒在反应温度范围内开始流化。

[0042] 任选地,呈同轴多管的形式构建暴露于加热区的所述反应气体供给装置,其中一个或多个喷嘴围绕提供反应气体的反应气体喷嘴,于是可保护反应气体喷嘴。

[0043] 任选地,包含选自氢、氮、氩、氦及其混合物的至少一种的惰性气体在同轴多管的环形区流过,所以可预防硅沉积物在反应气体喷嘴内壁积聚。

[0044] 任选地,可连续地、间歇地或定期地将氯化氢加入所述惰性气体以防硅沉积物在反应气体喷嘴的出口积聚或者去除已经形成的硅沉积物。

[0045] 在一个优选的实施方案中,这样构建流化床反应器以致将反应器管竖立安装在反应器壳体内从而被反应器壳体包围,于是将反应器壳体的内部空间分为在反应器管内形成的内部区和在反应器壳体与反应器管之间形成的外部区,其中,在内部区存在硅颗粒床并且反应区和加热区包括于内部区内,而在外部区不存在硅颗粒床,也不发生硅沉积反应。

[0046] 任选地,将选自氢、氮、氩、氦及其混合物的组的惰性气体输入外部区,于是将外部区基本保持在惰性气氛中。

[0047] 在一个优选的实施方案中,将所述外部区压力 (P_o) 和内部区压力 (P_i) 之间的压差保持在 $0 \text{ 巴} \leq |P_o - P_i| \leq 1 \text{ 巴}$ 的范围内。

[0048] 任选地,将外部区压力 (P_o) 或内部区压力 (P_i) 保持在 1-20 巴 (绝压) 的范围内。

[0049] 任选地,除了内部加热器之外,还应用外部区中安装的辅助加热器加热内部区。

[0050] 任选地,所述辅助加热器的热负荷在内部加热器的热负荷的 10-100% 范围内。

[0051] 任选地,除了所述内部加热器之外,还通过微波加热内部区。

[0052] 为了达到本发明的目的,制备粒状多晶硅的流化床反应器包括:反应器管;包围反应器管的反应器壳体;用于将流化气体导向反应器管内形成的硅颗粒床底部的流化气体供给装置;在硅颗粒床内竖立安装的用于将硅沉积所需的反应气体输入硅颗粒床的反应气体供给装置,所以反应气体供给装置的反应气体出口位于高于流化气体供给装置处;在反应气体供给装置和反应器管内壁之间的空间安装的内部加热器;反应区和加热区,它们分别代表反应器管的上部空间和下部空间,将反应气体出口的高度选作参比高度;在反应器管,内部加热器和反应气体供给装置之间形成的空间,其中,通过内部加热器的电阻加热来加热流化气体和硅颗粒,所以将颗粒在反应区和加热区之间保持呈连续的、流化态相互混合;将废气排出流化床反应器的气体排放装置,所述废气包含流过反应区的流化气体,未反应的反应气体和反应副产物气体;以及将反应器管内通过硅沉积制备的硅颗粒的一部分作为硅产品颗粒排出流化床反应器的颗粒排放装置。

[0053] 任选地,可在一定的空间形成填充材料的填充床,它被包括在加热区内并且被反应器管内壁、所述流化气体供给装置、反应气体供给装置和内部加热器包围,是应用不被流化气体的流动而流化的填充材料形成的。

[0054] 在一个优选的实施方案中,将反应器管的内部区规定为内部区,其中存在硅颗粒床并且发生硅沉积反应,而将反应器管和反应器壳体之间的空间规定为外部区,其中不存在硅颗粒床,也不发生硅沉积反应。

[0055] 在一个优选的实施方案中,所述反应器壳体可由至少一种选自碳钢和不锈钢的金属制造。

[0056] 在一个优选的实施方案中,所述反应器管可由选自下组的单组分材料或多种材料制造:石英、二氧化硅、氮化硅、一氮化硼、碳化硅、石墨、玻璃碳、硅及其混合物。

[0057] 任选地,所述反应器管由单层或多层构成,它的各层沿厚度方向由不同材料制造。

[0058] 在一个优选的实施方案中,所述填充材料具有 5-50mm 的平均直径并且具有选自下组的形状:球体、珠、球、颗粒、碎片、块、椭球体、多面体、卵石、丸、环、小块及其混合物。

[0059] 在一个优选的实施方案中,所述内部加热器包括一个或多个加热单元。

[0060] 任选地,所述加热单元呈串联和 / 或并联被相互电连接。

[0061] 在一个优选的实施方案中,通过与反应器壳体耦合的电连接装置将所述加热单元与供电电源电连接。

[0062] 在一个优选的实施方案中,所述电连接装置包括在反应器壳体内部和 / 或外部安装的电极。通过该电极将所述加热单元呈串联和 / 或并联相互电连接。

[0063] 任选地,所述电极由金属或包含至少一种选自铜 (Cu)、铝 (Al) 和镉 (Cd) 的金属元

素的合金制造,或者由石墨制造,它的表面被作为碳化硅处理过。

[0064] 任选地,除了所述内部加热器之外,还在所述外部区安装辅助加热器。

[0065] 任选地,除了所述内部加热器之外,还与反应器壳体耦合安装波导管,它传输由微波发生器从电能产生的微波,或者微波发生器,从而将微波输入所述内部区加热其中的硅颗粒。

[0066] 在一个优选的实施方案中,所述流化气体供给装置包括一个呈隔栅、盘或锥形板的气体分配板或者气体分配组合件,它具有很多用于在加热区底部分配流化气体的孔和/或包括很多流化气体供应喷嘴。

[0067] 任选地,暴露于加热区的反应气体供给装置的截面呈同轴多管的形式构建,其中,供应反应气体的反应气体喷嘴被一个或多个喷嘴包围。

[0068] 任选地,所述颗粒排放装置呈与反应气体供给装置一起的同轴多管的形式构建或者呈与反应气体供给装置分开的独立形式构建。

[0069] 任选地,所述流化气体供给装置、反应气体供给装置、颗粒排放装置和/或填充材料由选自下组的物质制造:石英、二氧化硅、氮化硅、一氮化硼、碳化硅、石墨、硅、玻璃碳及其混合物。

[0070] 任选地,所述流化气体供给装置、反应气体供给装置、颗粒排放装置和/或填充材料由单组分材料或者多层构成,它的各层沿厚度方向由不同的材料制造。

[0071] 任选地,本发明的装置包括:用于保持外部区内基本为惰性气氛的惰性气体连接装置,用于检测和/或控制内部区的压力(P_i)和/或外部区的压力(P_o)的压力控制装置和/或用于将外部区的压力(P_o)和内部区的压力(P_i)之间的差保持在 $0 \text{ 巴} \leq |P_o - P_i| \leq 1 \text{ 巴}$ 的范围内的压差控制装置。

[0072] 任选地,将隔热材料装在所述外部区。

[0073] 在一个优选的实施方案中,包括于发生电阻加热的加热单元中的电阻元件呈具有圆形、椭圆形或多边形截面的棒、线、丝、杆、条或带的形式,或者呈具有同心圆形、椭圆形或多边形截面的导管、管、圆柱或管道形式,截面的形状和/或尺寸沿长度方向是均匀或可变的。

[0074] 任选地,所述电阻元件由选自石墨、碳化硅和硅的一种或两种材料制造。

[0075] 任选地,所述电阻元件由选自下组的金属或合金制造:钨(W)、铼(Re)、锇(Os)、钽(Ta)、钼(Mo)、铌(Nb)、铱(Ir)、钌(Ru)、锝(Tc)、铪(Hf)、铑(Rh)、钒(V)、铬(Cr)、锆(Zr)、铂(Pt)、钍(Th)、镧(La)、钛(Ti)、镱(Lu)、钇(Y)、铁(Fe)、镍(Ni)、镁(Mg)、铝(Al)及其混合物。

[0076] 任选地,所述电阻元件由选自下组的陶瓷金属制造:硅化钼(Mo-Si)、亚铬酸镧(La-Cr-O)、氧化锆及其混合物。

[0077] 在一个优选的实施方案中,通过在电阻元件外部安装保护管、在电阻元件表面形成一层或多层隔离层或者在其上形成隔离层后在电阻元件外部安装保护管来构建加热单元,以便防止电阻元件与硅颗粒直接接触。

[0078] 任选地,所述保护管在厚度方向具有同心圆形、椭圆形或多边形截面。

[0079] 任选地,所述隔离层和/或保护管包括1至5个隔离层,各层由不同的隔离组分制造。

[0080] 在一个优选的实施方案中,所述隔离组分包括防止杂质迁移到硅颗粒和 / 或流化气体迁移从电阻元件迁移的组分。

[0081] 在一个优选的实施方案中,所述隔离组分包括电绝缘组分。任选地,所述隔离组分包括硅 (Si) 或硼 (B) 的氮化物、氧化物、碳化物或氧氮化物。

[0082] 任选地,所述隔离组分包括氮化物、氧化物、硅化物、碳化物、氧氮化物或氧化硅,它包含至少一种选自下组的金属元素:钨 (W)、铼 (Re)、锇 (Os)、钽 (Ta)、钼 (Mo)、铌 (Nb)、铱 (Ir)、钌 (Ru)、铪 (Hf)、铑 (Rh)、钒 (V)、铬 (Cr)、锆 (Zr)、铂 (Pt)、钍 (Th)、镧 (La)、钛 (Ti)、钇 (Y)、铈 (Ce)、铁 (Fe)、镍 (Ni)、镁 (Mg)、铝 (Al) 及其混合物。

[0083] 任选地,所述隔离层的厚度在从 $1\ \mu\text{m}$ 至 5mm 范围内和 / 或所述保护管的厚度在从 1mm 至 20mm 范围内。

[0084] 任选地,所述隔离层还包括厚度在从 $1\ \mu\text{m}$ 至 5mm 范围内的硅层,硅是隔离组分。

[0085] 现在,参照附图更详细地描述本发明。

[0086] 如图 1 或图 2 中所示,本发明制备粒状多晶硅的方法基于竖立安装在反应器壳体 (1) 内的反应器管 (2),在反应器管 (2) 内存在硅颗粒 (3),并且它的内部空间包括反应区 (Z_r) 和加热区 (Z_h)。

[0087] 供给本发明的流化床反应器的气体包括:流化气体 (10),它从安装在硅颗粒床底部的流化气体供给装置 (14) 通过加热区 (Z_h) 流向反应区 (Z_r),以及反应气体 (11),它由反应气体供给装置 (15) 提供,通过反应气体出口流向反应区 (Z_r)。

[0088] 此外,在本发明的流化床反应器中,反应气体供给装置 (15) 的反应气体出口,安装该装置将硅沉积所需的反应气体 (11) 输入在提供流化气体 (10) 的流化气体供给装置 (14) 上形成的硅颗粒床,位于高于流化气体供给装置 (14) 的流化气体出口,于是可将反应器管 (2) 的内部区 (4) 中的上方和下方空间分别规定为反应区 (Z_r) 和加热区 (Z_h)。

[0089] 由于在反应气体供给装置 (15) 内流动的反应气体 (11) 应当处于低于初始分解温度的温度,它大约在 300 至 350°C 范围内,所以供给反应区 (Z_r) 的反应气体 (11) 温度应当低于硅沉积的反应温度,它在 600 至 $1,200^\circ\text{C}$ 范围内。

[0090] 按本发明,为保持反应温度而对于硅颗粒 (3) 和流化气体 (10) 的加热主要在加热区 (Z_h) 内进行,它在空间上与反应器管 (2) 内的反应区 (Z_r) 连通。

[0091] 进行硅沉积的流化床反应器的生产率由各种反应条件决定。在任何情况下,反应区 (Z_r) 的温度,或者在反应区 (Z_r) 内流化的硅颗粒 (3) 的温度,应当保持在预定的温度范围内。

[0092] 因此,考虑到伴随反应气体 (11) 供应的硅颗粒的冷却,硅沉积的反应热,反应器管 (2) 外部的热损耗等,需要大量的热从加热区 (Z_h) 迅速地传递到反应区 (Z_r) 以便保持硅沉积所需的反应温度。

[0093] 满足连续加热的需要的理想方式是在反应区 (Z_r) 装配加热器而直接加热。但是,该方法其实不可行,因为反应气体 (11) 与热的加热器表面接触导致在加热器表面过度的发生硅沉积。

[0094] 所以,为了改善流化床反应器的生产率同时在预定的反应温度、压力和气体组成下增大单位时间反应气体的供应量,要求满足加热区 (Z_h) 单位时间的热负荷。

[0095] 本发明致力于利用位于反应气体供给装置 (15) 和反应器管 (2) 内壁之间的加热

区 (Z_h) 内的内部加热器 (8a) 通过电阻加热来进行流化气体 (10) 和硅颗粒 (3) 的加热。

[0096] 本发明的特征还在于,以连续方式供给流化气体 (10),于是可呈连续的流化状态在反应区 (Z_r) 和加热区 (Z_h) 之间将硅颗粒相互混合。结果,供给加热区 (Z_h) 的热可被迅速地传递到反应区 (Z_r),并且可将反应区 (Z_r) 内的反应温度保持在预定的反应温度范围内。

[0097] 当按本发明通过加热区 (Z_h) 对反应区 (Z_r) 加热时,有可能利用反应气体供给装置 (15) 提供反应气体 (11),通过反应区 (Z_r) 内的硅沉积来制备大尺寸的硅颗粒。

[0098] 供给反应区 (Z_r) 的反应气体 (11) 的大部分或一部分通过反应被转化为反应副产物气体,但是有些可能仍然作为未反应的反应气体。

[0099] 因此,流过和离开反应区 (Z_r) 的废气包含流过加热区 (Z_h) 的流化气体 (10),未反应的反应气体 (11),反应副产物气体等,而且需要应用气体排放装置 (17) 将废气 (13) 排出流化床反应器,于是它不在所述内部区 (4) 内积聚。

[0100] 通过废气处理装置 (34) 分离废气 (13) 携带的细硅粉末或高分子量反应副产物。废气处理装置 (34) 可能包括旋风分离器、过滤器填料塔、涤气器、离心机或其组合。如图 2 或 3 中所示,可将它安装在反应器壳体 (1) 中的内部区的上部空间 (4c) 或者独立于流化床反应器而处于反应器壳体 (1) 外部。

[0101] 由废气处理装置 (34) 分离的硅粉末可用于其它目的或者可被再循环到反应器内部区 (4) 作为制备硅颗粒的晶种 (3a)。

[0102] 随着硅沉积的进行,硅颗粒 (3) 的平均尺寸和所述床的高度会增大。所以,为了连续地或半连续地制备粒状多晶硅同时保持硅颗粒床在许可的范围,需要利用颗粒排放装置 (16) 将一部分硅颗粒 (3) 作为硅产品颗粒 (3b) 排出流化床反应器。

[0103] 如上所述,本发明提供了应用流化床反应器制备粒状多晶硅的方法,其中,反应气体供给装置 (15) 的反应气体出口,它将硅沉积所需的反应气体 (11) 输入反应器壳体 (1) 内竖立安装的反应器管 (2) 内提供流化气体 (10) 的流化气体供给装置 (14) 上形成的硅颗粒床,位于高于流化气体供给装置 (14) 的流化气体出口,于是可将反应器管 (2) 的内部区 (4) 中的上部和下部空间分别规定为反应区 (Z_r) 和加热区 (Z_h),将反应气体出口处的高度选定为参比高度,并且所述方法包括如下步骤:利用反应气体供给装置 (15) 和反应器管 (2) 内壁之间的空间安装的内部加热器 (8a) 通过加热区 (Z_h) 中的电阻加热对流化气体 (10) 和硅颗粒 (3) 加热;以可使硅颗粒在反应区 (Z_r) 和加热区 (Z_h) 之间呈连续的、流化态相互混合的速率供给流化气体 (10),于是将反应区 (Z_r) 的反应温度保持在预定的反应温度范围内;利用反应气体供给装置 (15) 供给反应气体 (11),所以硅颗粒可通过反应区 (Z_r) 中的硅沉积发生生长;利用气体排放装置 (17) 将废气 (13) 排出流化床反应器,所述废气包含流过反应区 (Z_r) 的流化气体 (10),未反应的反应气体 (11) 和反应副产物气体;以及利用颗粒排放装置 (16) 将一部分硅颗粒 (3) 作为硅产品颗粒 (3b) 排出流化床反应器。

[0104] 在加热区 (Z_h) 内,由内部加热器 (8a) 加热向上流动的硅颗粒 (3) 和流化气体 (10)。因此,温度随高度而升高。

[0105] 通常,可将由安装在流化床反应器外部的预热器预热后的流化气体 (10) 输入流化气体供给装置 (14) 或者可将一个气体预热器安装在流化气体供给装置 (14) 上。另一方面,也可将室温下的流化气体 (10) 输入加热区 (Z_h) 并且由内部加热器 (8a) 对它加热。考虑到杂质污染、热损耗等,可将流化气体 (10) 预热至约 200-300°C 或更低。

[0106] 不考虑预热,需要将流化气体(10)在流过加热区(Z_h)时加热到反应温度或以上。因此,内部加热器(8a)的热负荷随流化气体(10)量的增大而增大。

[0107] 在供给流化气体(10)时,于是按本发明使硅颗粒在反应区(Z_r)和加热区(Z_h)之间呈连续的、流化态相互混合,加热区(Z_h)顶部的流化气体流速,或 u_h (cm/sec)值,应当至少高于平均尺寸的硅颗粒的最小流化速率(u_{mf})。

[0108] 为此,可增大单位时间供给加热区(Z_h)底部的流化气体(10)的量,或 F (mol/sec)值,于是从加热区(Z_h)对反应区(Z_r)提供更多的热。

[0109] 但是,如果 F (mol/sec)值增大过度,尽管内部加热器(8a)的热负荷不够大,也会难以将流化气体(10)加热到反应温度或以上。

[0110] 即使充分加热流化气体(10),由于内部加热器(8a)具有足够的热负荷,可将反应气体(11)与过剩的流化气体(10)混合,导致因反应区(Z_r)内硅颗粒的不必要的高度流化而引起的阻塞或其它问题,于是导致硅沉积反应的恶化。

[0111] 为了达到加热区(Z_h)顶部所需的 u_h 值与小的 F 值,可减小包围加热区(Z_h)的反应器管(2)的内径。但是,在该情况下,安装内部加热器(8a)、反应气体供给装置(15)、颗粒排放装置(16)等的空间可能不够。

[0112] 此外,小 F 值可能导致加热区(Z_h)内硅颗粒的流化不够,特别是在较冷的底部空间,内部加热器(8a)对流化气体(10)和硅颗粒(3)的加热不够以及流化气体(10)的不均匀流动。

[0113] 为了减小 F 值同时使这些问题最小化,需要迅速地将供给加热区(Z_h)的热传递到反应区(Z_r),同时将加热区(Z_h)的内部空间中流化气体(10)的流动截面空间减到最小。

[0114] 如图2中图解所示,可应用不被流化气体(10)的流动而流化的填充材料(22),在一定空间的一部分或全部形成填充床,该空间包括于加热区内并且被反应器管(2)的内壁、流化气体供给装置(14)、反应气体供给装置(15)和内部加热器(8a)包围,所以可在流化气体(10)流过所述填充床时将它加热。

[0115] 应用填充材料(22)在加热区(Z_h)内形成的填充床保证流化气体(10)被大致均匀地分散并且硅颗粒(3)和流化气体(10)在填充材料(22)之间形成的空间内接触的机会增大了。

[0116] 此外,填充材料(22)增大了内部加热器(8a)的表面积,于是能更有效地加热硅颗粒(3)和流化气体(10)并且使从加热区(Z_h)至反应器壳体(1)底部传递的热最小化。

[0117] 另外,如图2中图解所示,在硅沉积操作期间,滞留于或者通过填充材料(22)之间形成的空间之后,可根据需要从加热区(Z_h)将硅颗粒作为硅产品颗粒(3b)间歇地、定期地或连续地排出流化床反应器。

[0118] 这大为增加硅产品颗粒(3b)被处于加热区(Z_h)底部的流化气体供给装置(14)提供的流化气体(10)冷却的机会,于是减轻进一步冷却硅产品颗粒(3b)的负担。

[0119] 不可能确定连续地流化硅颗粒的反应区(Z_r)的单一温度,于是观察到温度波动。所以需要根据预定的、许可的范围代替特定的值来处理反应温度。

[0120] 按本发明,内部加热器(8a)应当能对加热区(Z_h)中的硅颗粒(3)和流化气体(10)加热,所以反应区(Z_r)的反应温度可保持在600至1,200°C的温度。

[0121] 容易从关于不同的压力和温度、组分和组成、流化气体(10)和反应气体(11)的供

应速率和预热温度、反应温度检测标准等的初步试验来预先确定更具体的反应温度范围。

[0122] 可根据多种方法测定反应温度。例如,反应区 (Z_r) 内部、反应器管 (2) 外壁或反应器顶部的温度可应用热电偶或高温计这样的测量器件直接测定。另一方面,可通过分析废气 (13) 的组成而间接估测反应温度。

[0123] 为了将反应区 (Z_r) 中的反应温度保持在预定的范围,优选将加热区 (Z_h) 中的流化气体 (10) 和硅颗粒 (3) 加热到高于反应温度的温度。

[0124] 至于加热区 (Z_h) 的电加热,内部加热器 (8a) 可能包括一个或多个加热单元,各加热单元包括发生电阻加热的电阻元件。

[0125] 图 1、2 和 5 分别阐释了包括两个加热单元的内部加热器 (8a)。如果可达到更大的空间,可安装更多的加热单元以增大热负荷。

[0126] 由于各个加热单元必须与硅颗粒床中的硅颗粒 (3) 和流化气体 (10) 接触,所以重要的是最小化或防止制备高纯多晶硅的电阻元件 (38) 对所述颗粒的污染。

[0127] 为了防止本发明中电阻元件 (38) 对硅颗粒 (3) 的污染或将该污染最小化,(i) 将电阻元件 (38) 配备一个保护管 (40);(ii) 在电阻元件 (38) 的表面形成一层或多层隔离层 (39),各层由不同的隔离组分制造;或者(iii) 在已经形成了隔离层 (39) 的电阻元件 (38) 外部形成保护管 (40)。

[0128] 由于加热区 (Z_h) 顶部的温度高于流化气体供给装置 (14) 的流化气体出口处的温度,所以按本发明,即使以让硅颗粒在反应区 (Z_r) 和加热区 (Z_h) 之间呈连续的、流化态相互混合的流速提供流化气体 (10),也不可能流化加热区 (Z_h) 底部的硅颗粒。

[0129] 在本发明中,硅颗粒 (3) 的流化表示可在短时间由气体流动、气泡的运动或改变和/或相邻颗粒的运动引起硅颗粒的空间位置变化。

[0130] 通常将不与硅颗粒明显地反应的非反应性气体用作流化气体 (10),它可选自氢、氮、氩、氦或其混合物。

[0131] 流化气体 (10) 可能还包含比非反应性气体密度更大和更稠密的气体组分。具体地说,基于 Si-H-Cl 的氯化物例如四氯硅烷 (SiCl_4)、三氯硅烷 (SiHCl_3)、二氯硅烷 (SiH_2Cl_2)、氯化氢 (HCl) 等可用于该目的。

[0132] 当流化气体 (10) 包含非反应性气体和氯组分时,需要通过热力学平衡分析或初步试验来确定许可的浓度范围,以免在加热区 (Z_h) 中可达到的温度范围内明显发生高纯硅颗粒 (3) 与流化气体 (10) 之间的硅沉积或硅蚀刻。

[0133] 因此,本发明应用的流化气体 (10) 可能包含一种或多种选自下列的组分:氢、氮、氩、氦、四氯硅烷、三氯化硅、二氯化硅和氯化氢。

[0134] 输入反应区 (Z_r) 的反应气体 (11) 是通过硅沉积形成粒状多晶硅的硅元素的来源,所以它应当包括含硅组分。

[0135] 用于本发明的反应气体 (11) 可能包含一种或多种选自甲硅烷 (SiH_4)、二氯硅烷 (SiH_2Cl_2)、三氯硅烷 (SiHCl_3) 和四氯硅烷 (SiCl_4) 的组分作为含硅组分。

[0136] 虽然用于本发明的反应气体 (11) 可能仅仅包含前述硅烷化合物等作为硅沉积源,但是它可能还包含至少一种选自下组的物质:氢、氮、氩、氦、氯化氢 (HCl) 及其混合物。因此,反应气体 (11) 提供硅沉积源,作用于反应区 (Z_r) 内硅颗粒 (3) 随流化气体 (10) 的流化。

[0137] 在按本发明连续地或半连续地制备粒状多晶硅时,要求将构成流化床的硅颗粒(3)的数量和平均粒径保持在一定的范围。所以,优选的是对反应器管(2)的内部区(4)提供相应于作为产品排放的硅产品颗粒(3b)的数量的晶种(3a)。

[0138] 如前所述,由废气处理装置(34)分离的硅粒化物或粉末可作为晶种被再循环。但是由于量有限和尺寸太小,必然要进一步制备硅晶种而连续生产硅产品。

[0139] 在这方面,可考虑分离硅颗粒与小尺寸颗粒(3b)和将它们用作晶种(3a)。可是,由于杂质污染的可能性,在流化床反应器外分离小尺寸晶种(3a)与产品颗粒(3b)的方法复杂并且需要小心处理。

[0140] 代替这种另外分离产品颗粒(3b)的方法,还可能包括沿颗粒排放装置(16)的颗粒排放路径分类的方法,所以可通过向上流动的气流冷却产品颗粒(3b)而小尺寸硅颗粒返回硅颗粒床,于是减小晶种供应的负担,增大产品颗粒(3b)的平均粒径并且使粒径分布变窄。

[0141] 从硅产品颗粒(3b)制备晶种(3a)的常规方法是利用分散装置将从颗粒排放装置(16)排放的一些硅产品颗粒(3b)粉碎。可利用晶种供给装置(18)将所得硅晶种(3a),已经在流化床反应器外制备了它们,供入反应器管。

[0142] 如图2中所示,需要时,与反应器壳体(1b)耦合安装的晶种供给装置(18)能将晶种(3a)连续地、定期地或间歇地供给反应器内部区(4)。这是有利的,因为可根据需要控制晶种(3a)的尺寸和进料速率,但是需要另外的粉碎装置。

[0143] 相比之下,可利用反应气体供给装置(15)上安装的反应气体供应喷嘴,流化气体供给装置(14)上安装的流化气体供应喷嘴,或者单独安装的颗粒粉碎气体喷嘴在硅颗粒床内部产生高速气流,为的是将硅颗粒床内部的硅颗粒粉碎成晶种。

[0144] 这种在内部区(4)制备晶种(3a)的方法的有利之处在于,即使在气体喷嘴出口的次超声(sub-ultrasonic)气体速率下也容易粉碎硅颗粒,因为硅颗粒的温度足够高而容易粉碎。该方法的优点在于,可在硅颗粒床内经济地制备晶种(3a),于是无需粉碎装置。然而,难以根据需要控制晶种(3a)的尺寸和制备速率,还可能大量产生不能用作晶种(3a)的细粉末。

[0145] 如前所述,制备和提供硅晶种(3a)的各种方法都有优缺点。优选地,晶种(3a)的平均尺寸约为0.2-0.8mm,它相当于产品颗粒(3b)的尺寸的一半或更小。

[0146] 如果晶种(3a)的平均尺寸小于0.2mm,可减小供给的晶种(3a)的量,但是晶种(3a)可容易被流化气体(10)、反应气体(11)或废气(13)带走。相比之下,如果平均尺寸大于0.8mm,必须供给过分大量的晶种(3a)。

[0147] 为了改善反应区(Z_r)内硅颗粒(3)的生长速率,于是使产品颗粒(3b)的生产率最大化,应当将反应区(Z_r)内的反应温度保持在预定的反应温度以内。

[0148] 为此,需要设置单位时间供给加热区(Z_h)的流化气体(10)的进料速率,或 $F(\text{mol}/\text{sec})$ 值,所以可使硅颗粒在反应区(Z_r)和加热区(Z_h)之间呈连续的、流化态相互混合而不用太大的进料速率。

[0149] 硅颗粒床内颗粒的流化程度不但由温度,还由反应气体(11)的进料速率决定。所以,优选的是将流化气体(10)的流速($u; \text{cm}/\text{sec}$)设定在不供给反应气体(11)时反应温度范围内的最小流化态的流速(u_{mf})。这相应于 F 值由 F_{mf} 表示时的情况。

[0150] 按本发明,优选的是,单位时间输入加热区(Z_h)的流化气体(10)进料速率(F ; mol/sec)在最小流化态时进料速率(F_{mf})的1.0-5.0倍范围内,最小流化态是不供给反应气体时反应温度范围内反应区(Z_r)中的硅颗粒开始被流化的状态。

[0151] 如果 F 值小于 F_{mf} ,流化气体(10)的进料速率和内部加热器(8a)的热负荷都减小,但是加热区(Z_h)的加热速率减小并且两个区(Z_h , Z_r)中的颗粒相互混合不充分,于是减小了传热效率并且使得难以保持反应温度。

[0152] 相比之下,如果 F 值大于 $5F_{mf}$,加热区(Z_h)的加热速率可能增大,但是内部加热器(8a)的热负荷增大并且由于反应区(Z_r)内的过高气流速率引起的阻塞导致硅沉积的效率大为减小。

[0153] 可呈各种结构构建安装在硅颗粒床内的反应气体供给装置(15),只要它对反应区(Z_r)稳定地供给反应气体(11)即可。

[0154] 例如,反应气体供给装置(15)可能仅仅包括一个安装在加热区(Z_h)的管式反应气体喷嘴。如果通过内部加热器(8a)的辐射或者与热的硅颗粒(3)接触来加热喷嘴的壁,喷嘴的内壁温度应当保持高于约300-350°C,它是初始分解温度。这自然引起硅沉积和它在喷嘴内壁的积聚。还有,如果呈单管的形式安装,喷嘴可能由硅颗粒(3)的流化引起的冲击和/或振动而损坏。

[0155] 为了防止这些问题,反应气体供给装置(15)可能包括一个提供反应气体(11)的反应气体喷嘴和一个或多个呈同轴多管结构的喷嘴,如图2或图4中的图解阐释。一个或多个喷嘴围绕反应气体喷嘴并且提供对反应气体喷嘴的保护。

[0156] 如图2中所示,可导入包含一种或多种选自氢、氮、氩和氦的组分的惰性气体(12)作为沿同轴多管的中心保护反应气体喷嘴的气体,是为了防止硅沉积物在反应气体喷嘴的内壁积聚和补充机械易损坏性。

[0157] 保护反应气体喷嘴的气体的进料速率与流化气体(10)或反应气体(11)的速率相比可能很低。即使当同轴多管的圆形区存在硅颗粒时,保护反应气体喷嘴的气体也可防止反应气体喷嘴的不需要的过热。

[0158] 此外,还可能防止硅沉积物在反应气体喷嘴的出口处积聚或者通过在供给保护反应气体喷嘴的惰性气体(12)中连续地、间歇地或定期地添加氯化氢(HCl)以除去已经形成的硅沉积物。如果为此提供太多的氯化氢,甚至加热区(Z_r)中的硅颗粒(3)还可被汽化为氯硅烷。所以,关键的是供应的氯化氢不能过量。

[0159] 当按本发明由安装在加热区(Z_h)中的内部加热器(8a)加热流化床反应器时,与常规加热方法相比可提供给反应区(Z_r)更多的热。因此,通过增大高压下单位时间反应气体(11)的进料速率,可大为改善流化床反应器的生产率。

[0160] 至于高压下的硅沉积,除了加热方法的改善之外,还需要保证流化床反应器的机械稳定性,特别是暴露于流化床的热硅颗粒的反应器管(2)的机械稳定性。

[0161] 在本发明中,就高压下的硅沉积来说,这样构建流化床反应器以致将反应器管(2)竖立安装在反应器壳体(1)内,于是反应器管(2)被反应器壳体(1)包围,如图2、图3和图4中所示。然后,将反应器管的内部空间规定为内部区(4),其中,存在硅颗粒(3)床而且加热区(Z_h)和反应区(Z_r)都被包括在内。此外,将外部区(5)规定为反应器管(2)和反应器壳体(1)之间的空间,其中,不存在硅颗粒床而且不发生硅沉积。

[0162] 由反应器管 (2) 分割反应器壳体 (1) 的内部空间的原因是, 如果反应器管 (2) 两侧之间的压差小, 即使在高反应压力下也可保证反应器管 (2) 的机械稳定性。

[0163] 此外, 在高压下的硅沉积期间, 为了防止内部区 (4) 中存在的硅颗粒被出自外部区 (5) 的杂质污染, 将选自氢、氮、氩、氦及其混合物的惰性气体 (12) 导入外部区 (5) 而将外部区 (5) 保持在惰性气氛中, 如图 3 和图 5 中所示。

[0164] 无需提供过量的惰性气体 (12) 从而将外部区 (5) 保持在完全的惰性气氛中并且控制压力。

[0165] 因此, 可通过对外部区 (5) 连续地、间歇地或定期地提供少量惰性气体 (12) 达到惰性气体在外部区 (5) 中的流动。

[0166] 按本发明, 如果外部区 (5) 的压力和内部区 (4) 的压力分别以外部区压力 (P_o) 和内部区压力 (P_i) 表示, 将两个区之间的压差, $\Delta P = |P_o - P_i|$, 保持在 1 巴范围内以便保证高反应压力下硅沉积操作期间反应器管 (2) 的机械稳定性。

[0167] 这样, 可无限地增大 P_i 或 P_o 值而不影响反应器管 (2) 的稳定性。但是, 如果绝对反应压力超过约 20 巴, 内部加热器 (8a) 所需的热负荷对于单位时间流化气体 (10) 和反应气体 (11) 的进料速率 (mol/sec) 来说变得太大, 使得其实不可能保持反应温度。

[0168] 由此, 在本发明的流化床反应器的加热中, 优选将外部区压力 (P_o) 或内部区压力 (P_i) 保持在 1-20 巴绝压的范围内。

[0169] 利用具有很大直径反应器管 (2) 的大规模流化床反应器在高压下的硅沉积操作中, 如果仅仅利用内部加热器 (8a) 难以保持反应温度, 除了在内部区 (Z_h) 安装的内部加热器 (8a) 以外, 还可在外部区 (5) 安装辅助加热器 (3b), 从而对内部区 (Z_h) 加热。

[0170] 图 3 和图 4 图解阐释了除在内部区 (Z_h) 安装的内部加热器 (8a) 以外, 还在外部区 (5) 中安装的辅助加热器 (3b)。

[0171] 当在内部区 (4) 中安装辅助加热器 (3b) 用于在硅沉积期间进一步加热时, 优选的是辅助加热器 (8b) 的热负荷不超过内部加热器 (8a) 的热负荷的 100%, 因为在反应器管 (2) 外部安装的辅助加热器 (3b) 比硅颗粒床内安装的内部加热器 (8a) 具有更差的加热效率。

[0172] 如果辅助加热器 (8b) 的热负荷小于内部加热器 (8a) 的热负荷的 10%, 辅助加热器 (8b) 的添加在对内部区 (Z_h) 加热时不提供显著的效果或者不被认为是经济的。

[0173] 所以, 当在外部区 (5) 安装辅助加热器 (8b) 供硅沉积用时, 优选的是辅助加热器 (8b) 的热负荷是安装于内部区 (Z_h) 的内部加热器 (8a) 的热负荷的 10 至 100% 范围内。

[0174] 但是, 不考虑硅沉积期间辅助加热器 (8b, 8b') 的应用, 在将反应气体供给反应区 (5) 和 / 或选择性地加热硅沉积物 (D) 以前, 在开始操作反应器过程中可将辅助加热器 (8b, 8b') 用于加热硅颗粒 (3) 床, 硅沉积物 (D) 是在硅沉积物去除操作以前或操作期间, 在沉积操作期间在反应器管 (2) 内壁积聚的。

[0175] 图 3 和图 4 图解阐释了一个实例, 其中, 在硅沉积操作期间在围绕反应区 (Z_r) 的反应器管 (2) 内壁呈硅沉积物 (D) 形式发生硅沉积。当利用安装在外部区 (5) 的辅助加热器 (8b) 加热反应区 (Z_r) 中的反应器管 (2) 的壁时, 硅沉积物 (D) 的形成速率变得太快。

[0176] 因此, 当应用辅助加热器 (8b) 时, 更好的是将辅助加热器 (8b) 的高度降到低于加热区 (Z_h) 的高度, 即, 反应气体出口处的高度, 所以不通过辅助加热器 (8b) 不必要地加热

包围存在反应气体 (11) 的反应区 (Z_r) 的反应器管壁。

[0177] 代替在外部区 (5) 安装辅助加热器 (8b), 除了在加热区 (4) 内安装的内部加热器 (8a) 对内部区 (4) 供热之外, 还可能对内部区 (4) 提供电磁辐射能来加热硅颗粒 (3)。

[0178] 至于具有大直径反应器管 (2) 的流化床反应器, 微波是各种形式的电磁辐射能中最有效的形式。

[0179] 当按本发明利用微波 (37) 与内部加热器 (8a) 一起用于对反应器内部区 (4) 加热时, 可呈多种方法实现微波 (37) 的供给。

[0180] 例如, 可将金属波导管 (36) 与反应器壳体 (1) 连接, 波导管 (36) 传输由微波发生器 (35) 如磁控管从电能产生的微波 (37)。另一方面, 不用波导管, 可与反应器壳体 (1) 耦合安装一个或多个微波发生器 (35) 而将微波 (37) 供给内部区 (4) 来加热硅颗粒 (3)。

[0181] 这样, 除了加热区 (Z_h) 的内部空间安装的内部加热器 (8a) 之外, 还可能利用反应器外部或反应器壳体 (1) 内部产生的微波 (37) 来加热内部区 (4)。

[0182] 至于内部区 (4) 的微波加热, 可从内部区 (4) 的顶部将微波 (37) 输入反应区 (Z_r) 或者通过反应器管 (2) 的微波可透过壁将微波传输入加热区 (Z_h)。

[0183] 此外, 微波发生器 (35) 或波导管 (36) 可位于反应器壳体 (1) 的任何位置而不受限制。

[0184] 如图 5 中的图解阐释, 可将微波发生器 (35a) 产生的微波 (37) 通过与反应器壳体 (1) 连接的波导管 (36) 传输入反应器并且通过反应器管 (2) 的微波可透过壁供入加热区 (Z_h)。另一方面, 不用波导管 (36), 可通过与反应器壳体 (1) 耦合安装在外部区 (5) 的微波发生器 (35b) 在反应器壳体 (1) 内产生微波并且通过反应器管 (2) 的壁供给加热区 (Z_h) 和 / 或反应区 (Z_r)。

[0185] 与在外部区 (5) 安装或利用辅助加热器 (8b) 无关, 在将反应气体供给反应区 (5) 或选择性地加热硅沉积物 (D) 以前, 在开始操作反应器过程中可利用微波加热方法来加热硅颗粒 (3) 床, 硅沉积物 (D) 是在硅沉积物去除操作以前或操作期间, 在沉积操作期间在反应器管 (2) 内壁积聚的。

[0186] 下文, 参照附图详细描述用于制备粒状多晶硅以达到本发明的目的的流化床反应器。

[0187] 在本发明的流化床反应器中, 由反应器壳体 (1) 隔离反应器的内部空间与反应器的外部空间。

[0188] 反应器壳体 (1) 包括竖立安装在反应器的内部空间的反应器管

[0189] (2)。

[0190] 优选地, 反应器壳体 (1) 由至少一种选自碳钢和不锈钢或另外还包含过渡金属元素的各种合金的金属制造, 所以, 它具有优良的机械强度和良好的加工性。

[0191] 考虑到设备制造、装配和拆卸, 反应器壳体 (1) 可能包括几个组件, 如图 1 至 4 中列举的 1a、1b、1c、1d 等。

[0192] 重要的是利用衬垫或密封材料装配反应器壳体 (1) 的组件, 所以反应器内部可与外部空间完全隔离。

[0193] 反应器壳体 (1) 的各个组件可能具有不同的形式, 包括圆柱形管、法兰、管和接头、板、圆锥体、椭球体或夹套。

[0194] 各金属组件可在内表面配备保护性涂层、衬里或保护壁。保护性涂层、衬里或保护壁可由金属材料或非金属材料如有机聚合物、陶瓷、石英等构成。

[0195] 如图 1 至 4 中列举的 1a、1b、1c、1d 等, 优选应用冷却介质如水、油、气体、空气等将反应器壳体 (1) 的一些组件保持在低于预定范围的温度, 是为了设备保护、防止热膨胀、操作器保护、防止突发事件等。

[0196] 虽然在图中没有阐释, 可将反应器壳体 (1) 的组件设计成可使冷却介质在组件内部或外部循环。代替这样的冷却, 为了操作器保护和防止过多的热损耗, 可在反应器壳体 (1) 的外表面进一步装备隔热材料。

[0197] 用于本发明的反应器管 (2) 可以是任何形式的, 只要它可以被反应器壳体 (1) 固定即可。

[0198] 反应器管 (2) 可能是简单的直形管, 如图 1 至 3 中所示, 或者是包括管形、圆锥形和 / 或椭球形部件。如图 4 中图解所示, 可将反应器管的一端加工成法兰形。另外, 反应器管 (2) 可能由多个部件构成, 它们的一些可能呈线形安装在反应器壳体 (1) 的内壁。

[0199] 优选地, 反应器管 (2) 由能够耐高温形变的无机材料制造。该材料可由选自下组的单组分材料或多组分材料制造: 石英、二氧化硅、氮化硅、一氮化硼、碳化硅、石墨、玻璃碳、硅及其混合物。

[0200] 由于如碳化硅、石墨、玻璃碳等这样的含碳材料可能污染多晶硅颗粒, 所以可通过涂布或内衬反应器管 (2) 的内壁而沿反应器管 (2) 的厚度方向形成多层, 当含碳材料被用于反应器管时, 它们可能以例如硅、二氧化硅、石英、氮化硅等这样的材料接触硅颗粒 (3, 3a, 3b)。

[0201] 因此, 用于本发明的反应器管 (2) 可能包括呈单组分材料形式的材料, 即, 单层或多层, 它的各层沿厚度方向由不同的材料制造。

[0202] 在反应器管 (2) 的内部区 (4), 在提供流化气体 (10) 的流化气体供给装置 (14) 上形成硅颗粒床。

[0203] 硅颗粒 (3) 具有各种形式, 包括球形、椭球体、多面体、珠状、颗粒、碎屑、碎片等。

[0204] 可通过粉碎硅颗粒 (3) 获得的晶种 (3a) 主要呈半球形、半椭球体、半多面体、具有锐利边沿的碎屑或碎片。但是, 随着硅沉积的进行, 粒径增大并且锐利的边沿变得更平滑。

[0205] 如果延长硅沉积时间使粒径进一步增大, 颗粒最后变得与球形相似。

[0206] 由于需要提供反应气体 (11) 使硅沉积成硅颗粒床, 与反应器壳体 (1) 耦合的, 提供反应气体 (11) 的反应气体供给装置 (15) 的一部分要求延伸到硅颗粒床内部。

[0207] 可能包括一个或多个相同的反应气体供应单元的反应气体供给装置 (15), 还应当与位于反应器外部的反应气体制备和 / 或贮存和 / 或供应系统连接。

[0208] 因此, 本发明的反应气体供给装置 (15) 除了处于硅颗粒床中的部分以外, 还包括位于在反应器管 (2) 的外部 and / 或反应器壳体 (1) 的内部和外部空间的部分。

[0209] 在反应气体供给装置 (15) 中, 处于硅颗粒床中的部分可与反应器管 (2) 竖直地或倾斜地连接。

[0210] 但是, 考虑到反应器管 (2) 和反应气体供给装置 (15) 的机械稳定性与安装和拆卸反应器的容易性, 反应气体供给装置 (15) 优选竖直地安装在硅颗粒床中。

[0211] 安装在反应气体供给装置 (15) 上的一个或多个反应气体出口位于安装在流化气

体供给装置 (14) 上的一个或多个流化气体出口的上方。

[0212] 所以,可将反应器管 (2) 的内部区 (4) 分为上部空间和下部空间,以反应气体出口为参比高度。内部区 (4) 的上部空间和下部空间分别被规定为反应区 (Z_r) 和加热区 (Z_h)。

[0213] 在本发明的流化床反应器中,在反应区 (Z_r) 内硅颗粒 (3) 的表面的硅沉积操作期间发生硅沉积,其中存在反应气体 (11) 并且在流化气体 (10) 流过的加热区 (Z_h) 内将流化气体 (10) 和硅颗粒 (3) 加热。

[0214] 这样,根据内部区 (4) 的结构,反应区 (Z_r) 和加热区 (Z_h) 的功能不同,并且基于反应器管 (2) 的内部空间的高度来确定。所以,无需除反应气体供给装置 (15) 以外的其它机械装置将两个区物理分离。

[0215] 因此,由加热区 (Z_h) 底部的流化气体供给装置 (14) 供给的流化气体 (10) 流过加热区 (Z_h) 后向上流向反应区 (Z_r)。

[0216] 在本发明中,在反应器管 (2)、内部加热器 (8a) 和反应气体供给装置 (15) 之间形成的空间,其中通过内部加热器 (8a) 的电阻加热将流化气体 (10) 和硅颗粒 (3) 加热,所以使颗粒在反应区和加热区之间保持呈连续的、流化态相互混合。所以,将对于流化气体 (10) 和硅颗粒 (3) 加热的内部加热器 (8a) 安装在反应气体供给装置 (15) 和反应器管 (2) 的内壁之间,内部加热器 (8a) 的高度不高于反应气体出口处的高度。因此,内部加热器 (8a) 不直接接触反应气体 (11),并且硅不在内部加热器 (8a) 的热表面沉积或积聚。

[0217] 在应用流化床反应器连续或半连续制备多晶硅时,要求排出供给反应器的气体和从所述沉积产生的气体,所以,它们不能在反应器管 (2) 的内部积聚。

[0218] 同样,需要将通过硅沉积在反应器管 (2) 内制备的硅颗粒 (3) 的一部分作为硅产品颗粒 (3b) 排出流化床反应器,所以不能让过多的硅颗粒 (3) 积聚在反应器管 (2) 内。

[0219] 所以,需要将废气 (13) 排出流化床反应器的气体排放装置 (17),所述废气包含流过反应区 (Z_r) 的流化气体 (10),未反应的反应气体 (11) 和反应副产物气体,以及将通过硅沉积在反应器管 (2) 内制备的部分硅颗粒 (3) 作为硅产品颗粒 (3b) 排出流化床反应器的颗粒排放装置 (16)。

[0220] 如前所述,本发明的流化床反应器包括:反应器管 (2);包围反应器管 (2) 的反应器壳体 (1);用于将流化气体 (10) 输入反应器管 (2) 内形成的硅颗粒床底部的流化气体供给装置 (14);竖直安装在硅颗粒 (3) 床内用于将硅沉积所需的反应气体 (11) 输入硅颗粒 (3) 床的反应气体供给装置 (15),所以反应气体供给装置 (15) 的反应气体出口处的高度可位于高于流化气体供给装置 (14);安装在反应气体供给装置和反应器管 (2) 内壁之间的空间内的内部加热器 (8a);反应区 (Z_r) 和加热区 (Z_h),它们分别代表反应器管 (2) 的上部空间和下部空间,将反应气体出口的高度选作参比高度;在反应器管 (2),内部加热器 (8a) 和反应气体供给装置 (15) 之间形成的空间,其中,通过内部加热器 (8a) 的电阻加热将流化气体 (10) 和硅颗粒 (3) 加热,所以将颗粒在反应区 (Z_r) 和加热区 (Z_h) 之间保持呈连续的、流化态相互混合;将废气 (13) 排出流化床反应器的气体排放装置 (17),所述废气包含流过反应区 (Z_r) 的流化气体 (10),未反应的反应气体和反应副产物气体;以及将反应器管内通过硅沉积制备的一部分硅颗粒 (3) 作为硅产品颗粒 (3b) 排出流化床反应器的颗粒排放装置 (16)。

[0221] 如前所述,在部分或全部加热区 (Z_h) 内可用不被流化气体 (10) 的流动而流化的

填充材料 (22) 形成填充床, 所以流化气体 (10) 可在流过填充床时被加热。

[0222] 在将填充材料 (22) 用于流化床反应器的情况下, 需要在被反应器管 (2) 内壁、流化气体供给装置 (14)、反应气体供给装置 (15) 和内部加热器 (8a) 包围的空间的全部或部分内形成填充床。

[0223] 优选地, 用于本发明的填充材料 (22) 具有在 5-50mm 范围内的平均直径 (D_f)。

[0224] 如果 D_f 值小于 5mm, 需要的填充材料 (22) 的数量太大, 所以填充材料 (22) 之间的空间变得太小, 使得硅颗粒 (3) 和流化气体 (10) 的流动困难。

[0225] 反之, 如果 D_f 值大于 50mm, 需要的填充材料 (22) 的数量太小, 安装内部加热器 (8a) 的加热区 (Z_h) 的空间变得不够, 所以应用填充材料 (22) 的优点如流化气体 (10) 的扩散大受影响。

[0226] 填充材料 (22) 可呈选自球体、珠、球、颗粒、碎片、块、椭球体、多面体、卵石、丸、环、小块等的任何形式。

[0227] 优选地, 填充材料 (22) 由选自下组的一种或多种组分制造: 石英、二氧化硅、氮化硅、一氮化硼、碳化硅、石墨、玻璃碳、硅及其混合物以防硅颗粒 (3) 和流化气体 (10) 被填充材料 (22) 污染。

[0228] 最优选的是, 填充材料 (22) 是加工成球形的高纯硅。

[0229] 在填充材料 (22) 包含如碳化硅、石墨、玻璃碳等这样的含碳组分的情况下, 硅颗粒 (3) 和流化气体 (10) 可能被碳杂质污染。所以, 当填充材料 (22) 包含有含碳物质时, 其表面可用硅、二氧化硅、石英、氮化硅等这样的材料涂布或贴面而沿填充材料 (22) 的厚度方向形成多层, 它的各层由不同的材料制造。

[0230] 因此, 用于本发明的填充材料 (22) 可能由呈单组分材料或多层构成, 它的各层沿厚度方向由不同的材料制造。

[0231] 如果填充材料 (22) 具有多孔结构, 它们就变得易受撞击和被磨损而形成粒化杂质。所以, 优选的是填充材料 (22) 都具有高密度从而使至少材料表面上的孔减到最少。

[0232] 用于本发明的填充材料 (22) 的材料、结构、表面处理和制备方法优选应用小规模模拟装置通过杂质污染和最佳条件的实验检验, 以及物理性质和机械强度的检测来确定。

[0233] 应用本发明的反应器加热方法, 可容易供给反应区 (Z_r) 所需的热。因此, 可通过增大高压下单位时间反应气体 (11) 的进料速率 (mol/sec) 大为改善流化床反应器的生产率。

[0234] 就高压下的硅沉积来说, 除了加热方法的改善, 还需要保证流化床反应器的机械稳定性, 特别是连续暴露于流化床中的热硅颗粒的反应器管 (2) 的机械稳定性。

[0235] 在本发明中, 作为能在高压下进行硅沉积的方法, 这样构建流化床反应器以致将反应器管 (2) 竖直安装在反应器壳体 (1) 内, 于是反应器管 (2) 被反应器壳体 (1) 包围, 如图 2、图 3 和图 4 中图解所示。所以, 将反应器管 (2) 的内部空间规定为内部区 (4), 其中存在硅颗粒 (3) 床并且加热区 (Z_h) 和反应区 (Z_r) 都被包括在内。此外, 将反应器管 (2) 和反应器壳体 (1) 之间的空间规定为外部区 (5), 其中不存在硅颗粒床, 也不发生分解。

[0236] 由反应器管 (2) 分割反应器壳体 (1) 内部空间的原因在于, 如果反应器管 (2) 两侧之间的压差小, 即使在高反应压力下也可保证反应器管 (2) 的机械稳定性。

[0237] 在加热区 (Z_h) 中安装的内部加热器 (8a) 可能包括一个或多个加热单元。

[0238] 由于改善反应器的生产率所要求的加热区 (Z_h) 的热负荷随加热区 (Z_h) 的内部空

间安装的加热单元数量的增大而增大,或者随内部加热器(8a)的表面的增大而增大,所以在加热区(Z_h)中需要安装的加热单元的数量没有特别限制,只要它们的安装空间许可就行。

[0239] 当内部加热器(8a)包括多个加热单元时,加热单元在电方面可能彼此独立。但是,更有效和更经济的是将它们呈串联和/或并联方式电连接。

[0240] 图1和图2列举了内部加热器(8a)包括两个加热单元的情况,加热单元分别独立地与电源(E)连接以及呈串联与电源(E)相互连接。如果加热区(Z_h)更宽,可安装更多的加热单元以增大热负荷。

[0241] 加热单元通过电连接装置(9,9a,9')与电源(E)电连接,所述电连接装置与反应器壳体(1)耦合安装并且使反应器可通过电阻加热来加热。

[0242] 安装在流化床反应器外部的电源(E)可选自电转换器、开关盒、检测和/或控制器件等的一个或多个。供给内部加热器(8a)的电流可能是DC或AC。通常,电流强度在数百至数千安培的范围。

[0243] 优选地,控制从电源供给内部加热器(8a)的电力,所以将反应区(Z_r)和/或加热区(Z_h)的温度保持在预定的范围。

[0244] 关于每个加热单元,与反应器壳体(1)耦合安装以提供内部加热器(8a)与电源(E)电连接的电连接装置(9,9a,9')可被独立安装。另一方面,可将它与几个和全部加热单元连接安装。

[0245] 在本发明中,在电阻加热期间,与反应器壳体(1)耦合安装的电连接装置(9,9a,9'),优选不被加热到高温。

[0246] 因此,建议电连接装置(9,9',9a)包括能减小自发电阻加热或冷却到低于预定温度的电极。该电极可安装在反应器壳体(1)的内部和/或外部的任何地方,只要它与所述加热单元电连接即可。

[0247] 为了通过对加热单元提供电进行电阻加热,可将加热单元与一对电极连接。多个加热单元可通过相应的电极彼此电连接。

[0248] 所以,本发明的电连接装置(9,9a,9')包括安装在反应器壳体(1)的内部和/或外部的电极与可通过电极以串联和/或并联方式彼此被电连接的加热单元。

[0249] 电连接装置(9,9a,9')可能包括下列组件的部分或全部:(i)由具有低电阻和产生更小热的金属导体制造的电极;(ii)将电传导装置如电缆,棒,管,轴,导管,型材(shape)等和电极连接的连接装置;(iii)由碳基材料制造的为电传导装置和电极提供电连接的支撑或夹具,它在物理上支撑各加热单元或者支撑电极;(iv)用于冷却电极或所述支撑的冷却措施,它应用冷却介质如气体,水,油等;(v)用于对包括反应器壳体(1)的金属材料电绝缘的绝缘装置;以及(vi)用于连接,密封或安装前述组件的部件,接头等。

[0250] 通常,可将构成内部加热器(8a)的电阻元件(38)用作电极本身。另一方面,可选定其它材料或尺寸以减小电阻加热。

[0251] 应当考虑下列因素来确定所述电极的形状和尺寸:加热区(Z_h)的直径和许可的空间,加热单元的数量和空间排列,电极或电传导装置许可的空间减小内部电阻加热所需的截面积等。

[0252] 可将所述电极安装在反应器壳体(1)的侧面和/或底部。考虑到该结构,优选的

是,将内部加热器(8a)的电极安装在罩(1)底部的内部或外部。

[0253] 在本发明中,所述电极提供电源与加热单元之间的电连接。就每个加热单元来说,一对电极成为加热单元的输入端和输出端。电极的相互连接或电路结构由加热单元的空间排列和电源(E)的给定规格决定。

[0254] 可将电极彼此分别安装并且分别与电传导装置连接。另一方面,可将电传导装置或电极连接装置装备成与一对电极电连接。

[0255] 图2和图5列举了将电极连接装置(9')安装在反应器壳体(1)内部与两个加热单元电连接的情况。如上所述,可将电极连接装置(9')安装在反应器壳体(1)的外部空间中或者与罩(1)耦合安装。

[0256] 电极连接装置可由与电阻单元(38)同样的材料制造,这样防止急剧的电阻加热。另一方面,它可由金属或者包含一种或多种选自铜(Cu)、铝(Al)和镉(Cd)的金属元素的合金制造,或者由涂有碳化硅(SiC)功能涂层的石墨等制造。这里需要提供对所述电极和/或电极连接装置与反应器壳体(1)的金属材料之间的绝缘。

[0257] 由于所述电极的部分可能暴露于热的加热区(Z_h)底部并且需要电绝缘或密封材料的保护,所以优选的是,所述电极由金属材料制造,通过循环冷却介质来冷却所述绝缘材料或者反应器壳体(1)的全部或部分。

[0258] 与电极连接装置一样,所述电极可由与本说明书的电阻单元(38)同样的材料制造,这样可防止急剧的电阻加热。另一方面,它可由金属或者包含一种或多种选自铜(Cu)、铝(Al)和镉(Cd)的金属元素的合金制造。或者由石墨制造,该石墨用碳化硅进行了表面处理并且涂有或衬有电绝缘层和/或防止杂质污染。

[0259] 可以仅仅用安装在加热区(Z_h)中的内部加热器(8a)对流化床反应器加热。但是,除了内部加热器(8a)之外,还可在外部区(5)安装辅助加热器(8b)对内部区(4)供热。

[0260] 与内部加热器(8a)一样,辅助加热器(8b)也可能包括一个或多个加热单元,并且可通过利用与反应器壳体(1)耦合的电源(E)连接的电极连接装置(9,9',9a)的电阻加热对反应器加热。

[0261] 在该情况下,辅助加热器(8b)的加热单元可能与内部加热器(8a)的加热单元电路独立或者呈串联和/或并联方式电连接。它们可能共享电极连接装置(9,9',9a)和/或电源(E)或者彼此独立,如图3和图4所示。

[0262] 如前所述,不涉及硅沉积期间辅助加热器(8b,8b')的应用,在对反应区(5)供给反应气体(11)和/或选择性地加热硅沉积物(D)以前,可在开始操作反应器期间将辅助加热器(8b,8b')用于加热硅颗粒(3)床,硅沉积物(D)是在硅沉积物去除处理以前或期间,在反应器管(2)内壁上的沉积操作过程中积聚的。

[0263] 在开始操作反应器期间将辅助加热器(8b)用于加热硅颗粒(3)床时,辅助加热器(8b)的高度不受特别限制,如图3中所示。

[0264] 然而,在硅沉积过程中向反应区(5)供应反应气体(11)时应用热负荷不超过内部加热器(8a)的辅助加热器(8b)的情况下,优选限制辅助加热器(8b)的高度,如图4所示,以便硅沉积物(D)在反应器管(2)内壁聚集的速率不会增加。为了更安全,将辅助加热器(8b)安装在加热区(4)的高度水平或者更低。

[0265] 如图3和图4所示,优选在硅沉积过程中不操作辅助加热器(8b,8b'),它们被安

装在硅沉积物 (D) 的形成不过量的高度, 仅仅在反应器的开始工作时加热硅颗粒 (3) 床, 和 / 或在硅沉积物去除操作之前或者去除过程中选择性地加热硅沉积物 (D)。

[0266] 如上所述, 除了安装在加热区 (4) 的内部加热器 (8a) 外, 还可在外部区 (5) 安装辅助加热器 (8b) 向内部区 (4) 供热。但是, 不用这样的辅助加热, 也可将电磁辐射能供给内部区 (4) 而加热硅颗粒 (3)。

[0267] 至于带有一个大直径反应器管 (2) 的流化床反应器, 微波是众多电磁辐射能中最有效的方式。

[0268] 在本发明中, 传送由一个微波发生器 (35) 从电能产生的或是由数个微波发生器 (35) 产生的微波 (37) 的波导管 (36) 可与反应器壳体 (1) 耦合安装用来向内部区 (4) 提供微波 (37) 以加热硅颗粒 (3)。

[0269] 当微波发生器如磁控管与反应器壳体 (1) 耦合安装 (见图 5 的 35b) 并且由供电源 (E) 提供电时, 微波 (37) 可以直接辐射入罩 (1) 而不需要波导管 (36)。但是, 存在需要许多发生器这样的问题, 因为每个发生器的功率有限且机械稳定性不好。当微波发生器 (35) 安装在反应器外部通过波导管 (35) 与反应器壳体 (1) 连接时, 能够获得所需的功率和好的可靠性, 但是这样成本很高。

[0270] 可以从内部区 (4) 的顶部, 或者从安装了气体排放装置 (17) 等的反应器壳体的盖子 (图 2 的 1b 或者图 3 和图 4 的 1d), 将微波 (37) 供给反应区 (Z_r) 的底部。当反应器管 (2) 是由石英, 氮化硅等制作的时, 它可透过微波, 可通过反应器管 (2) 的微波可穿透的壁将微波 (37) 供给加热区 (Z_h)。

[0271] 无论在外部分区 (5) 是否安装或者利用辅助加热器 (8b), 在反应器的开始工作时可利用微波加热来加热硅颗粒 (3) 床, 或者在硅沉积物去除处理以前或期间, 选择性地加热沉积操作过程中在反应器管 (2) 的内壁聚集的硅沉积物 (D)。

[0272] 在本发明中, 分别用来将流化气体 (10) 和反应气体 (11) 通入硅颗粒 (3) 床的流化气体供给装置 (14) 和反应气体供给装置 (15), 可能包含选自管、喷嘴、隔栅、盘或锥形板、小室、法兰、接头、衬板、型材、密封衬垫等的组件。

[0273] 在本发明中用到的流化气体 (10) 在从加热区 (Z_h) 向反应区 (Z_r) 供热方面起重要作用。

[0274] 安装在加热区 (Z_h) 底部的流化气体供给装置 (14) 可能包含一个呈隔栅、盘或锥形板的气体分配板或者一个在加热区 (Z_h) 底部有许多用来大致均匀分配流化气体 (10) 的孔的气体分配装置和 / 或包含多个供应流化气体的喷嘴, 对形状和结构没有限制。

[0275] 根据本发明, 反应气体供给装置 (15) 的反应气体出口位于流化气体供给装置 (14) 的流化气体出口的高度上方, 除了通过加热区 (Z_h) 加热反应器外, 还有这个优点, 即, 防止暴露在加热区 (Z_h) 的流化气体供给装置 (14) 的表面发生硅沉积的问题。

[0276] 可呈多种方式提供硅沉积所需的流化气体 (10), 这取决于流化气体供给装置 (14) 的结构。

[0277] 图 1 列举了流化气体供给装置 (14) 的结构, 其中, 通过多个喷嘴型的气体分配装置 (19) 将流化气体 (10) 输入加热区 (Z_h), 没有应用气体分配板。优选的是将多个喷嘴型的流化气体分配装置 (19) 很好地布置, 以致流化气体 (10) 的流动可基本均匀地分配穿过反应器管 (2) 的截面。

[0278] 图 2 和图 3 列举了流化气体供给装置 (14) 的结构,其中,输入流化气体室 (19') 的流化气体 (10) 被供给加热区 (Z_h),却是通过一个环行板式气体分配装置 (19) 均匀地分配的。

[0279] 可将流化气体室 (19') 和反应器壳体 (1) 耦合,并且,如果需要的话,可以这样构建而使流化气体室 (19') 的内部可被加热以预热流化气体 (10)。

[0280] 如图 2 和图 4 所示,也可能在加热区 (Z_h) 内形成填充材料 (22) 的固定床并且使流化气体 (10) 流经填充材料间形成的空隙,于是达到额外的气体分配效果。

[0281] 当不被流化气体 (10) 的向上流动所流化的填充材料 (22) 的固定床在本发明的流化气体供给装置 (14) 上形成时,所述固定床优选在反应气体供给装置 (15) 的反应气体出口下方形成,也就是在加热区 (Z_h) 的整个区或者是更低部位形成。

[0282] 可呈不同的形式构建用于将硅沉积所需的反应气体 (15) 输入反应区 (Z_r) 的反应气体供给装置 (15)。如图 2 所示,它可能包含一个反应气体喷嘴或者多个反应气体喷嘴。另外,它也可以构建成同轴多管,其中,供应反应气体 (11) 的每个反应气体喷嘴被加热区 (Z_h) 的一个或多个喷嘴包围。

[0283] 当本发明的颗粒排放装置 (16) 和流化气体供给装置 (14) 在反应器壳体 (1) 的底部耦合时,硅颗粒排放装置 (16) 可呈同轴多管的形式与反应气体供给装置 (15) 一起安装和组装。另外,硅颗粒排放装置 (16) 也可呈单独的形式与反应气体供给装置彼此独立构建。

[0284] 根据加热区 (Z_h) 的体积而定,可以安装一个或多个同轴多管。下文给出反应气体供给装置 (15) 的构建与流化气体供给装置 (14) 和硅颗粒排放装置 (16) 之间的关系的实例。

[0285] 图 2 示出了一组多管作为反应气体供给装置 (15) 在加热区 (Z_h) 内呈同轴多管构建的一个实例。如图所示,一种管式反应气体喷嘴和用于保护它的管式保护喷嘴可作为双管形成并且该双管的底部可与硅颗粒排放装置 (16) 尽可能同轴组装。

[0286] 优选地,这样构建反应气体供给装置 (15) 以致可通过反应气体喷嘴与保护喷嘴装置间的环隙输入包含一种或者多种选自氢、氮、氩和氦的组分的惰性气体 (12)。这样就防止反应气体喷嘴的内壁被加热到可能发生硅沉积的温度,于是防止在反应气体喷嘴内壁发生明显的硅沉积及其聚集。

[0287] 此外,反应气体供给装置 (15) 可能包括一个这样的装置,即,能连续地、间歇地或定期地向惰性气体 (12) 中添加氯化氢以防止硅在反应气体喷嘴出口处的沉积和聚集或者除去已形成的硅沉积物。

[0288] 以防仅仅安装一个围绕反应气体喷嘴的保护喷嘴难于保持反应气体喷嘴内壁的温度低于硅沉积发生时的初始分解温度,可呈同轴多管的形式安装两个或者更多个保护喷嘴。

[0289] 不管可能是哪种结构方式,本发明的颗粒排放装置 (16) 优选构建成可沿硅颗粒排放装置 (16) 内硅产品颗粒 (3b) 流动的反方向导入包含一种或者多种选自氢、氮、氩和氦的组分的惰性气体 (12)。所述气体在穿过硅颗粒排放装置 (16) 后可被导入加热区 (Z_h)。

[0290] 另外,如图 3 所示,一个反应气体喷嘴可以竖立安装在流化气体供给装置 (14) 的中心,它使通过气体分配装置 (19) 均匀分配后输给流化气体室 (14') 的流化气体 (10) 流

向加热区 (Z_n), 喷嘴的下部与颗粒排放装置 (16) 形成同轴双管, 以便产品颗粒 (3b) 能从所述中心的加热区 (Z_n) 向下移动。

[0291] 此外, 如图 4 所示, 反应气体喷嘴与保护喷嘴在加热区 (Z_n) 形成同轴双管, 而且在其下面, 它与包括气体分配装置 (19) 的组装型流化气体供给装置 (14) 形成同轴多管。

[0292] 颗粒排放装置 (16) 可与含于流化气体供给装置 (14) 中的气体分配装置 (19) 耦合安装, 独立于反应气体供给装置 (15)。

[0293] 安装在本发明的流化床反应器内的硅颗粒排放装置 (16) 被用来从反应器内部区 (4) 排放连续或半连续制备的部分多晶硅产品颗粒 (3b) 或者在硅沉积过程中生产的其它硅颗粒。

[0294] 硅颗粒排放装置 (16) 能连续地、定期地或间歇地将硅颗粒 (3b) 从内部区域 (4) 适时排出。

[0295] 此外, 可在反应器壳体 (1) 内安装额外腔体 (space), 所以如图 3 所示, 硅颗粒 (3b) 在流化气体室 (14') 内保留时可被冷却后再排出反应器。

[0296] 根据本发明, 从内部区 (4) 排出的部分硅颗粒 (3), 即硅产品颗粒 (3b), 可被转移到多晶硅储存器或者直接与反应器连接的输送机。

[0297] 由于用流化床反应器制备的硅产品颗粒 (3b) 不可避免地存在粒径分布, 所以其中包含的小尺寸颗粒可用作晶种 (3a)。

[0298] 因此, 有可能将从内部空间 (4) 排出的硅产品颗粒 (3b) 转移入一个分级器, 根据尺寸将它们分级, 将大尺寸的颗粒转移到多晶硅储存器或输送机而将小尺寸颗粒作为晶种 (3a)。

[0299] 考虑到反应器内部区 (4) 或硅颗粒床的高温, 优选将硅产品颗粒 (3b) 在通过颗粒排放装置 (16) 时冷却。因此, 可将气体如氢、氮、氩、氦等导入通过颗粒排放装置 (16), 或者可将冷却介质如水、油、气体等沿颗粒排放装置 (16) 壁循环来冷却热颗粒。

[0300] 此外, 尽管没有在图中示出, 可在足够的空间构建颗粒排放装置 (16), 例如, 通过与图 3 的流化气体室 (14') 进行耦合或与反应器壳体的底部耦合 (图 3 的 1b), 以便硅产品颗粒 (3b) 在被排出流化床反应器之前保留在流化床反应器中时可被冷却。

[0301] 当硅产品颗粒 (3b) 通过颗粒排放装置 (16) 排出反应器时, 要求防止杂质污染它们。所以, 在与热的硅产品颗粒 (3b) 接触的颗粒排放装置 (16) 的组件中, 优选由无机材料制成的管、衬垫或型材装置。

[0302] 硅颗粒排放装置 (16) 的这样的组件需要耦合并固定到由金属材料制造的反应器壳体 (1) 和 / 或衬垫等。与完全冷却的产品颗粒接触的颗粒排放装置 (16) 组件的内壁或它的壁可装备用不含添加剂或填料的高聚物材料涂覆或内衬的, 由金属材料制成的管、衬垫或型材, 而不是无机材料。

[0303] 如前所述, 硅产品颗粒 (3b) 能通过多晶硅产品储存器或输送机经颗粒排放装置 (16) 从反应器内部区 (4) 连续地、定期地或间歇地排放。

[0304] 而且, 有可能基于尺寸在反应器和产品储存器之间安装分级器将硅产品颗粒 (3b) 分级, 把小尺寸的颗粒作为晶种 (3a)。

[0305] 在工业上使用的各种颗粒分级器都可用作本发明的分级器。与硅产品颗粒 (3b) 接触的分级器的组件优选由用于颗粒排放装置 (16) 的材料或不含添加剂或填料的高聚物

材料来制备,以防颗粒分级过程中的杂质污染。

[0306] 尽管图 2 至 4 图示列举了最简单的情况,其中,竖立安装一组同轴多管,当在加热区 (Z_n) 内部空间安装很多同轴多管来构建包括多个反应气体管的反应气体供给装置 (15) 时也可应用这种设计。

[0307] 除了可用于反应器壳体 (1) 的金属外,上述流化气体供给装置 (14),反应气体供给装置 (15) 和 / 或颗粒排放装置 (16) 的组件还可由一种或多种选自石英、二氧化硅、氮化硅、一氮化硼、碳化硅、石墨、硅和玻璃碳的物质制作。

[0308] 尤其是,与硅颗粒 (3) 和 / 或产品颗粒 (3b) 接触的组件可由单组分材料制成,即,在厚度方向由硅、氮化硅或石英等的单层或多层构成,以防硅颗粒 (3) 的杂质污染。

[0309] 如上所述,当反应器壳体 (1) 的内部空间分别被本发明的反应器管 (2) 限定为内部区 (4) 和外部区 (5) 时,有可能通过操作降低反应器管 (2) 两边的压差和充分增大反应压力而不损害反应器管 (2) 的稳定性。

[0310] 为了达到此目的,要求流化床反应器包含 (i) 一个惰性气体连接装置 (26) 用于将外部区 (5) 保持在惰性气氛中;(ii) 一个用来测量和 / 或控制内部区压力 (P_i) 和 / 或外部区压力 (P_o) 的压力控制装置;以及 (iii) 一个能将压差保持在 $0 \text{ 巴} \leq |P_o - P_i| \leq 1 \text{ 巴}$ 范围内的压差控制器。

[0311] 在流化床反应器的内部区 (4),形成了硅颗粒 (4a) 床,并且流化气体 (10) 和反应气体 (11) 分别通过流化气体出口和反应气体出口供应到硅颗粒 (4a) 床,导致硅沉积。流化床反应器内部区 (4) 有供废气 (13) 流动的空间,废气 (13) 包含流化气体 (10)、未反应的反应气体 (11) 和反应副产物气体。

[0312] 因此,内部区 (4) 在硅颗粒 (3) 的流化床内通过硅沉积制备多晶硅颗粒中起基本作用。

[0313] 相比之下,硅颗粒 (3) 床没有在外部区 (5) 形成而且反应气体 (11) 没有流经那里。因此,没有在反应器管 (2) 外壁与反应器壳体 (1) 之间形成的外部区 (5) 发生硅沉积。

[0314] 外部区 (5) 起如下重要作用。

[0315] 首先,外部区 (5) 通过将内部区 (4) 和外部区 (5) 之间的压差保持在一定范围内而为保护反应器管 (2) 提供空间。

[0316] 第二,外部区 (5) 为防止或减小反应器的热损耗的隔热材料提供空间。

[0317] 第三,除了安装在内部区 (4) 的内部加热器 (8a) 外,外部区 (5) 还为沿反应器管 (2) 周围安装的辅助加热器 (8b) 提供空间。

[0318] 第四,外部区 (5) 通过将反应器管 (2) 外部保持在惰性气氛中来防止能引发在内部区 (4) 内爆炸或腐蚀的有机或无机的气态或固态杂质进入,它还能提供将反应器管 (2) 安全安装和保持在反应器壳体 (1) 内的空间。

[0319] 第五,外部区 (5) 能通过外部区连接装置 (28) 测量内部区 (4) 具体的气体组成、浓度、温度、压力、颗粒组成等,于是能实时监测反应器管 (2) 内的任何问题的发生。

[0320] 第六,外部区 (5) 为加热硅沉积物的加热器 (8b') 提供空间,硅沉积物是如图 4 所示在反应器管 (2) 内壁聚集的并且需要按照硅沉积物去除方法进行化学去除。

[0321] 第七,外部区 (5) 使得容易组装和拆卸反应器管 (2) 和内部区 (4)。

[0322] 由于本发明的外部区 (5) 有多种功能,可用至少一种分配单元如管、板、成型物

件、接头等将外部区的空间上下和 / 或周围划分。

[0323] 然而,当外部区 (5) 被划分后,优选使划分的空间相互连通以保证处于相同的气氛和压力下。

[0324] 在外部区 (5) 内,可将隔热材料安装在反应器管 (2) 的外部。就隔热材料 (6) 来说,可应用工业上常用来防止通过辐射和传导进行传热的呈圆柱体、块、纤维织物、覆盖层、毡垫、泡沫体、填充床等的无机隔热材料。

[0325] 在本发明中,将惰性气体连接装置 (26a, 26b) 安装在反应器壳体 (1) 上以便将外部区 (5) 保持在惰性气氛中,与发生在内部区 (4) 的硅沉积无关。

[0326] 惰性气体 (12) 可能是选自氢、氮、氩和氦的至少一种。

[0327] 安装在反应器壳体 (1) 表面并在空间上与外部区 (5) 相连的惰性气体连接装置 (26a, 26b) 能供应或排放惰性气体 (12) 并且可与选自管、喷嘴、法兰、阀、接头等的一个或多个组件安装。

[0328] 除了惰性气体连接装置 (26a, 26b) 外,还可能在反应器壳体 (1) 上安装一个外部区连接装置 (28),它在空间上直接或间接地暴露于外部区 (5),用于测量和控制温度、压力和气体组分。

[0329] 一个惰性气体连接装置 (26a, 26b) 可足以将外部区 (5) 保持在惰性气体气氛中。另外,可应用两个或更多个惰性气体连接装置 (26a, 26b) 独立地进行惰性气体的供应和排放。

[0330] 除了在外部区 (5) 独立保持惰性气氛外,还可将惰性气体连接装置 (26a, 26b) 用于测量和控制流速、温度、压力和气体组分,它可应用外部区连接装置 (28) 来进行。

[0331] 图 3 和图 4 列举了不同的情况,其中,用惰性气体连接装置 (26a, 26b) 和 / 或外部区连接装置 (28) 测量和 / 或控制外部区压力 (P_o)。

[0332] 可独立于惰性气体连接装置 (26a, 26b) 安装的外部区连接装置 (28) 被安装用来测量和控制外部区 (5) 的情况。

[0333] 外部区连接装置 (28) 也可与选自管、喷嘴、法兰、阀、接头等的一个或多个组件安装。

[0334] 在没有惰性气体连接装置 (26a, 26b) 时,可应用外部区连接装置 (28) 来供应和排放惰性气体 (12),并且用来测量和控制温度、压力和气体组分。

[0335] 因此,不必总是在类型和功能上区分惰性气体连接装置 (26a, 26b) 和外部区连接装置 (28)。

[0336] 不同于外部区 (5),其压力几乎可以随位置和时间保持恒定不变,而内部区 (4) 不可避免会产生压差,是由于那里存在硅颗粒 (3) 床。也就是说,内部区压力 (P_i) 随内部区 (4) 位置不同而变化。

[0337] 固体颗粒流化床施加的压力降取决于流化床的高度,但是除非流化床的高度特别高,压力降的值一般是约 0.5-1 巴或更小。此外,根据固体颗粒流化床的基本特点,压力随时间发生不规则的波动。因此,内部区压力 (P_i) 可随位置和时间而变。

[0338] 根据以上所述,测量或控制内部区压力 (P_i) 的内部压力控制装置被直接或间接地安装在适当的位置并与内部区 (4) 在空间上连通。

[0339] 考虑到反应器的特点和需要控制的操作变量,可将本发明的内部压力控制装置和

/ 或外部压力控制装置安装在不同位置。

[0340] 可通过在空间上直接或间接暴露于内部区 (4) 的内部区连接装置 (24, 25)、流化气体供给装置 (14)、反应气体供给装置 (15)、颗粒排放装置 (16) 或气体排放装置 (17) 将内部压力控制装置与内部区 (4) 在空间上连通安装。

[0341] 可通过在空间上直接或间接暴露于外部区 (5) 的, 安装在反应器壳体 (1) 上的外部区连接装置 (28) 或惰性气体连接装置 (26a, 26b) 将外部压力控制装置与外部区 (5) 在空间上连通安装。

[0342] 在本发明一个优选的实施方案中, 内部压力控制装置和 / 或外部压力控制装置包括用来直接或间接测量和 / 或控制压力所需的组件。

[0343] 内部压力控制装置和 / 或外部压力控制装置可能包括至少一个选自下列的组件: 连接管或空间连接所需的接头; 手动, 半自动或自动的阀; 数字化或类似压力表或差压计; 压力指示仪或记录仪; 信号转换器或程序控制仪等。

[0344] 所述内部压力控制装置和 / 或外部压力控制装置可以彼此机械连接或以信号电路方式连接。它们也可与这样的控制装置如中央控制器、分配控制系统和局部控制系统部分连接或连接为一个整体。

[0345] 所述内部压力控制装置和 / 或外部压力控制装置在压力方面可独立构建, 但它们可与用来测定和 / 或控制流速、温度、气体组分、颗粒浓度等及压力的装置部分地相连或连接为一个整体。

[0346] 此外, 为了防止内部压力控制装置和 / 或外部压力控制装置的组件受杂质污染, 固体颗粒等, 或者为了减小压力变化, 可将所述控制器与分配装置如颗粒分离过滤器、洗涤器等或压力阻尼盒装配。

[0347] 所述内部压力控制装置可安装在空间上直接或间接暴露于内部区 (4) 的反应器壳体 (1) 部分, 例如, 位于被安装用来测量和 / 或监测压力、温度或气体组分的内部区连接装置 (24, 25)。

[0348] 当所述内部压力控制装置与内部区连接装置 (24, 25) 连接安装时, 能稳定测量和控制内部区 (4c) 的上部空间的压力, 尽管难以检测由硅颗粒流化床引起的压力随时间的变化。

[0349] 为了检测由所述流化床引起的压力随时间的变化, 所述内部区连接装置可与硅颗粒流化床在空间上连通安装。

[0350] 此外, 可将内部压力控制装置安装在空间上与内部区 (4) 连接而与反应器壳体 (1) 连接的位置, 例如, 处于和流化气体供给装置 (14)、反应气体供给装置 (15)、颗粒排放装置 (16) 或气体排放装置 (17) 连接的地方。

[0351] 另外, 可将所述内部压力控制装置安装在两处以上可在空间上与内部区控制装置 (24, 25) 和内部区 (4) 连通的位置。

[0352] 取决于内部压力控制装置安装的位置, 因硅颗粒的存在测得的 P_i 值有所不同。根据本发明进行的实验, 尽管 P_i 值取决于流化床的流化特性和流化气体供给装置 (14)、反应气体供给装置 (15)、颗粒排放装置 (16) 或气体排放装置 (17) 的结构, 但不同位置的 P_i 值在 1 巴范围内变化。

[0353] 在本发明一个优选的实施方案中, 外部压力控制装置位于几个选自适合直接或间

接测量和 / 或控制外部区压力 (P_o) 的位置, 并安装在与外部区 (5) 在空间上连通的位置。

[0354] 可安装所述外部压力控制装置的位置实例包括外部区连接装置 (28) 或惰性气体连接装置 (26a, 26b), 它们被安装在反应器壳体 (1) 上在空间上直接或间接暴露于外部区 (5)。

[0355] 在本发明中, 优选将外部区 (5) 保持在惰性气氛中。因此, 可能利用惰性气体连接装置 (26a) 将惰性气体 (12) 输入外部区 (5) 和利用惰性气体连接装置 (26b) 作为外部区连接装置 (28) 从外部区 (5) 排放惰性气体 (12)。

[0356] 因此, 也可能通过惰性气体连接装置 (26a, 26b) 或外部区连接装置 (28) 在空间上将用于直接或间接测量和 / 或控制外部区压力 (P_o) 的外部压力控制装置与外部区 (5) 相连。

[0357] 在本发明中, 可利用内部压力控制装置和 / 或外部压力控制装置来保持内部区压力 (P_i) 和外部区压力 (P_o) 的差值, 也就是将 $|P_o - P_i|$ 的值保持在 0 至 1 巴的范围内。

[0358] 但是, 在构建内部压力控制装置时, 就应该明白内部区 (4) 中不同位置的 P_i 值不同。

[0359] 在空间上与流化床内部或底部连接安装的内部区连接装置、流化气体供给装置 (14)、反应气体供给装置 (15)、颗粒排放装置 (16) 等处测得的 P_i 值大于在没有与硅颗粒流化床直接接触的内部区连接装置、气体排放装置 (17)、硅晶种供给装置 (18) 等处测得的 P_i 值。

[0360] 尤其是, 与硅颗粒流化床的底部在空间上连接的内部区连接装置、流化气体供给装置 (14) 或颗粒排放装置 (16) 处测定的压力可能是最大内压 $P_i(\max)$, 而在没有与流化床接触的气体排放装置 (17) 或内部区连接装置 (24, 25) 处测定的压力可能是最小的内压 $P_i(\min)$ 。

[0361] 由于不可避免地出现取决于高度的硅颗粒 (3) 床的压差, 所以所述床底部的 P_i 值总是高于硅颗粒床顶部的 P_i 值。

[0362] 压差随着硅颗粒床的高度而增大。要在硅颗粒床内达到大于 1 巴的压差, 就得大为提高反应器的高度。相反, 如果硅颗粒床的顶部与底部的压差小于 0.01 巴, 那么硅颗粒床的高度将会变得太小, 导致更低的产率。

[0363] 因此, 优选将硅颗粒床高度引起的压差保持在 0.01 至 1 巴的范围内。

[0364] 换句话说, 优选将最大压力值 $P_i(\max)$ 与最小压力值 $P_i(\min)$ 的差值保持在 0 至 1 巴的范围内。

[0365] 在根据本发明将反应器管 (2) 两边的压差或 $|P_o - P_i|$ 值保持在 0 至 1 巴范围内时, 要记住压差随反应器管 (2) 的高度变化而不同。

[0366] 当所述内部压力控制装置通过如下器件在空间上与内部区 (4) 连接时, 即, 通过所述内部区连接装置、流化气体供给装置 (14)、反应气体供给装置 (15) 或颗粒排放装置 (16), 它们在空间上与具有比内部区 (4c) 顶部更高压力的硅颗粒床内部或底部连通, 优选的是满足 $P_o \leq P_i$ 和 $0 \text{ 巴} \leq (P_i - P_o) \leq 1 \text{ 巴}$ 的条件。

[0367] 相比之下, 当内部压力控制装置通过如下器件在空间上与内部区 (4) 连接时, 即, 通过气体排放装置 (17)、硅晶种供给装置 (18) 或内部区连接装置 (24, 25), 它们没有与硅颗粒流化床接触并且在空间上与具有比硅颗粒床的内部或底部更低压力的内部区 (4c) 的

顶部空间连通,优选的是满足 $P_i \leq P_o$ 和 $0 \text{ 巴} \leq (P_o - P_i) \leq 1 \text{ 巴}$ 的条件。

[0368] 此外,多于一个位置测量的压力平均值可用于构建内部压力控制装置和外部压力控制装置。

[0369] 尤其,由于内部区压力 (P_i) 可能随它连通的空间而变,所以内部压力控制装置可能包含能应用多于一个压力表来测压并计算平均值的控制仪。

[0370] 因此,根据本发明,在将反应器管 (2) 两侧的压差或 $|P_o - P_i|$ 值保持在 0 至 1 巴范围内时,优选将外部区压力 (P_o) 保持在最大压力 $P_i(\text{max})$ 和最小压力 $P_i(\text{min})$ 之间。

[0371] 要求本发明的内部压力控制装置和 / 或外部压力控制装置包括一个压差控制器,它将 $|P_o - P_i|$ 值保持在 0 至 1 巴范围内,即, $0 \text{ 巴} \leq |P_o - P_i| \leq 1 \text{ 巴}$ 。

[0372] 所述压差控制器可能含于内部压力控制装置或外部压力控制装置中,或者含于两者中。

[0373] 然而,考虑到内部区 (4) 中不同位置的 P_i 值可能会变,优选的是,在内部区 (4) 中,通过压差控制器调节具有比内部区 (4c) 的顶部更高压力的硅颗粒床内部的 P_i 值,如流化气体供给装置 (14)、反应气体供给装置 (15)、颗粒排放装置 (16)、内部区连接装置等,尤其是,具有最高压力的硅颗粒床的底部,使其满足 $P_o \leq P_i$ 和 $0 \text{ 巴} \leq (P_i - P_o) \leq 1 \text{ 巴}$ 的条件。

[0374] 所述内部压力控制装置可通过流化气体供给装置 (14)、反应气体供给装置 (15)、颗粒排放装置 (16) 或内部区连接装置在空间上与硅颗粒流化床的内部连通,以便压差控制器可将外部区压力 (P_o) 和内部区压力 (P_i) 保持在 $0 \text{ 巴} \leq (P_i - P_o) \leq 1 \text{ 巴}$ 范围内。

[0375] 相比之下,在内部区 (4),优选用压差控制器调节空间上与内部区 (4c) 的顶部连通的位置的 P_i 值以满足 $P_i \leq P_o$ 和 $0 \text{ 巴} \leq (P_o - P_i) \leq 1 \text{ 巴}$ 的条件。

[0376] 由于所述内部压力控制装置通过不与硅颗粒流化床接触的气体排放装置 (17)、硅晶种供给装置 (18)、内部区连接装置 (24, 25) 等在空间上与内部区 (4) 连接,所以压差控制器可将外部区压力 (P_o) 和内部区压力 (P_i) 保持在 $0 \text{ 巴} \leq (P_o - P_i) \leq 1 \text{ 巴}$ 范围内。

[0377] 在本发明中,压差控制器可含于内部压力控制装置或外部压力控制装置中,或者含于两者中,并可相互连接而将 $|P_o - P_i|$ 值保持在 0 至 1 巴的范围内。

[0378] 只要用本发明的压差控制器将外部区压力 (P_o) 和内部区压力 (P_i) 的差值保持在 0 至 1 巴的范围内, P_o 或 P_i 的值可能很大或很小。

[0379] 从产率考虑,优选的是反应压力至少是 1 巴绝压。

[0380] 流化气体 (10) 和反应气体 (11) 的进料速率基于单位时间的摩尔数或质量几乎与压力成比例增大。

[0381] 因此,随着反应的压力,或者 P_o 或 P_i 值的增大,将硅颗粒床内的气体加热到反应温度变成一个棘手的问题。

[0382] 然而,在它输入反应器之前,难以将反应气体 (11) 预热到约 300-350°C 的初始分解温度。此外,由于杂质污染的可能性,在流化床反应器外部预热流化气体 (10) 至反应温度或以上危险的。另外,由于其实难以对流化气体供给装置 (14) 应用一种完美的隔热材料,因此预热限于比反应温度更低的温度。

[0383] 而且,如果反应压力超过约 20 巴,实际上不可能提供保持反应温度所需的热,即使将内部加热器 (8a) 安装在加热区 (Z_h) 达到满热负荷。

[0384] 考虑到这些限制因素,优选的是,外部区压力 (P_o) 或内部区压力 (P_i) 在大约 1 至

20 巴绝压的范围内。

[0385] 根据本发明,内部压力控制装置和外部压力控制装置可能包括一个压差控制器,它如下述降低反应器管(2)两侧之间的压差。

[0386] 采用压差控制器,有可能增大反应压力而不影响反应器管(2)的稳定性,以此提高产率和保证流化床反应器的稳定性。

[0387] 例如,内部压力控制装置和外部压力控制装置可能各自分别包括压差控制器,以便可将内部区的内部压力(P_i)和外部区的外部压力(P_o)分别控制为 P_i^* 和 P_o^* ,它们分别是满足 $0 \text{ 巴} \leq |P_o^* - P_i^*| \leq 1 \text{ 巴}$ 条件的控制参考值,不论内部压力控制装置可能被连在内部区(4)的哪个位置。

[0388] 为此,所述内部压力控制装置可能包括一个用来保持预定的内部压力值 P_i^* 的压差控制器,并且所述外部压力控制装置可能包括一个用来保持外部压力值 P_o^* 的压差控制器,它们满足这一条件,即,反应器管(2)两侧的压保持在 $0 \text{ 巴} \leq |P_o^* - P_i^*| \leq 1 \text{ 巴}$ 的范围内。

[0389] 同样,所述外部压力控制装置可能包括一个用来保持预定的外部压力值 P_o^* 的压差控制器,并且内部压力控制装置可能包括一个用来保持内部压力值 P_i^* 的压差控制器,它们满足这一条件,即,反应器管(2)两侧的压差保持在 $0 \text{ 巴} \leq |P_o^* - P_i^*| \leq 1 \text{ 巴}$ 的范围内。

[0390] 另一方面,可能包括压差控制器,所以内部压力控制装置可保持预定的内部压力值 P_i^* ,无论它与内部区(4)的哪个位置连接。外部压力控制装置可能包含一个压差控制器来控制外部压力(P_o)以满足 $0 \text{ 巴} \leq |P_o - P_i^*| \leq 1 \text{ 巴}$ 的条件,与高度无关。

[0391] 当设定压差控制器的 P_i^* 和 P_o^* 值而将外部区压力(P_o)和内部区压力(P_i)的差保持在0至1巴范围内时,有必要考虑杂质通过反应器管(2)的密封装置(41a,41b)的流动。

[0392] 在安装和操作本发明的流化床反应器时,用反应器管(2)的密封装置(41a,41b)不容易获得完好的气体密封效果。此外,由于反应器管(2)的固有热膨胀或者由硅颗粒(3)的流化引起的施加在反应器管(2)上的剪切应力,由密封装置(41a,41b)提供的密封可能变得不充分。

[0393] 根据本发明,通过正确调定压差控制器的操作条件,或者 P_i^* 和 P_o^* 的值,就可解决内部区(4)和外部区(5)之间的杂质流过密封装置(41a,41b)的问题。

[0394] 根据本发明,为了控制内部区和外部区的压力,可基于对废气(13)组成或存在于外部区(5)的气体的分析来确定压差控制器的压力控制条件。

[0395] 例如,通过应用气体排放装置(17)或废气处理装置(34)对废气(13)的组成分析或者应用外部区连接装置(28)或惰性气体连接装置(26b)对外部区存在的气体的组成分析,可监测杂质通过内部区(4)和外部区(5)之间密封装置(41a,41b)的迁移。

[0396] 如果在废气(13)中检测出没有输向内部区(4)的惰性气体(12)的组分,那么可减小 P_o^* 值或者可增大 P_i^* 值从而减少或防止杂质从外部区(5)流向内部区(4)。

[0397] 相反,如果除了惰性气体(12)中包含的组分外,在排出外部区(5)的气体中还检测出含于内部区(4)内废气(13)中的组分,那么可增大 P_o^* 值或者可减小 P_i^* 值从而减少或防止杂质从内部区(4)流向外部区(5)。

[0398] 以这种方式,通过适当选择压力控制装置的控制条件,即使在流化床反应器的安装和操作期间反应器管(2)的密封装置(41a,41b)不能提供完美的密封效果,也可能减少或防止杂质在两区之间的流动。

[0399] 但是,不管怎样设置压差控制器的 P_i^* 值和 P_o^* 值,都应当满足 $0 \text{ 巴} \leq |P_o^* - P_i^*| \leq 1 \text{ 巴}$ 的条件。

[0400] 作为达到本发明目的的另一个实例,可将内部压力控制装置与外部压力控制装置彼此相互连接,以便可测量内压和外压的差, $\Delta P = |P_o - P_i|$, 并且可通过本发明的压差控制器手动、半自动或全自动地控制内部压力控制装置和 / 或外部压力控制装置,所以对于内部区 (4) 内任何位置的压强 P_i ,可将 ΔP 的值保持在从 0 至 1 巴的范围内。

[0401] 作为达到本发明目的的另一个实例,本发明的压差控制器可能包括一个均衡管,它在空间上与一个含于内部压力控制装置中的连接管和一个含于外部压力控制装置中的连接管互联。

[0402] 可将含于内部压力控制装置内并且构成均衡管的连接管安装在空间上直接或间接与内部区 (4) 连接的位置,包括空间上直接或间接暴露于内部区 (4) 的内部区连接装置 (24, 25), 流化气体供给装置 (14, 14'), 反应气体供给装置 (15), 颗粒排放装置 (16), 气体排放装置 (17) 和晶种供给装置 (18)。

[0403] 此外,可将含于外部压力控制装置内并且构成均衡管的连接管安装在空间上直接或间接与外部区 (5) 连接的位置,包括安装在反应器壳体 (1) 上在空间上直接或间接暴露于外部区 (5) 的外部区连接装置 (28) 和惰性气体连接装置 (26a, 26b)。

[0404] 在空间上与内部压力控制装置和外部压力控制装置互联的均衡管可看作最简单类型的压差控制器,因为两个区 (4, 5) 之间的压差几乎保持在 0 巴附近。

[0405] 尽管存在这样的优点,但如果仅仅用均衡管构建压差控制器,气体组分和杂质能在两区 (4, 5) 之间相互混合。

[0406] 如果这样,从外部区 (5) 的隔热材料和辅助加热器排放的杂质就会污染内部区 (4),尤其是多晶硅颗粒。再者,来自内部区 (4) 的硅颗粒、未反应的反应气体或反应副产物也会污染外部区 (5)。

[0407] 因此,当均衡管被用作压差控制器时,需要在均衡管上安装均压装置来减少或防止气体组分与杂质在两区 (4, 5) 之间的混合。

[0408] 均压装置可能包含一个或多个能防止气体和杂质相互混合而不影响两区 (4, 5) 之间压力的止回阀,一个均压阀,一个 3 通阀,一个颗粒分离过滤器,一个阻尼盒,一个填充床,一个活塞,第三种流体,一个应用分离膜的压力补偿器等。

[0409] 此外,压差控制器可能还包含一个能调节和控制压力和流速的手动阀或者一个可由预定的压力或压差 (半) 自动控制的 (半) 自动阀。

[0410] 这些阀可与连接管、压力表和能记录压力或压差值的指示器耦合安装。

[0411] 至于可商购的压力表和指示器,有模拟型、数字型及其组合。一个能储存与控制数据的系统可通过将数据处理器如信号转换器、信号处理器等和一个局部控制器、分配控制器或提供计算能力的中央控制器连接而构建。

[0412] 为了供应反应区 (Z_r) 所需要的热,安装在加热区 (Z_h) 中的内部加热器 (8a) 的选择、设计、构造、操作和控制很重要。在这个方面,工业上采用的电阻加热技术可用于本发明。

[0413] 例如,在 M.Orfeuil: " Electric Process Heating:Technologies/Equipments/Applications " ("电加热:技术/设备/应用")BattellePress,

1987 (ISBN0-935470-26-3) 中提到的电阻加热技术,以及其中引述的文献都适用于本发明。

[0414] 在运用该技术时,有必要考虑将用于本发明的内部加热器 (8a) 安装在加热区 (Z_h),当与高纯硅颗粒 (3) 床接触时,床的至少部分保持呈流化状态。

[0415] 可用于本发明的内部加热器 (8a) 可呈任何形式,只要它能承受伴随反应器管 (2) 内硅颗粒 (3) 运动引起的流化床的碰撞、应力和振动,它有时表现出无规的流化状态,气泡的破裂等并和电连接装置 (9,9',9a) 电连接用于电阻加热。

[0416] 因此,包括内部加热器 (8a) 的加热单元应该包含一种能提供电阻加热的电阻元件 (38),具有足够的机械稳定性,以便可将它安装在颗粒的流化床内,并且受保护以防来自硅颗粒 (3) 和流化气体 (10),它们在加热区 (Z_h) 持续与内部加热器 (8a) 接触,以及填充材料 (22) 的杂质污染。

[0417] 在本发明中构成加热单元并提供电阻加热的电阻元件 (38),可呈沿厚度方向具有圆形、椭圆形或多边形截面的棒、线、丝、杆、条或带,或者具有同心圆、椭圆形或多边形截面的导管、管、圆柱或管道。截面沿长度方向可能具有一种或多种形状和/或尺寸。

[0418] 至于电阻元件 (38) 的材料,这种材料,即,电流不引起显著的物理性能改变,熔点至少在约 100°C 或更高或者高于反应温度,并且在加热温度范围内电阻率在约 $1\ \mu\ \text{ohm}\cdot\text{cm}$ 至 $0.1\ \text{ohm}\cdot\text{cm}$ 范围内的材料是优选的。前述文献中提到的电阻元件可用于本发明。

[0419] 电阻元件 (38) 的材料可能包含一种或两种选自石墨、碳化硅和硅的组分。

[0420] 常用作电阻加热器的电阻元件 (38) 的石墨,在加工成需要的长度、截面和形状后可呈纯的或复合物形式应用。优选在石墨表面形成厚度约 $50\text{--}100\ \mu\text{m}$ 的碳化硅层以防粒状杂质的形成。

[0421] 例如,可在具有大直径的石墨管表面形成碳化硅层,所述石墨管已被加工而形成弯曲的狭缝,被用作电阻元件 (38),就像在单晶硅生长装置中用来加热硅至熔化的坩埚。

[0422] 硅可优选用作安装在高纯硅颗粒 (3) 床里面的内部加热器 (8a) 的电阻元件 (38)。但是,由于高纯硅在低温范围内电阻率太高,可将它掺杂,与具有低电阻率的电阻元件 (38) 加工成复合材料或者与低温下提供良好的电阻加热效果的组分加工成具有多层结构。

[0423] 常用于电阻加热的电阻材料可包括金属或合金。

[0424] 包括电阻元件 (38) 的材料可能包括一种或多种选自下列金属元素的金属或合金:钨 (W)、铼 (Re)、锇 (Os)、钽 (Ta)、钼 (Mo)、铌 (Nb)、铱 (Ir)、钌 (Ru)、锝 (Tc)、铪 (Hf)、铑 (Rh)、钒 (V)、铬 (Cr)、锆 (Zr)、铂 (Pt)、钍 (Th)、镧 (La)、钛 (Ti)、钇 (Lu)、钇 (Y)、铁 (Fe)、镍 (Ni)、镁 (Mg) 和铝 (Al)。

[0425] 此外,电阻元件 (38) 可能包含不基于碳的陶瓷组分和金属元素以及至少是一种选自下组的物质:硅化钼 (Mo-Si)、亚铬酸镧 (La-Cr-O)、氧化锆及其混合物。

[0426] 内部加热器 (8a) 的加热单元的尺寸不受特别的限制,只要当安装在加热区 (Z_h) 的内部时它能避免与反应气体 (11) 的接触,能承受伴随硅颗粒 (3) 的流化而产生的碰撞、应力和振动并在与电连接装置 (9,9',9a) 通电连接时能提供电阻加热。

[0427] 然而,由于单独的内部加热单元的容量不仅由特定的材料决定而且还由这样的电性能如受电流通过的截面积直接影响的电阻决定,所以优选优化电阻加热特性。

[0428] 构成加热单元的电阻元件 (38) 通过包括电极的电连接装置 (9,9',9a) 与供电源 (E) 电连接。

[0429] 如前所述,既然构成电阻元件(38)的大部分组分是污染高纯硅颗粒(3)的杂质,那么重要的是防止它与硅颗粒(3)的直接接触。

[0430] 因此,为了防止电阻元件(38)与硅颗粒(3)的直接接触,(i)可在电阻元件(38)的外部装一个保护管(40);(ii)可在电阻元件(38)的表面形成一层或多层隔离层(39),各层由不同的隔离组分制造;或者(iii)可在已形成隔离层(39)的电阻元件(38)外面安装保护管(40)。

[0431] 可呈两种方式将保护管(40)安装在电阻元件(38)外面。其一,保护管(40)可能在厚度方向包覆沿长度方向的整个或部分电阻元件(38),如图1或3所示的W型或U型内部加热器(8a)。或者,如图2、图4和图5中的浸渍型内部加热器(8a),可将电阻元件(38)安装在呈散热管形式的密封的保护管(40)内。

[0432] 在U型或W型加热单元(8a)的情况下,保护管(40)可呈包括管、导管、异型物件等的多种形式,取决于电阻元件(38)的类型,并且与电阻元件(38)接触安装或者在保护管(40)与电阻元件(38)之间具有空隙。

[0433] 此外,电阻元件(38)和/或保护管(40)可作为独立单元构建或者可能包含多个组件。

[0434] 例如,图1示意阐释了一种情况,其中,通过将两个竖直的组件和安装在电连接装置(9)或电极上的水平桥电连接而构建加热单元。

[0435] 可通过下列方法耦合组成电阻元件(38)和/或保护管(40)的多种组件:(i)电阻元件(38)的连接装置的机械加工,(ii)应用焊接装置或等离子/电弧等的焊接,(iii)连接接头或组件的应用或者(iv)上述的组合。

[0436] 所述组件可能具有相同的尺寸并且用同种的材料制作。但是,也可能用不同的尺寸或材料,只要选定所述组件的物理性能如横截面、长度等,考虑其温度依赖性电性能,并且将所述组件加工成容易啮合。

[0437] 浸渍型,即,散热管型加热单元(8a),它包括丝/电线散热片、石英管散热片、陶瓷散热片等,在选择电阻元件(38)方面是有利的,因为电阻元件(38)在被密封时可被安全地保护。可用于本发明的加热单元(8a)的保护管(40)沿厚度方向可能有多种形状的截面,包括同心圆、椭圆、多边形等。既然保护管(40)与硅颗粒(3)接触,它应由单层(即,单组分材料)或多层(39)构成,所以可防止硅颗粒(3)被来自内部加热器(8a)和/或管(40)自身的杂质污染。此外,优选地,层(39)或构成保护管(40)的材料需要提供电绝缘性以防止电流从电阻元件(38)流向高温下变成导体的高纯硅颗粒(3)。

[0438] 为了用没有保护管(40)的加热单元(8a)加热硅颗粒(3)和流化气体(10),优选在电阻元件(38)的表面形成一层或多层隔离层(39)以防杂质污染。此外,如在保护管(40)内,优选的是隔离层(39)也需要提供电绝缘性以防止电流从电阻元件(38)流向高纯硅颗粒(3)。在这种情况下,隔离层(39)还起保护电阻元件(38)的保护管(40)的作用。

[0439] 为了保证电绝缘性能和防止杂质污染硅颗粒(3),加热单元(8a)可通过安装保护管(40)来构建,该保护管包覆已经在其上形成隔离层(39)的电阻元件(38)。在这种情况下,保护管(40)可沿长度方向在加热单元(8a)的整个或部分上安装。

[0440] 如前所述,本发明的内部加热器(8a)的加热单元可呈多种方式构建,取决于隔离层(39)的数量,保护管(40)的存在与否等。

[0441] 甚至在实例的最简单形式中,其中,电阻元件(38)和/或保护管(40)可能具有圆形或同心横截面,加热单元的横截面可呈多种形式构建,如图6的(a)-(i)所示。

[0442] 图6(a)阐释了一种情况,其中,在杆式电阻元件(38)表面形成两种隔离层(39' 39");图6(b)阐释了一种情况,其中,一个杆式电阻元件(38)被保护管(40)包覆并与之接触;图6(c)阐释了一种情况,其中,杆式电阻元件(38)被具有空隙的保护管(40)包覆;图6(d)阐释了一种情况,其中,已形成一隔离层(39a)的杆式电阻元件(38)外表面与已形成另一隔离层(39b)的保护管(40)内表面接触;图6(e)阐释了一种情况,其中,已形成一隔离层(39a)的杆式电阻元件(38)被插入(具有空隙)外表面已形成另一隔离层(39b)的保护管(40)内;图6(f)阐释了一种情况,其中,已形成一隔离层(39a)的杆式电阻元件(38)被插入(具有空隙)内表面已形成另一隔离层(39b)的保护管(40)内;图6(g)阐释了一种情况,其中,在管式电阻元件(38)的外表面已形成两层隔离层(39,39")并且在内表面形成一隔离层(39" ');图6(h)阐释了一种情况,其中,外表面已形成一隔离层(39a,39a')的管式电阻元件(38)与外表面已形成一隔离层(39b)的保护管(40)内部接触;图6(i)阐释了一种情况,其中,外表面已形成一隔离层(39a)和内表面已形成一隔离层(39a')的管式电阻元件(38),被插入(具有空隙)保护管(40)内。

[0443] 此外,可利用图6中所示的一些实例的组合呈多种方式构建U型或W型加热单元以防电阻元件(38)对硅颗粒的杂质污染。

[0444] 浸渍型,即散热管型内部加热器(8a)还可呈多种工业上合适的方式构建。图7(a)-(d)示意阐释了电阻元件(38)沿厚度方向的横截面的一些实例。

[0445] 图7(a)阐释了一种情况,其中,线、杆或丝状电阻元件(38)由保护管(40)内的绝缘材料(42)夹持;图7(b)阐释了一种情况,其中,电阻元件(38)已加工成具有一方形截面而装入保护管(40)内;图7(c)阐释了一种情况,其中,具有半圆形截面的电阻元件(38)被内表面已形成另一隔离层(39b)的保护管(40)内部的一层(39a)完全包覆;图7(d)阐释了一种情况,其中,将已加工成截管形式的电阻元件(38)安装在外表面已经形成另一隔离层(39b)的保护管(40)内。

[0446] 可在电阻元件(38)和/或保护管(40)的表面进一步形成隔离层(39)。

[0447] 如在U型或W型加热单元内,含于散热管型加热单元中的电阻元件(38)还可用隔离层(39)进行表面涂覆,以防电阻元件(38)的杂质污染和/或腐蚀。

[0448] 散热管型加热器需要对每个单元有电输入和输出端。还需要如图7(a)-(d)中所示的电阻元件(38)的组件在保护管(40)内部相互电连接,以便从输入端输入的电流可从输出端输出。

[0449] 如上所述,可多方面选择电阻元件(38)和/或保护管(40)而与加热器的类型无关。但是,如果需要尽可能防止杂质污染,很重要的是还形成隔离层(39)。

[0450] 本发明的隔离层(39)和/或保护管(40)可能包含一层或多层。但是,如果它包含5层以上,隔离组分之间的热膨胀差异会变得过大,所以形成隔离层(39)需要更多的时间、劳力和费用。因此,隔离层(39)和/或保护管(40)优选包含1层至5层。

[0451] 要求本发明的隔离组分包含可防止杂质从电阻元件(38)向硅颗粒(3)和/或流化气体(10)扩散的成分。

[0452] 如果输入内部加热器(8a)的电流流向高温下有相当大的电导率的硅颗粒(3),硅

颗粒 (3) 可能熔化并瞬时粘结到一起。

[0453] 为了防止此问题,隔离组分可从电绝缘组分中选定,以便隔离层 (39) 和 / 或保护管 (40) 包含至少一层电绝缘层。

[0454] 构成本发明的隔离层 (39) 和 / 或保护管 (40) 的隔离组分可选自能形成绝缘层的组分和 / 或能防止含于电阻元件 (38) 中的杂质扩散入硅颗粒 (3) 和 / 或流化气体 (10) 的阻隔层的组分。

[0455] 所述隔离组分的实例包括在室温下具有非金属性能的元素如硅 (Si) 或硼 (B) 的氮化物、氧化物、碳化物或氧氮化物。

[0456] 此外,所述隔离组分可能包括至少一种在室温下具有金属性的选自下述元素的氮化物、氧化物、硅化物、硼化物、碳化物、氧氮化物或氧化硅:钨 (W)、铼 (Re)、锇 (Os)、钽 (Ta)、钼 (Mo)、铌 (Nb)、铱 (Ir)、钌 (Ru)、铼 (Tc)、铪 (Hf)、铑 (Rh)、钒 (V)、铬 (Cr)、锆 (Zr)、铂 (Pt)、钍 (Th)、镧 (La)、钛 (Ti)、镱 (Lu)、钇 (Y)、铁 (Fe)、镍 (Ni)、镁 (Mg) 和铝 (Al)。

[0457] 基于氮化物的隔离组分包括单组分氮化物如 Si-N、W-N、Os-N、Ta-N、Mo-N、Nb-N、Ir-N、Ru-N、Tc-N、Hf-N、Rh-N、V-N、Cr-N、Zr-N、Pt-N、Th-N、Ti-N、Lu-N、Y-N 等,以及复合金属氮化物如 W-V-N、W-Si-N、Ta-Si-N、Ti-Si-N、Ti-C-N、Hf-Ta-Mo-N 等。

[0458] 基于氮化物的组分大部分具有 2000°C 或更高的熔点和不同于电阻元件 (38) 的其它物理性能,并且可与来自电阻元件 (38) 的杂质结合,使得它们适用作隔离层 (39)。既然基于氮化物的隔离层 (39) 的氮组分几乎不污染加热区 (Z_h),因此它可被用作单层或多层的隔离层 (39)。此外,氮化硅组分含有 Si-N 键,它提供电绝缘性能,可用于同基于氧化物、氧氮化物、碳化物、硅化物或硅氧化物的隔离层 (39) 形成加热单元。

[0459] 基于氧氮化物的隔离组分包括单组分氧氮化物如 Si-O-N、W-O-N、Os-O-N、Ta-O-N、Mo-O-N、Nb-O-N、Ir-O-N、Ru-O-N、Tc-O-N、Hf-O-N、Rh-O-N、V-O-N、Cr-O-N、Zr-O-N、Pt-O-N、Th-O-N、Ti-O-N、Lu-O-N、Y-O-N 等,以及复合金属氧氮化物如 Si-Al-O-N、Hf-Zr-O-N、Mo-W-O-N、V-Mo-W-O-N 等。

[0460] 基于氧氮化物的组分大部分具有 2000°C 或更高的熔点和不同于电阻元件 (38) 的其它物理性能,并且可与来自电阻元件 (38) 的杂质结合,使得它们适用作隔离层 (39)。既然基于氧氮化物的隔离层 (39) 的氮和氧组分几乎不污染沉积区,因此它们可被用作单层或多层的隔离层 (39)。此外,氧氮化硅组分具有 Si-O-N 键,它提供电绝缘性能,可用于同基于氮化物、氧化物、碳化物、硅化物或硅氧化物的隔离层 (39) 形成加热单元。

[0461] 基于氧化物的隔离组分包括单组分氧化物如 Si-O、W-O、Ta-O、Nb-O、Hf-O、Zr-O、Ti-O 等,以及复合金属氧化物如 W-V-O、Ti-Si-O、Sr-Ti-O、Sr-Ti-Nb-O、Sr-La-Al-O、La-Mn-O、Sr-Hf-O、Nb-Ta-O、Ba-Zr-O、Ba-Mo-O、Ba-Ce-O、Ba-Ti-O、Ca-Ti-O、Sr-Zr-O、Sr-Mn-O、Hf-Ta-Mo-O、Y-Zr-O 等。

[0462] 基于氧化物的组分大部分具有 1420°C 或更高的熔点和不同于电阻元件 (38) 的其它物理性能,并且可与来自电阻元件 (38) 的杂质结合,使得它们适用作隔离层 (39)。既然基于氧化物的隔离层 (39) 的氧组分几乎不污染加热区 (Z_h),因此它可被用作单层或多层的隔离层 (39),并且可用于同基于氮化物、氧氮化物、碳化物、硅化物或硅氧化物的隔离层 (39) 形成加热单元。

[0463] 基于碳化物的隔离组分包括单组分碳化物如 Si-C、W-C、Os-C、Ta-C、Mo-C、Nb-C、

Ir-C、Ru-C、Tc-C、Hf-C、Rh-C、V-C、Cr-C、Zr-C、Pt-C、Th-C、Ti-C、Lu-C、Y-C 等,复合金属碳化物如 Si-W-C、Ta-Hf-C、Si-Ti-C 等,以及过渡金属的碳氮化物如 W-C-N、Ta-C-N、Zr-C-N、Ti-C-N 等。

[0464] 基于碳化物的组分大部分具有 2000℃或更高的熔点和不同于电阻元件 (38) 的其它物理性能,并且可与来自电阻元件 (38) 的杂质结合,使得它们适用作隔离层 (39)。由于基于氧化物的隔离层 (39) 的氧组分趋向于污染加热区 (Z_h),所以优选的是,宁可将它作单一隔离层 (39),应用基于氮化物、氧氮化物、硅化物或硅氧化物的隔离层 (39) 将它与加热区 (Z_h) 隔开。

[0465] 基于硅化物的隔离组分包括单组分硅化物如 W-Si、Os-Si、Ta-Si、Mo-Si、Nb-Si、Ir-Si、Ru-Si、Tc-Si、Hf-Si、Rh-Si、V-Si、Cr-Si、Zr-Si、Pt-Si、Th-Si、Ti-Si、Lu-Si、Y-Si、Mg-Si 等,以及复合金属硅化物如 W-V-Si、W-Ti-Si-N、Ti-Zr-Si-C、Hf-Ta-Si-N 等。含有与硅化物键合的氧原子的硅氧化物可包含于基于硅化物的组分中。

[0466] 基于硅化物或硅氧化物的组分可被调节到 1420℃或更高的熔点。此外,由于其它物理性质与电阻元件 (38) 的不同,并且可与来自电阻元件 (38) 的杂质结合,因此,它们能被用作单层或多层隔离层 (39)。还可将它们与基于氮化物、氧化物、氧氮化物或碳化物的隔离层 (39) 加工成加热单元。

[0467] 此外,组成隔离层 (39) 的隔离组分可能包括具有优良物理性能的含硼材料,如硼的氮化物、氧化物、碳化物、氧氮化物等。由于基于硼的隔离层 (39) 的硼成分在高反应温度下可能污染加热区 (Z_h),所以有必要宁可用它作为单一隔离层 (39),应用基于氮化物、氧氮化物、硅化物或硅氧化物的隔离层 (39) 将它与加热区 (Z_h) 隔离。

[0468] 可呈多种方式进行通过根据本发明在电阻元件 (38) 表面形成隔离层 (39) 而构建所述加热单元。

[0469] 例如,如前所述,可这样构建加热单元,即,应用含有隔离层 (39) 隔离组分的结构单元包覆呈同轴多管形式的电阻元件 (38) 的表面而形成隔离层 (39)。

[0470] 当应用这样的隔离层 (39) 结构单元形成隔离层 (39) 时,可这样构建加热单元,即,根据预定的尺寸、形状和数量对每种隔离组分涂覆或制备隔离层 (39) 的结构单元,再用隔离层 (39) 包覆电阻元件 (38)。

[0471] 这种方法适合将隔离层 (39) 的多个结构单元组装而构建加热单元时的情况。隔离层 (39) 的各结构单元包含一层或多层隔离层 (39),包含各自的隔离组分的每层,沿厚度方向呈圆形、多边形、同心圆或同心多边形截面并能包覆电阻元件 (38) 的表面。

[0472] 根据这种方法,在电阻元件 (38) 表面和隔离层 (39) 之间,隔离层 (39) 和隔离层 (39) 之间或者隔离层 (39) 的结构单元之间可能存在微小的空隙,但是它们不会干扰加热单元的特性。

[0473] 另一方面,可通过将各选定的隔离组分涂覆在电阻元件 (38) 表面至预定的厚度而形成隔离层 (39)。这种直接涂覆的隔离层 (39),可应用单个涂覆设备或应用不同的涂覆设备形成包含多层的隔离层 (39)。

[0474] 根据这种方法,隔离层 (39) 能紧密形成在电阻元件 (38) 表面和隔离层 (39) 间或隔离层 (39) 之间不会存在不必要的空隙。

[0475] 此外,加热单元能通过组装隔离层 (39) 的结构单元和通过直接涂覆形成隔离层

(39) 来构建。

[0476] 根据本发明在整个或部分电阻元件 (38) 上形成隔离层 (39) 可用另外的反应器或涂覆设备来进行。另一方面,它可在本发明应用的流化床反应器或在可获得的钟罩型常规沉积反应器内部空间中实施。

[0477] 将电阻元件 (38) 与反应器的相应电极组连接在一起,然后对电极通电来加热电阻元件 (38)。此外,可这样制备加热单元,即,提供源气体在沉积反应器内形成隔离层 (39),从而在电阻元件 (38) 表面形成隔离层 (39)。

[0478] 另一方面,可应用另外的设备在电阻元件 (38) 的表面形成部分隔离层 (39),而余下的隔离层 (39) 可利用本发明应用的沉积反应器或常规沉积反应器进一步形成。

[0479] 在该情况下,一个或多个不完整的加热单元可位于沉积反应器内与电极相连,然后可通过电极供电以加热不完整的加热单元。此外,可导入用于在沉积反应器内形成隔离层 (39) 的源气体而形成隔离层 (39) 和完善可用于本发明的加热单元。

[0480] 此外,在本发明中,包含一层或多层的隔离层 (39) 可通过以下方式形成:(i) 物理气相沉积 (PVD) (包括溅射沉积,脉冲激光沉积,离子注入,离子电镀等);(ii) 化学气相沉积 (CVD) (包括常压 CVD,金属有机 CVD,等离子体增强 CVD (PECVD) 等);(iii) 熔体喷涂,包括各种喷涂技术和气溶胶沉积;(iv) 热反应沉积和扩散 (包括熔盐技术和粉体技术);以及 (v) 各种涂布技术,包括溶胶-凝胶法和溶液法。

[0481] 在本发明中,隔离层 (39) 的厚度优选在 $1\ \mu\text{m}$ 至 5mm 范围内和 / 或保护管 (40) 的厚度优选在 1mm 至 20mm 范围内。

[0482] 如果隔离层 (39) 的厚度总计小于 $1\ \mu\text{m}$,隔离组分不提供足够的阻隔效果。相反,如果厚度总计大于 5mm ,就难以形成隔离层 (39) 并且由于热膨胀的差别会出现层分离,使得更方便使用保护管 (40)。

[0483] 此外,如果保护管 (40) 的厚度总计小于 1mm ,在与硅颗粒 (3) 接触或受外部冲击时它可能容易被破坏。相反,如果厚度总计大于 20mm ,加热区 (Z_h) 的内部加热单元 (8a) 所占的空间会变得不必要的大,并且硅颗粒 (3) 的加热效率不理想。

[0484] 如上所述,构成隔离层 (39) 和 / 或保护管 (40) 的隔离组分和隔离层 (39) 的数量、物理性能等的选择可通过测试阻止杂质扩散的效果,电绝缘性能,物理性能等来预定。

[0485] 如前所述,为了通过在电阻元件 (38) 的表面形成隔离层 (39) 由加热单元更彻底阻止硅颗粒 (3) 的杂质污染,隔离层 (39) 还可包括含硅的硅层作为隔离组分,厚度在 $1\ \mu\text{m}$ 至 5mm 范围内。

[0486] 将硅层加到隔离层 (39) 的必要性及需要添加的硅层的厚度、位置等可通过初步实验确定。

[0487] 如果必要的话,向隔离层 (39) 添加硅层可在本发明的沉积反应器内进行,或者在应用反应气体 (11) 进行硅沉积或应用另外的涂布、膜形成的常规沉积反应器或者反应装置内进行。

[0488] 在该情况下,所述硅层的涂布优选在它可与相应的隔离层 (39) 牢固结合的反应条件下进行。

[0489] 如上所述,在加热单元的制备期间,电阻元件 (38) 的加工前后,隔离层 (39) 的形成前后,或者在硅沉积操作以前,优选在 $400\text{--}3000\text{ }^\circ\text{C}$ 范围的温度下对加热元件进行热处理

来除去或化学改性残余的杂质。

[0490] 此外,加热单元的热处理优选在真空或者在氢、氮、氩、氦等的气氛中进行。

[0491] 热处理可在用于本发明的沉积反应器内或常规沉积反应器内进行。另一方面,它可应用另外的热处理装置或涂布设备来进行。

[0492] 尽管附图中没有阐释所有的实施方案,但是可通过选定和组合本说明书和图 1 至 4 中阐释的必要的内容和基本原理来设想本发明的多种方法和装置。

[0493] 工业适用性

[0494] 从前文的描述,本发明的流化床反应器和应用它制备多晶硅的方法提供了如下优点:

[0495] (1) 由于反应气体供给装置将反应器管内形成的硅颗粒床所在的空间分为反应区和加热区,所以可预防加热区内硅的沉积和积聚以及由此引起的反应器操作的中断的问题。

[0496] (2) 由于可使硅颗粒在两个区之间呈流化态连续地相互混合,并且通过在加热区的内部空间安装的内部加热器对加热区中的硅颗粒和流过该区的流化气体加热,所以可将硅沉积所需的热迅速地供给反应区。

[0497] (3) 由于将所述内部加热器安装在加热区中,所以可将不必要的热损耗减到最小并且容易保持具有良好产率的硅沉积所需的反应温度。

[0498] (4) 当用填充材料在安装于加热区中的内部加热器周围形成填充床时,在增大加热速率、减小加热区底部的热损耗和不中断硅颗粒的流化的同时,可将加热区内加热流化气体所需的热消耗减到最小,这是两个区之间的迅速传热所需的。

[0499] (5) 由于可供通过注入反应气体而连续冷却的反应区足够的热,可增大反应压力并且可将流化床反应器的生产率最大化。

[0500] (6) 由于本发明可适用于任何类别或结构的流化床反应器,只要将硅颗粒床分为反应区和加热区,将反应气体供给装置出口的水准作为参比高度,它广泛地适用于粒状多晶硅的制备。

[0501] (7) 由于可将反应器管两侧之间的压差保持在一个窄的范围内,所以尽管在高压下形成硅沉积物,也可保证反应器管的机械稳定性,并且可预防由反应器管两侧之间的压差引起的反应器管的损坏。

[0502] (8) 本发明可适用于大规模高纯多晶硅颗粒,因为可有效地加热硅颗粒同时将杂质污染减到最小。

[0503] 本领域技术人员能理解的是,可以轻易地将前文描述中公开的构思和具体实施方案用作修饰或设计实现本发明的相同目的的其他实施方案的基础。本领域技术人员还能领会的是,这类等同的实施方案不背离后附的权利要求书限定的本发明精神实质和范围。

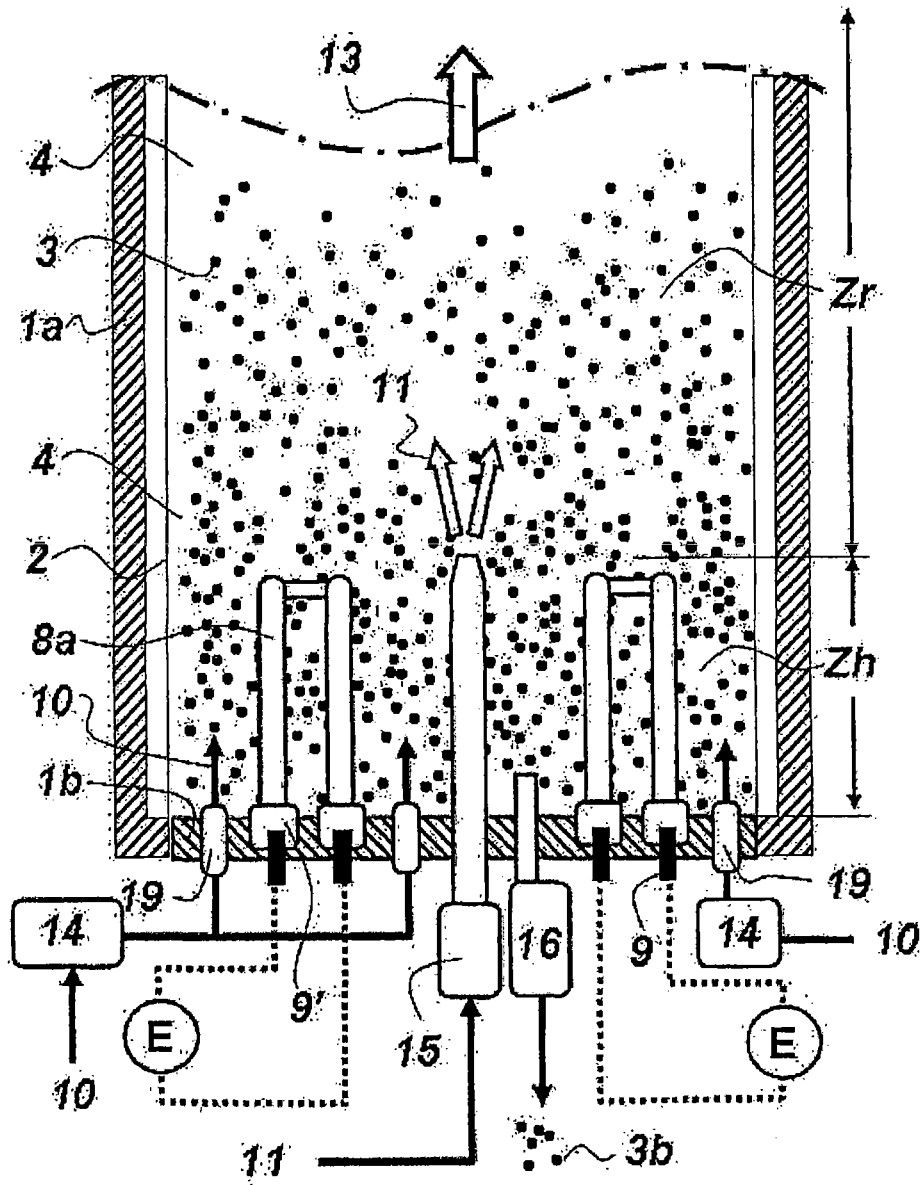


图 1

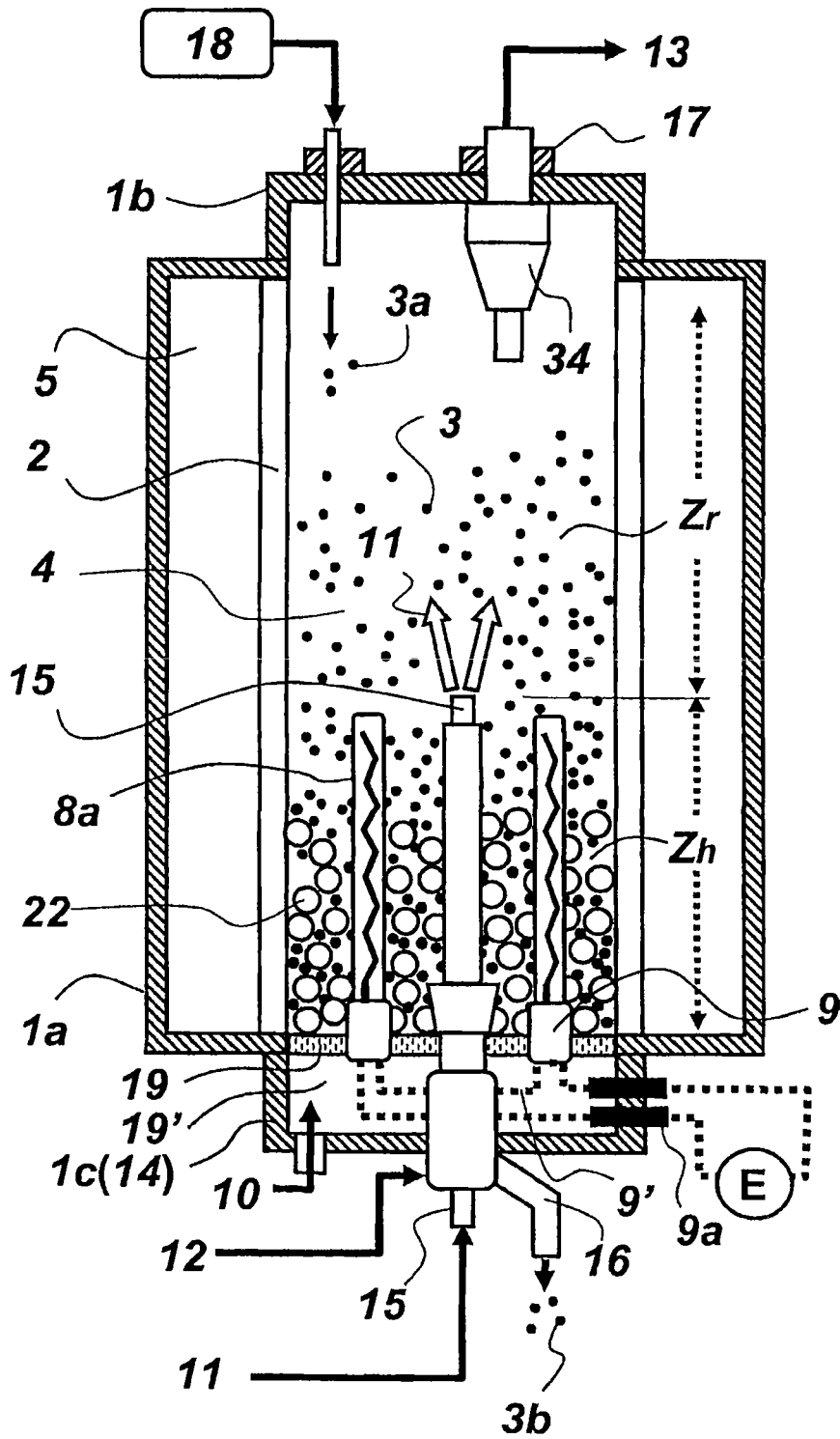


图 2

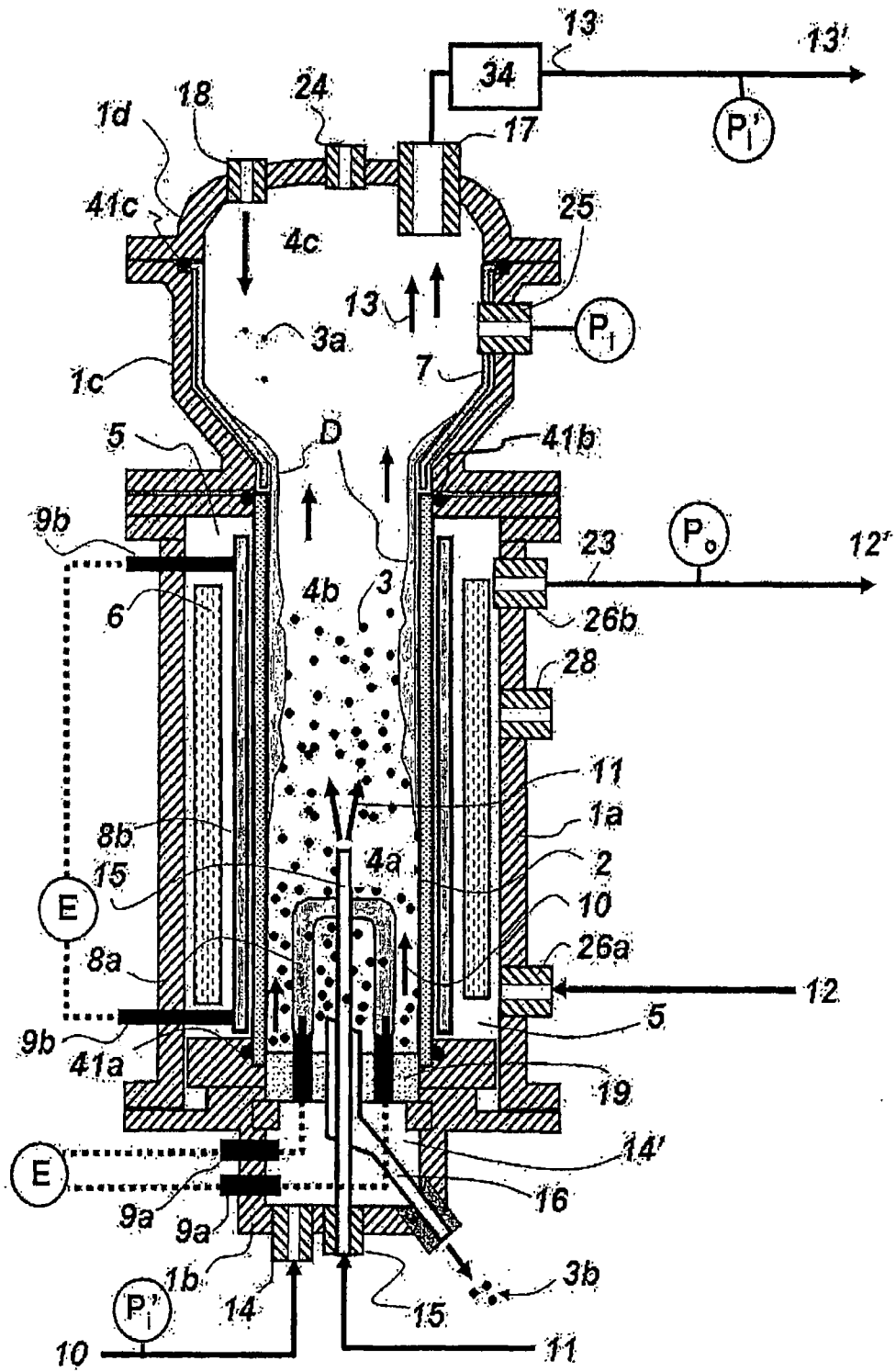


图 3

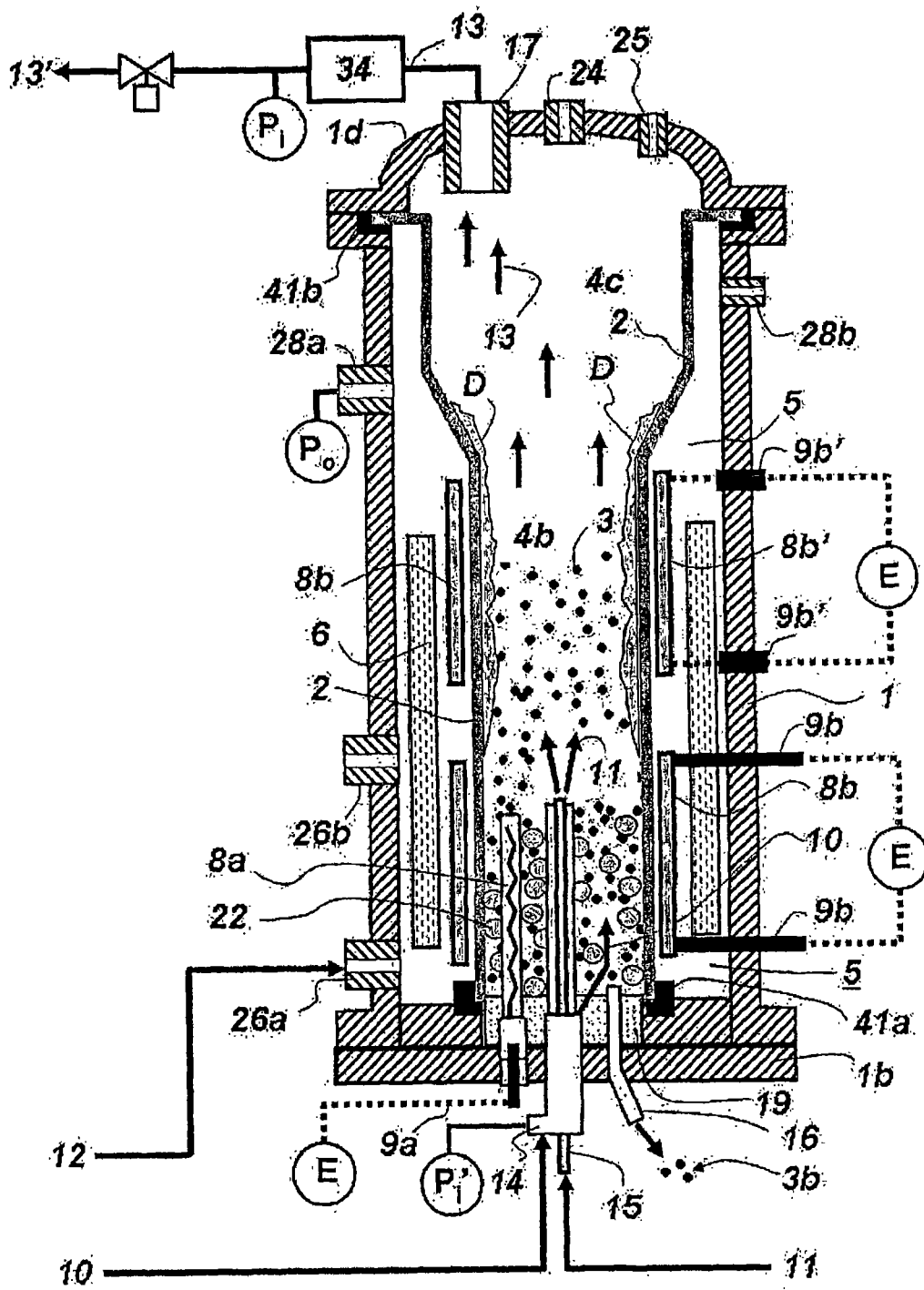


图 4

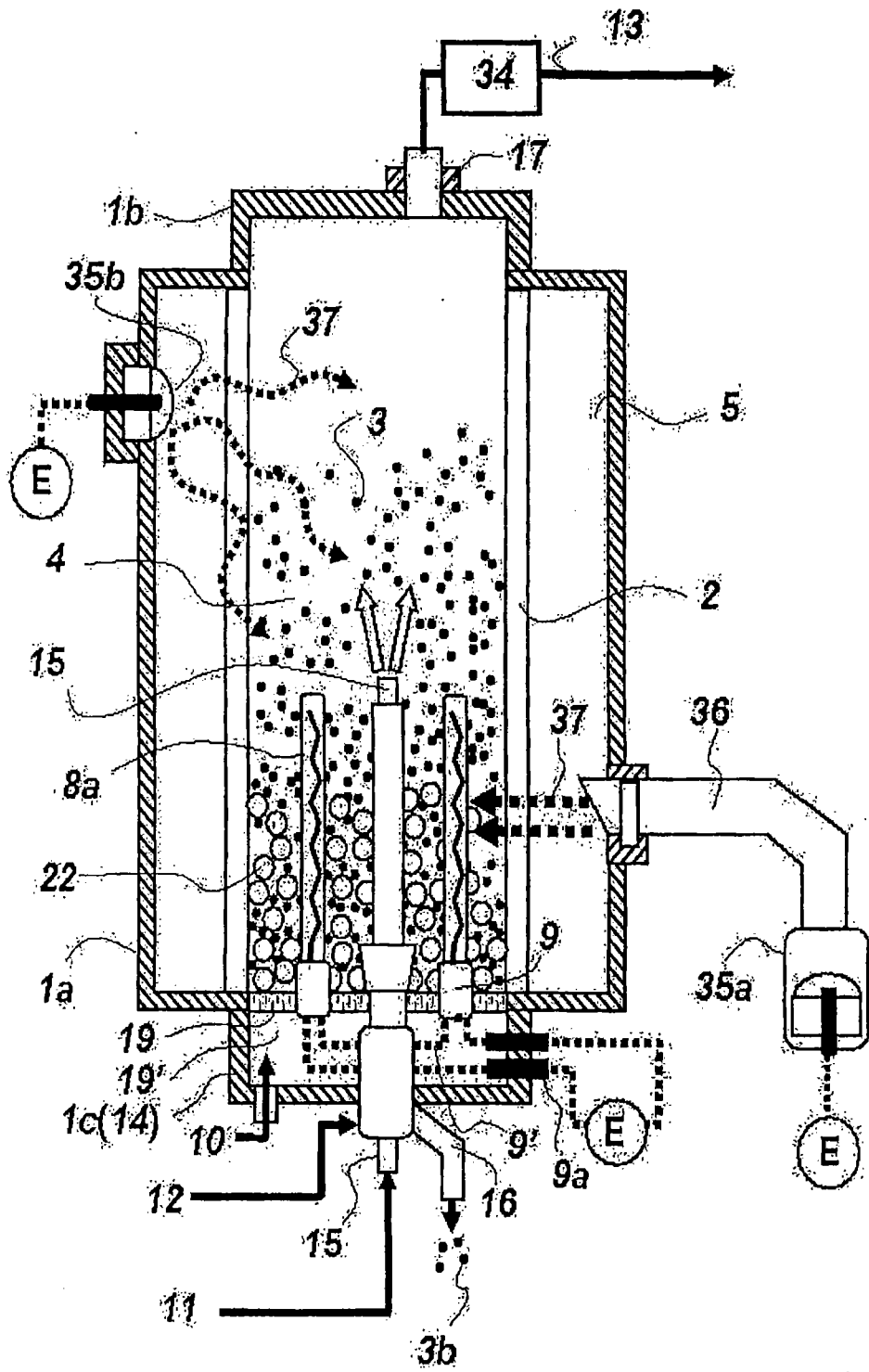


图 5

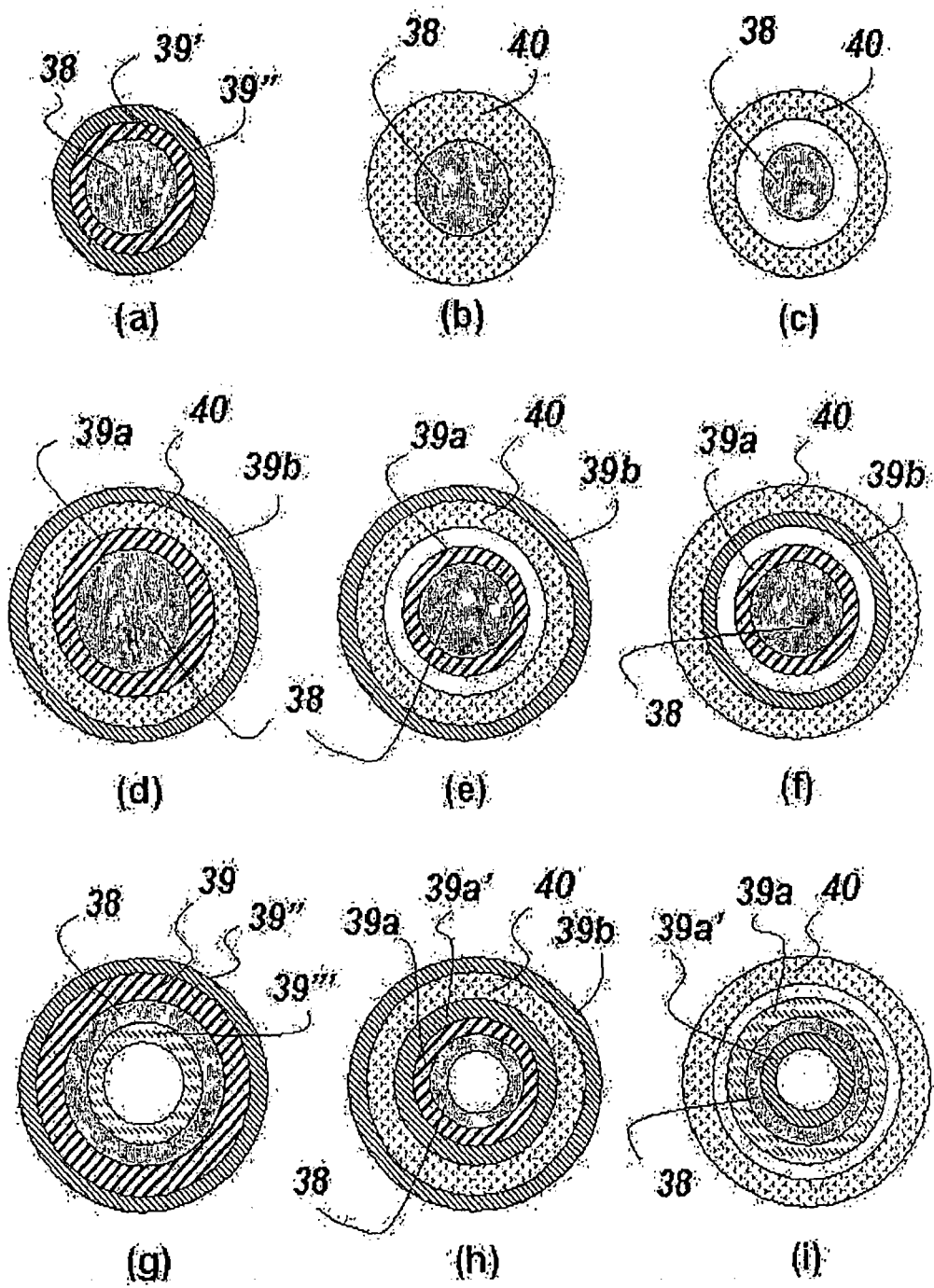


图 6

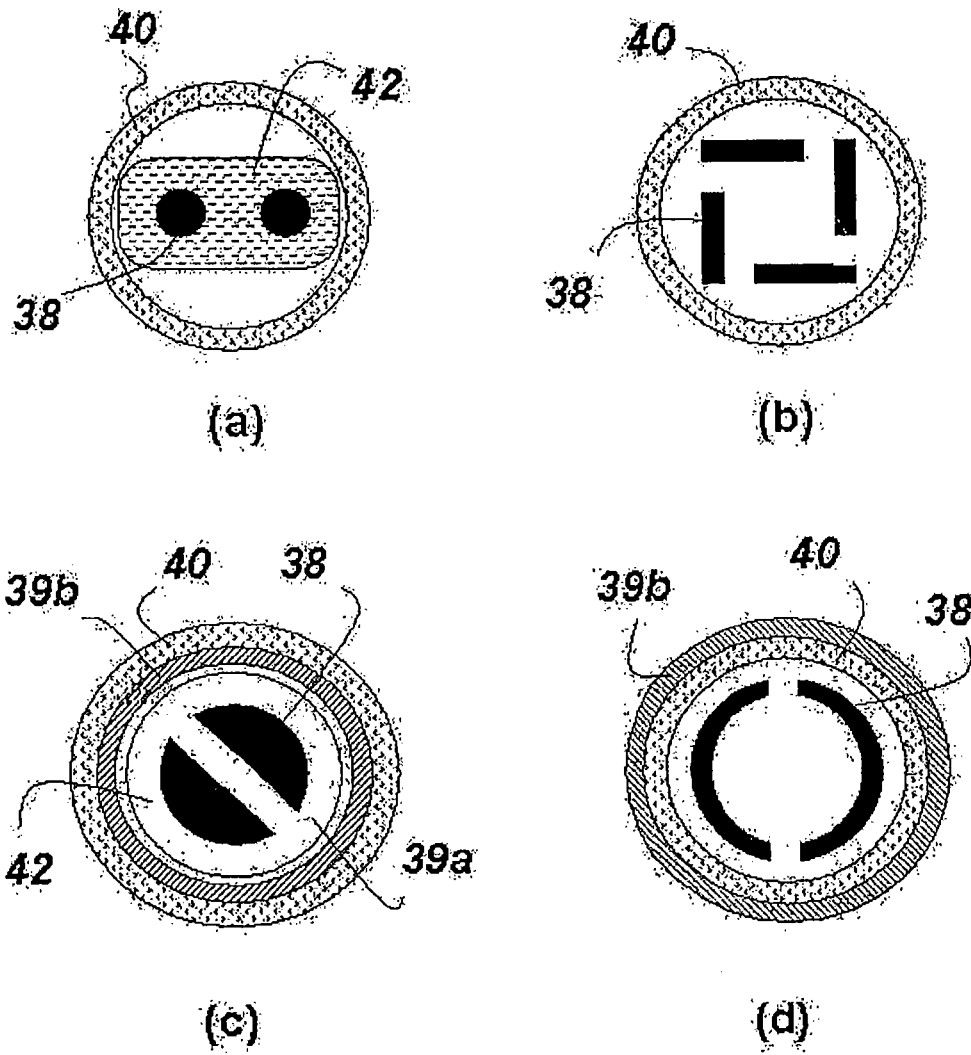


图 7