

(19) 日本国特許庁(JP)

(12) 特 許 公 報(B2)

(11) 特許番号

特許第5194003号
(P5194003)

(45) 発行日 平成25年5月8日(2013.5.8)

(24) 登録日 平成25年2月8日(2013.2.8)

(51) Int.Cl.
C O 1 B 33/035 (2006.01)

F I
C O 1 B 33/035

請求項の数 15 (全 30 頁)

<p>(21) 出願番号 特願2009-511942 (P2009-511942) (86) (22) 出願日 平成19年5月21日 (2007.5.21) (65) 公表番号 特表2009-538265 (P2009-538265A) (43) 公表日 平成21年11月5日 (2009.11.5) (86) 国際出願番号 PCT/KR2007/002457 (87) 国際公開番号 W02007/136209 (87) 国際公開日 平成19年11月29日 (2007.11.29) 審査請求日 平成21年1月21日 (2009.1.21) (31) 優先権主張番号 10-2006-0045707 (32) 優先日 平成18年5月22日 (2006.5.22) (33) 優先権主張国 韓国 (KR)</p>	<p>(73) 特許権者 591199338 コリア リサーチ インスティテュート オブ ケミカル テクノロジー KOREA RESEARCH INST ITUTE OF CHEMICAL T ECHNOLOGY 大韓民国、ダエジオンーシ、ユセーグ、 ジャンードン、100 (74) 代理人 100094053 弁理士 佐藤 隆久 (72) 発明者 キム, ヘ ヨン 大韓民国 305-755 デジョン ユ ソンーグ エオンードン ハンビットアパ ート 101-203</p>
--	---

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 金属コア手段を使用した高純度多結晶シリコン棒の製造方法

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項1】

コア手段をシリコン棒を製造するために使用される析出反応器の内部空間に準備する工程と、

前記コア手段を電極手段に接続して保持する工程と、

前記電極手段を介して電気を供給することにより、前記コア手段を加熱する工程と、

シリコン析出のための前記内部空間内に反応ガスを供給し、その結果前記コア手段の表面の外側方向にシリコン析出生成物 (silicon deposition output) を形成する工程と、を有し、

前記コア手段は、金属コア要素の表面に1または複数の分離層を形成することにより構成されている、

金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項2】

前記反応ガスが、モノシラン (SiH₄)、ジクロロシラン (SiH₂Cl₂)、トリクロロシラン (SiHCl₃)、四塩化ケイ素 (SiCl₄) 及びそれらの混合物からなる群から選択される少なくとも1のシリコン含有成分を含む

請求項1に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項3】

前記反応ガスが、水素、窒素、アルゴン、ヘリウム、塩化水素及びそれらの混合物からなる群から選択される少なくとも1のガス成分を更に含む、

10

20

請求項 2 に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 4】

前記シリコン析出が、内部空間内で、絶対圧力 1 ~ 20 パールの範囲内の反応圧力及び前記シリコン析出生成物の表面温度に基づく 650 ~ 1,300 の範囲内の反応温度で、起こる

請求項 1 に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 5】

前記金属コア要素が、円形、楕円形または多角形の断面形状を有する棒、ワイヤー、フィラメント、バー、ストリップ及びリボンと、同心円形、同心楕円形または同心多角形の断面形状を有する導管、チューブ、シリンダー及びダクトからなる群から選択される形状を有する

10

請求項 1 に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 6】

前記金属コア要素は、タングステン (W)、レニウム (Re)、オスmium (Os)、タンタル (Ta)、モリブデン (Mo)、ニオブ (Nb)、イリジウム (Ir)、ルテニウム (Ru)、テクネチウム (Tc)、ハフニウム (Hf)、ロジウム (Rh)、バナジウム (V)、クロム (Cr)、ジルコニウム (Zr)、白金 (Pt)、トリウム (Th)、ランタン (La)、チタン (Ti)、ルテチウム (Lu)、イットリウム (Y) 及びそれらの混合物からなる群から選択される少なくとも 1 の金属元素を含む金属または合金である

20

請求項 1 又は 5 に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 7】

各々異なる障壁成分で作られた前記分離層の数は、1 ~ 5 の範囲である

請求項 1 に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 8】

前記分離層の各層を構成する障壁成分は、窒化ケイ素、酸化ケイ素、炭化ケイ素、酸窒化ケイ素及びそれらの混合物からなる群から選択される

請求項 7 に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 9】

前記分離層の各層を構成する前記障壁成分は、タングステン (W)、レニウム (Re)、オスmium (Os)、タンタル (Ta)、モリブデン (Mo)、ニオブ (Nb)、イリジウム (Ir)、ルテニウム (Ru)、テクネチウム (Tc)、ハフニウム (Hf)、ロジウム (Rh)、バナジウム (V)、クロム (Cr)、ジルコニウム (Zr)、白金 (Pt)、トリウム (Th)、ランタン (La)、チタン (Ti)、ルテチウム (Lu)、イットリウム (Y) 及びそれらの混合物からなる群から選択される少なくとも 1 の金属元素を具備する窒化物、酸化物、ケイ化物、炭化物、酸窒化物または酸ケイ化物 (oxysilicide) から選択される

30

請求項 7 に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 10】

前記分離層の全体の厚さは、10 nm から 20 mm の範囲内である

40

請求項 7 から 9 のいずれかに記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 11】

前記分離層にシリコン層を加える工程を更に具備し、

前記シリコン層が 1 μm ~ 10 mm の範囲の厚さを有し、

前記シリコンが障壁成分として選択される

請求項 7 から 9 のいずれかに記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 12】

前記シリコン層が、前記金属コア手段と前記電極手段は互いに接続されて、析出反応器

50

の内部空間に設置された状態で前記分離層に追加され、前記金属コア手段は前記電極手段を介して電気を供給することにより加熱され、前記シリコン層を形成するための供給ガスは、反応条件で析出反応器の前記内部空間内に供給され、

前記供給ガスは、前記多結晶シリコン棒を製造するときには、前記シリコン析出生成物を形成するための反応ガス成分から選択され、

前記反応条件は、前記シリコン層と前記シリコン析出生成物が結晶構造と熱膨張に関して、互いに異なり得るように提供される

請求項 1 1 に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 1 3】

前記金属コア要素及び電極手段は互いに接続されて、前記析出反応器の内部空間内に設置され、

前記金属コア要素は前記電極手段を介して電気を供給することにより加熱され、前記分離層を形成するための供給ガスは前記析出反応器の内部空間内に供給され、前記分離層が形成され、その結果、前記コア手段を製造する

請求項 1 に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 1 4】

前記金属コア要素上に前記分離層の一部を形成することにより予め製造された予備コア手段と前記電極手段が互いに接続されて、前記析出反応器の内部空間に設置され、

前記予備コア手段は前記電極手段を介して電気を供給することにより加熱され、付加的な分離層を形成するための供給ガスは内部空間に供給されて、付加的な分離層が形成され、その結果、前記コア手段を製造する

請求項 1 に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【請求項 1 5】

前記コア手段は、予め製造された分離層を前記金属コア要素とともに、前記分離層が前記金属コア要素を取り囲み得る方法で組み立てることにより製造される

請求項 1 に記載の金属コア手段を使用する多結晶シリコン棒を製造する方法。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は棒状の多結晶シリコンを製造するための方法に関する。更に詳しくは、本発明は、棒状の多結晶シリコン (polycrystalline silicon、silicon polycrystal、multicrystalline silicon、polysilicon または poly-Si) を大量生産するために使用されるシリコン析出反応器内に設置されるコア手段を加熱するための電気加熱システムの構成と運転における困難さを最小限にし得る方法に関する。

【背景技術】

【0002】

一般的に、多結晶構造を含む高純度多結晶シリコンは、半導体素子、太陽電池、化学処理装置、産業システム、又は小型で他の高集積精密装置用の重要な原料として使用され、各々、高い純度又は半導体特性を有する材料から成る。

【0003】

多結晶シリコンは、高純度シリコン原子含有反応ガスの熱分解及び/または水素還元により、シリコンの表面にシリコン原子が連続的に析出するシリコン析出方法を使用して製造される。

【0004】

多結晶シリコンの大量生産のためには、鐘型 (bell-jar type)、チューブ型 (tube type) またはチャンパー型の析出反応器が主に使用されてきた。析出反応器によって、多結晶シリコンは一般的に、直径が約 50 ~ 300 mm の範囲内の円形又は楕円形の断面を有する棒状に製造される。

【0005】

10

20

30

40

50

析出反応器内に、コア手段が基本的にシリコン棒の製造のために設置される。商業的生産のためには、コア手段は、析出反応温度で電気が流れ得る、各々コア材料（即ち、コア要素）で製造された複数個のコアユニット（core units）からなる。コア手段を構成するコアユニットは、電極ユニットに各々接続されて、反応器シェル内に電気加熱手段が完成する。そして、シリコンは、シリコン含有成分からなる反応ガスの析出反応により電氣的に加熱されたコア手段の表面に連続的に析出される。上記のように、シリコン析出生成物（silicon deposition output）は、厚さ方向、即ち、析出生成物の同心円の横断面の外側へ、半径方向に形成され、そして拡大され、このようにして、棒状の多結晶シリコン生成物が最終的に得られる。

【0006】

不純物による汚染を最小限にした高純度製品を得るためには、コア手段に代表されるコアユニットが、汚染されていないコア要素により製造又は加工され得る。理想的なコア要素用材料は、棒、ワイヤーまたはフィラメント、中空ダクト（hollow duct）またはチューブ、ストリップ（strip）またはリボン（ribbon）、またはシート（sheet）などのように形成される高純度シリコンである。

【0007】

前記コア手段の周辺に析出生成物を形成させることによって最終的に得られた前記多結晶シリコン棒は、(i) 大きい塊、小さい塊、断片または粒子の形態に分割され、又は粉碎され、(ii) 大きさに従ってグループ化され、(iii) 粉碎工程の間、シリコンの断片の表面に形成された不純物成分を除去するために、必要に応じて洗浄工程を追加的に受けさせて、(iv) シリコンの溶融点以上まで加熱される、るつぼで溶融させ、その後、(v) その用途に従ってインゴット、ブロック、シート、リボンまたはフィルムなどに形成される。

【0008】

析出反応器シェルの内部に構成される電気加熱手段は、電氣的に加熱されるコア手段と、該コア手段をシェル外部に位置する電力供給源に電氣的に接続し、及び/またはコアユニットと互いに電氣的に接続する電極手段からなる。この電気加熱手段は(i) 析出反応温度を維持するために必要な電気加熱、(ii) シリコンを析出するための開始基材（starting substrate）及び、(iii) 連続的な析出によって直径と重量が増加するシリコン棒を安定的に支持するための機械構造を提供するのに役立つ。

【0009】

コア手段を構成する各コアユニットは、コア手段の機能と役割を満足させるコア要素材料などで製造するか、又は加工されるべきである。この目的を達成するためには、(i) 高純度シリコンをそれだけで、またはドーパント成分と共に溶融し、(ii) シリコン融解物を結晶成長または成型させ、そして(iii) コア要素は、成形及び/または機械加工により製造され、その結果、その断面を円形、楕円形、同心円または多角形、三角形、四角形または六角形などに成形し、その直径又は対角線の長さが各々約3～30mmまたは約5～100mmの範囲内であり、その長さが約0.5～6mである。

【0010】

コア要素の製造にはいくつかの方法がある。コア要素各々は、連続的な方法で製造され得る。又、均一な大きさ及び形状を有する複数のコア要素は、大型の単結晶インゴットを単純に切断することにより同時に製造され得る。更に、長いシリコンコア要素は、洗浄雰囲気下において、複数の短いコア要素の一部を溶融接合することにより製造され得る。

【0011】

参照文献W.C.O'Hara, R.B. Herring and L.P. Hunt, "Handbook of Semiconductor Silicon Technology", pp. 46-48, Noyes Publications, 1990における記述によると、析出反応器を使用した多結晶シリコン棒の製造工程において、コアロッド（Core rod）、スリムロッド（slim rod）または直径が小さい開始用フィラメントのような高純度シリコン材料で作られるコア要素を製造することは、非常に大きな経済的及び技術的負担を伴う。抵抗率が室温で非常に高く、温度の増加によって急激に減少する高純度

10

20

30

40

50

シリコンでコア要素が作られる場合、シリコン抵抗率の値を十分に下げるとの付加的な加熱手段によりコア手段を構成するコアユニットを一定温度以上に予熱された後だけ、1対の電極手段に接続され、固定された各コアユニットによる明らかな電流の発生に起因して、コア手段が電氣的に加熱され始める。米国特許第4,179,530号(1979)及び第5,895,594号(1999)に開示されたように、多結晶シリコン棒を製造するためのコア手段の予熱は、別の付加的な予熱手段と複雑な手順を必要とする。

【0012】

一方、米国特許第3,941,900号(1976)及び第4,215,154号(1990)には、高純度シリコンコア要素を別の付加的な予熱手段で予熱することに代わり、適切に構成された電力供給システムを使用して、室温からコア手段に直接電気抵抗加熱を加えるという技術的解決法を開示している。しかしながら、この方法も電力供給回路及びシステムが高度で、高価であり、そして非常に複雑で緻密な運転及び制御を必要とするという欠点を有する。

10

【0013】

コア手段を別の加熱手段により予熱したり、高度の電力供給システムを利用した抵抗加熱により室温で直ちに加熱する方法とは異なり、抵抗率が非常に低くなったシリコンコア要素に高濃度のn型またはp型ドーパントを人為的に加えることで、コア手段を高電圧の電気により室温で直ちに電氣的に加熱することができる。所定の温度範囲まで予熱した後、コア手段は、必要に応じて高電圧及び高電流の電気で、容易に加熱され得る。この方法は、複雑な電力供給手段と、広い範囲の電圧と電流によって緻密な運転を必要とするという欠点を有する。

20

【0014】

一方、コア要素が、シリコンに比べて非常に低い抵抗率の値を有する金属または炭素系材料のような非シリコンの抵抗性材料で製造されるならば、個々のコアユニットに形成されるシリコン析出生成物は、非シリコン材料で製造されたコア要素から発生して、拡散された不純物成分により汚染され得る。しかしながら、低電圧の電気を供給することにより、コア手段が、別の付加的な予熱工程なしに、室温から析出反応温度を超える抵抗加熱により容易に加熱され得る利点がある。米国特許第5,277,934号(1994)及び第5,284,640号(1994)によると、タングステンまたはタンタルは、シリコンの代わりにコア要素として使用され得る。米国特許第5,327,454号(1994)では、高純度シリコン材料の代わりに、モリブデン、タングステンまたはジルコニウムから作られたコア要素を図解する。

30

【0015】

上記のように、抵抗性材料からなる非シリコンコア手段は、便利に費用効率的に製造され得る。しかしながら、シリコン析出により得られた析出生成物は、コア手段を構成する各コアユニット用非シリコンコア要素に含まれる不純物成分による汚染から避けることができない。従って、最近では、半導体用(semiconductor-grade)品質の純度要求が次第に厳しくなっているため、高純度多結晶シリコン棒の商業的生産のために非シリコンコア手段を利用する前記方法を適用することは難しい。このような基本的な問題は、上記O'Haraなどの参考文献(1990)に記載されたように先行技術でも確認されている。シリコン系コア手段の代わりに、ワイヤー型非シリコン、金属コアユニットがコア手段として使用される場合、シリコン棒生成物がかなり便利に得られ得る利点がある。しかしながら、この方法もまた、いくつかの欠点を有する。第1に、シリコン棒が最終的に要求に応じて形成される場合、シリコン棒に含まれる析出生成物とコア手段はシリコン製品として収集されるため、互いに分離されなければならない；第2に、高温でのシリコン析出工程を経て形成される析出生成物は、金属コア要素からの不純物成分によりおそらく汚染されるはずである。

40

【0016】

シリコンコア手段の予熱に少しも困難さがなく、鐘形析出工程に基づく妥当な費用で高純度多結晶シリコンを製造するために、コア材料の代替に起因する前記問題点を解決する

50

ことにより、抵抗性材料である非シリコンをコア要素に適用する価値があり、そして前記問題は、非シリコンコア材料からの金属不純物成分により起こり得る製品の汚染はもちろん、製品としてシリコン析出生成物を集めるためにシリコン棒生成物からコア手段を分離するには困難な工程をも含む。しかしながら、コア手段の予熱の重要性にもかかわらず、さらに、非シリコンコア手段を適用することにより発生するそれらの問題を克服するための単純で費用効率的な解決法を得られていない。

【0017】

上記のように、鐘型反応器内でコア手段を予熱することにおいて、改良された方法を開発することは、棒状の多結晶シリコンの商業的大量生産のための重要な技術的課題である。改良のために必要となる技術的解決法は、電力供給と制御システム、及びコア手段を製造して、機械加工する工程に対する投資費用を減らし、析出反応器の容易な操作及び制御を可能とし、反応器の生産性を高め、そして最終的に製造コストを下げる。

10

【先行技術文献】

【特許文献】

【0018】

【特許文献1】米国特許第4,179,530号

【特許文献2】米国特許第5,895,594号

【特許文献3】米国特許第3,941,900号

【特許文献4】米国特許第4,215,154号

【特許文献5】米国特許第5,277,934号

20

【特許文献6】米国特許第5,284,640号

【特許文献7】米国特許第5,327,454号

【非特許文献】

【0019】

【非特許文献1】W.C. O'Hara, R.B. Herring and L.P. Hunt, "Handbook of Semiconductor Silicon Technology", pp. 46-48, Noyes Publications, 1990

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0020】

従って、本発明の目的は、棒状の多結晶シリコンを製造するための析出反応器において、シリコン析出に必要な電気加熱を始めることができ、コア手段がシリコン析出生成物を構造的に支持することができる金属コア要素を使用することによりコア手段を構成する時に発生する問題を解決することにある。それ故、本発明の目的は、金属コア要素の表面に分離層を形成することにより、高温でのシリコン析出工程で金属コア要素の不純物成分により引き起こされる析出生成物の汚染を最小限にすることにある。

30

【0021】

本発明の別の目的は、シリコン析出工程が完了した後、シリコン棒生成物からコア手段と析出生成物を容易な容易な分離を可能にすることにある。

【0022】

更に、高純度シリコン材料で作られたコア手段が別の予熱工程により予熱され、それから、その電気加熱が開始され得る既存の析出反応器とは異なり、本発明の更なる目的は、電氣的にコア手段を簡単に、容易な方法で室温から、いかなる予熱工程もなく加熱することにある。

40

【0023】

本発明のまた別の目的は、シリコン材料より物理的特性が優れた金属コア要素に基づいて、より簡単な方法で設計されて、構成された析出反応器を使用することにより、半導体素子または太陽電池に使用され得る高純度多結晶シリコン棒を安価で製造することにある。

【課題を解決するための手段】

【0024】

50

前記目的を達成するために、本発明は、コア手段が金属コア要素の表面に1または複数の分離層を形成することにより構成され、電極手段に接続されたシリコン棒を製造するために使用される析出反応器の内部空間内にコア手段を設置し；前記電極手段を介して電気を供給することにより前記コア手段を加熱し；そして前記シリコン析出のための内部空間内に反応ガスを供給し、その結果、前記コア手段の表面の外側方向に析出生成物を形成する工程を具備する、金属コア手段を使用して多結晶シリコン棒を製造する方法を提供する。

【0025】

ここで、前記反応ガスは、モノシラン (SiH_4)、ジクロロシラン (SiH_2Cl_2)、トリクロロシラン (SiHCl_3)、四塩化ケイ素 (SiCl_4) 及びそれらの混合物からなる群から選択された少なくとも1つのシリコン含有成分を含む。

10

【0026】

ここで、前記反応ガスは、水素、窒素、アルゴン、ヘリウム、塩化水素及びそれらの混合物からなる群から選択された少なくとも1つのガス成分を更に含む。

【0027】

また、前記シリコン析出は、内部空間で絶対圧力1~20バールの範囲内の反応圧力及び前記析出生成物の表面温度に基づいて650~1,300の範囲内の反応温度で起こる。

【0028】

更に、前記金属コア要素は、円形、楕円形または多角形の断面形状を有する棒、ワイヤー、フィラメント、バー、ストリップ及びリボンと、同心円形、同心楕円形または同心多角形の断面形状を有する導管、チューブ、シリンダー及びダクトからなる群から選択された形状を有する。

20

【0029】

また、前記金属コア要素は、タングステン (W)、レニウム (Re)、オスミウム (Os)、タンタル (Ta)、モリブデン (Mo)、ニオブ (Nb)、イリジウム (Ir)、ルテニウム (Ru)、テクネチウム (Tc)、ハフニウム (Hf)、ロジウム (Rh)、バナジウム (V)、クロム (Cr)、ジルコニウム (Zr)、白金 (Pt)、トリウム (Th)、ランタン (La)、チタン (Ti)、ルテチウム (Lu)、イットリウム (Y)、鉄 (Fe)、ニッケル (Ni)、アルミニウム (Al) 及びそれらの混合物からなる群から選択された少なくとも1種の金属元素を備える金属または合金である。

30

【0030】

更に、各々異なる障壁成分で作られた前記分離層の数は、1から5の範囲内である。

【0031】

特に、前記分離層の各層を構成する障壁成分は、窒化ケイ素、酸化ケイ素、炭化ケイ素、酸窒化ケイ素及びそれらの混合物からなる群から選択される。

【0032】

また、前記分離層の各層を構成する障壁成分は、タングステン (W)、レニウム (Re)、オスミウム (Os)、タンタル (Ta)、モリブデン (Mo)、ニオブ (Nb)、イリジウム (Ir)、ルテニウム (Ru)、テクネチウム (Tc)、ハフニウム (Hf)、ロジウム (Rh)、バナジウム (V)、クロム (Cr)、ジルコニウム (Zr)、白金 (Pt)、トリウム (Th)、ランタン (La)、チタン (Ti)、ルテチウム (Lu)、イットリウム (Y) 及びそれらの混合物からなる群から選択された少なくとも1種の金属元素を備える窒化物、酸化物、ケイ化物、炭化物、酸窒化物または酸ケイ化物 (oxysilicide) から選択される。

40

【0033】

また、前記分離層の全体の厚さは、10nm~20mmの範囲内である。

【0034】

特に、本発明による方法は、前記分離層にシリコン層を加える工程を更に含み、前記シリコン層は1µm~10mmの範囲内の厚さを有し、前記シリコンは前記障壁成分として

50

選択される。

【0035】

ここで、前記シリコン層は、前記金属コア手段と電極手段が互いに接続され、析出反応器の内部空間内に設置された状態で前記分離層に追加され、前記金属コア手段は前記電極手段を介して電気を供給することにより加熱され、そしてシリコン層を形成するための供給ガスは反応条件で析出反応器内部空間内に供給され、前記供給ガスは、多結晶シリコン棒を製造するときには前記析出生成物を形成するための反応ガスの成分から選択され、反応条件は、結晶構造と熱膨張に関して前記シリコン層と析出生成物が互いに異なり得るように提供される。

【0036】

そして、前記金属コア要素及び電極手段は互いに接続され、前記析出反応器の内部空間内に設置され、前記金属コア要素は前記電極手段を介して電気を供給することにより加熱され、前記分離層を形成するための供給ガスは内部空間内に供給されて、前記分離層が形成され、その結果、前記コア手段が製造される。

【0037】

特に、前記金属コア要素上に前記分離層の一部を形成することによって予め製造された予備コア手段と、前記電極手段を互いに接続させ、前記析出反応器の内部空間内に設置され、前記予備コア手段は前記電極手段を介して電気を供給することにより加熱され、付加的な分離層を形成するための供給ガスが内部空間内に供給され、そして付加的な分離層が形成され、その結果、前記コア手段が製造される。

【0038】

また、前記コア手段は、前記分離層が前記金属コア要素を取り囲み得る方法で、前記金属コア要素と共に、予め製造された分離層と組み立てることにより製造される。

【図面の簡単な説明】

【0039】

上記目的、本発明の他の特徴及び利点は、添付の図面を参照して好ましい実施形態を記述することにより、より明確になる。

【図1】図1は、本発明によって多結晶シリコン棒を製造し得る析出反応器の構成を概略的に表す構成図である。

【図2】図2は、本発明によって多結晶シリコン棒を製造し得る析出反応器の他の構成を概略的に表す構成図である。

【図3】図3は、本発明によって、コア手段が6種のコアグループに分けられて、当該コアグループが配置される実施形態を概略的に表す平面図である。

【図4】図4は、本発明によって、異なる2つの断面を有するコアユニットから成るコア手段が2種のコアグループに分けられ、当該コアグループが配置される実施形態と、前記条件を通して形成される析出生成物の形状を概略的に表す平面図である。

【図5】図5は、本発明によってコア要素の表面に分離層を形成することにより構成されるコア手段の表面の外側方向にシリコン析出生成物が形成される状態を概略的に表す横断面(a)及び縦断面(b)であり、円形の断面を有する棒状の金属コア要素の表面に1つの分離層を形成することにより構成されるコア手段の表面の外側方向に析出生成物を形成する工程を表す説明図(illustrative view)である。

【図6】図6は、本発明によってコア要素の表面に分離層を形成することにより構成されるコア手段の表面の外側方向にシリコン析出生成物が形成される状態を概略的に表す横断面(a)及び縦断面(b)であり、円形の断面を有する棒状の金属コア要素の表面に2つの分離層を形成することにより構成されるコア手段の表面の外側方向に析出生成物を形成する工程を表す説明図である。

【図7】図7は、本発明によってコア要素の表面に分離層を形成することにより構成されるコア手段の表面の外側方向にシリコン析出生成物が形成される状態を概略的に表す横断面(a)及び縦断面(b)であり、長方形の断面を有する導管又はチューブ形状の金属コア要素の表面に2つの分離層を形成することにより構成されるコア手段の表面の外側方向

10

20

30

40

50

に析出生成物を形成する工程を表す説明図である。

【図8】図8は、本発明によってコア要素の表面に分離層を形成することにより構成されるコア手段の表面の外側方向にシリコン析出生成物が形成される状態を概略的に表す横断面(a)及び縦断面(b)であり、円形の断面を有する棒状の金属コア要素の表面に3種の分離層を形成することにより構成されるコア手段の表面の外側方向に析出生成物を形成する工程を表す説明図である。

【図9】図9は、本発明によってコア要素の表面に分離層を形成することにより構成されるコア手段の表面の外側方向にシリコン析出生成物が形成される状態を概略的に表す横断面(a)及び縦断面(b)であり、長方形の断面を有する板形状の金属コア要素の表面に2種の分離層を形成することにより構成されるコア手段の表面の外側方向に析出生成物を形成する工程を表す説明図である。

10

【発明を実施するための形態】

【0040】

以下、添付した図面を参照にし、本発明の好ましい実施形態について詳しく説明する。

【0041】

本発明は例えば、鐘型、チューブ型又はチャンバー型などの析出反応器の形状と構造に関わらず多結晶シリコンを棒状に製造するために使用される全ての析出反応器に適用され得る。シーメンス反応器とも称される鐘型析出反応器が商業的目的として最も広く利用されてきたので、本発明は本明細書でこのような鐘型析出反応器(以下、'鐘型反応器'と称する)を参照して説明される。

20

【0042】

図1又は図2に概略的に示されるように、鐘型析出反応器はシェルR_sとベースユニットR_bにより形成された密閉された内部空間R_iと、内部空間R_i内に設置された1又は複数のコアユニットからなるコア手段Cとを含む。

【0043】

対応する電極ユニットに機械的に固定されるコアユニットは、電極手段Eに表される電極ユニットEにより互いに電氣的に接続される。電力は、シェルR_sとベースユニット(base unit)R_bの外部に設置された電力供給源Vから電力伝達手段Tを介して電極手段Eに供給される。

【0044】

30

小型で実験規模の析出反応器において、コア手段は1又は少数のコアユニットのみから成り、各コアユニットは1対の電極ユニットの両端に接続される。その他の点では、多結晶シリコンの大規模な商業的生産のために使用される析出反応器において、コア手段Cは数十~数百のコアユニットをから成り、因習的(conventional)に材料又は形状に関して互いに同一である。

【0045】

本発明におけるキーワード(keywords)及び説明は次の定義に基づく:「コア手段」は、析出反応により生じるシリコン析出生成物の形成の始点である基面を構成する1又は複数の「コアユニット」のグループを表し、そして各コアユニットは、「コア要素」により表される材料からなり、構成され、又は加工される。

40

【0046】

そして、同じようにグループ化された複数のコアユニットは、直列及び/または並列で電氣的に互いに接続され、シリコン析出が完全にグループ化されたコアユニットにほぼ同様の方法で起こり得るため、個別のコアユニットで観測された操作方法及び現象又は特性は、本発明で、同じようにグループ化されたコアユニットのグループを表す「コア手段」という言葉で、集合的に記述される。

【0047】

前記コア手段Cがシリコン析出に必要な温度より高く電氣的に加熱され、反応ガスG_fが内部空間R_i内に供給されると、シリコン析出がコア手段Cの表面で開始する。それから、シリコン析出生成物Dがコア手段Cの外側方向に形成され、多結晶シリコンは最終的

50

に棒状に製造される。この工程では、各コアユニットは、反応器の運転により得られる各多結晶シリコン棒の構造骨組みとしても働く。

【0048】

先行技術による既存の析出反応器において、コア手段は、スリムロッド又はシリコンコアロッドとも呼ばれる薄いシリコンフィラメント状に製造される。この薄い材料は、高純度シリコン融解物から薄い多結晶または単結晶棒状に直接引っ張られ得る。その他の点では、複数のシリコンコア棒は、大きな多結晶又は単結晶シリコンインゴットを所定のコアサイズに機械加工することにより同時に得られ得る。コア手段Cとして表され、それについて作られるコアユニットは、電極手段Eにより代表される対応する電極ユニットに接続される。室温で非常に高い抵抗性を有する高純度シリコンコア棒の構成が使用されるならば、コア手段は、金属材質で作られた反応器シェルR_sがシリコンコア棒を取り囲み得るように、石英で作られたベル・ジャー（bell-jar）と呼ばれる大きい鐘型ドーム内に設置される。更に、予熱手段は、複数のコア棒を抵抗率が約2~5ohm-cm以下に低くなる約350~400以上まで予熱するために、石英材質のベル・ジャーと反応器シェルR_sとの間にさらに設置される。それから、コア手段は、温度の増加にとともに連続して減少するコア手段に課される電位差で、電極ユニットEを経て電気を供給することにより電氣的に加熱され始める。それ故に、この予熱工程は、図1又は図2に図解された反応器よりも複雑な析出反応器の構造を必要とする。

10

【0049】

一方、シリコンコア棒が抵抗率を非常に低くするために多量の不純物成分で非常に汚染されたり、コア要素が抵抗性金属材料で構成されるならば、反応器シェルR_sの内部に石英のベル・ジャー及び/又は別の予熱手段をさらに設置することなく、電極手段Eを経て電気を供給することにより、コア手段Cを室温から直接電氣的に加熱することが可能である。これは、析出反応器の構造が図1または図2に図解されるように単純化されるのを可能にする。しかしながら、このようなコア手段の外側に形成されたシリコン析出生成物が、抵抗性コア手段から外へ移る不純物成分により汚染される可能性がある。それ故に、上述したように、非常に汚染されたシリコン又は抵抗性金属材料を、コア要素として高い純度を要求する多結晶シリコンの製造のために使用することは困難である。

20

【0050】

コア手段C用のコア要素材料として、高純度シリコン、非常に汚染されたシリコン及び抵抗性金属要素を選択する代わりに、本発明は図5~図9に図解されたように、コア手段Cが金属コア要素C_aの表面に一または複数の分離層C_bを形成することにより構成されることを特徴とする。

30

【0051】

本発明において、金属コア要素の表面上の分離層の形成に関わらず、コア手段Cを構成する抵抗性材料に基づく金属コア要素C_aは、電流が電極手段E内に適度な電位差で誘導することにより、室温から析出反応器に要求される析出温度まで容易にそして早く電氣的に加熱され得る。ここで電力は、析出反応器外部に設置された電力供給源Vから電力伝達手段Tを介して電極手段Eに供給される。

【0052】

それ故に、本発明は、シリコン棒を製造するために使用される析出反応器の内部空間R_i内にコア手段Cを設置し、前記コア手段Cは金属コア要素C_aの表面に一または複数の分離層C_bを形成することにより構成され、そして電極手段Eに接続されており、前記電極手段Eを介して電気を供給することによりコア手段を加熱し；シリコンを析出するために前記内部空間R_i内に反応ガスG_fを供給し、その結果、コア手段Cの表面の外側方向に析出生成物Dを形成する工程を具備する。

40

【0053】

コア手段Cを室温から必要な反応温度まで電氣的に加熱する工程において、内部空間R_i内の圧力に特別な制限課されない。より精巧な設備を必要とする高真空の代わりに、加熱は常圧で実施され得る。その他の点では、圧力は、シリコン析出の運転が実施される絶

50

対圧力1～20バールの範囲内で予め選択され得る。しかしながら、本発明はそれに限定されない。

【0054】

このような加熱工程において、内部空間R_iを、水素、窒素、アルゴン、ヘリウム及びそれらの混合物からなる群から選択された雰囲気下に維持することが好ましい。雰囲気を維持するために選択されたガスは、ガス供給手段N_fまたは付加的なガス供給手段を介して内部空間内に供給されても良い。

【0055】

更に、コア手段Cを電気加熱する工程の間、その反応温度を加熱する前であったとしても、反応ガスG_fはガス供給手段N_fまたは付加的なガス供給手段を介して供給されて、析出反応を開始する。しかしながら、本発明はこれに限定されない。

10

【0056】

前記コア手段Cの温度が所望の反応温度の範囲内に維持され手いる間、シリコン析出は、一または複数のガス供給ノズルを備えるガス供給手段N_fを介して供給される反応ガスG_fによりコア手段Cの表面の外側方向に進む。

【0057】

本発明に使用される反応ガスG_fは、モノシラン(SiH₄)、ジクロロシラン(SiH₂Cl₂)、トリクロロシラン(SiHCl₃)、四塩化ケイ素(SiCl₄)及びそれらの混合物からなる群から選択された少なくとも1のシリコン含有成分を含む。シリコン含有成分の熱分解及び/または水素還元反応は、シリコン析出生成物Dを形成するシリコン析出をもたらす。

20

【0058】

棒状の多結晶シリコンを製造するためのシリコン含有成分のみからなるけれども、反応ガスG_fは、水素(H₂)、窒素(N₂)、アルゴン(Ar)、ヘリウム(He)、塩化水素(HCl)及びそれらの混合物からなる群から選択された少なくとも1種のガス成分を更に含んで、析出反応の特性と排出ガスG_oの組成を制御することができる。

【0059】

本発明において、シリコン析出は、内部空間内で、絶対圧力1～20バールの範囲内の反応圧力と、析出生成物の表面温度を基に650～1,300の範囲内の反応温度で起こることが好ましい。

30

【0060】

反応圧力が絶対圧力で1バールより低い場合、析出生成物D上でシリコンの析出速度及び反応生産性は好ましくなく低くなる。もしそうでないならば、反応圧力が増加するほど、析出反応器は生産性の面で有利となる。この特性は、シリコン含有成分としてトリクロロシランが選択される時の方が、モノシランの場合より特に卓越している。しかしながら、析出反応器の生産性を著しく向上するために、反応圧力が20バールを超える水準に維持されるならば、次のような深刻な問題に直面する：析出反応器自身及び反応器を接続する補助ユニットの製作費用が高くなり；工程の安全を確保することが更に難しくなり；原材料の供給速度(moles/hr)は、析出生成物Dの表面温度にとって、コア手段Cの電気加熱により許容反応温度範囲内に維持されるには高くなりすぎる。

40

【0061】

温度測定での利便性および信頼性と、シリコンがコア手段Cの外側方向に析出生成物の表面上に連続的に析出されなければならない、表面温度が内部空間R_i内での析出生成物Dの設置される位置によって異なるという事実を考慮することに基づいて、析出生成物Dの表面温度は反応温度の標準と見なされることが好ましい。

【0062】

反応温度は、使用される反応ガスG_fの組成によって変わるけれども、シリコンの析出速度は、好ましくなく低い析出反応器の生産性のために、650より低い温度で著しく低いか、ごくわずかである。その他の点では、析出速度は反応温度とともに増加する。しかしながら、1,300を超える温度で、再使用され得ない成分の含有量が、排ガスG

50

o 内で過度に増加する。また、コア手段 C の中心部の温度、即ち、1,400 を超えるコア要素の温度は、析出工程の間でシリコン棒の崩壊、及び反応器シェル R s を介した莫大な熱損失を引き起こし得る。それ故に、反応ガス G f 及び排ガス G o の組成、圧力、シリコン析出速度、エネルギー効率などのような条件を考慮して、シリコン析出のための許容温度範囲である反応温度を、650 ~ 1,300 の範囲内で設定することが望ましい。

【0063】

本発明による棒状の多結晶シリコンを製造するための回分式 (batchwise) 工程において、析出生成物 D の直径及び表面積、コア手段 C の熱負荷、析出反応器のシェル R s を介した熱損失が、運転時間とともに増加する。供給速度及び反応ガス G f の組成、反応温度、反応圧力、電力供給などのような運転条件をあらかじめ設定することが望ましい。また、運転時間とともにそれらを変化することにより前記条件を最適化することも重要である。

10

【0064】

反応条件により依存するが、シリコン析出反応器の生産容量は、内部空間 R i 内のコア手段 C を構成するコアユニットの数、即ち、析出生成物 D の表面積とともに増加する。従って、析出反応器のシェル R s は、数十個または数百個のコア手段 C と対応する電極手段 E が配列及び配置され得るように、設計及び製造され得る。しかしながら、コアユニット C の数は本発明において限定されない。

【0065】

金属コア要素 C a は、コア手段 C により全体として表される各コアユニットの中心の主要部だけでなく、本発明によって製造されるシリコン棒を機械的に支持する基本骨格をも構成する材料である。また、金属コア要素 C a は、抵抗加熱が電極手段 E を経て電力供給源 V とそれらの電気接続によりその中で生じ得るように設置されることが要求される。これらの要求が満足されるならば、金属コア要素の形状において特別な制約は必要でなくなる。しかしながら、商業的可能性を考慮して、金属コア要素は、円形、楕円形または多角形の断面形状を有する棒、ワイヤー、フィラメント、バー、ストリップ及びリボンと、同心円形、同心楕円または同心多角形の断面形状を有する導管、チューブ、シリンダー及びダクトからなる群から選択された形状を有する。

20

【0066】

例えば、図5、図6及び図8は、円形の断面を有する棒、ワイヤーまたはフィラメントの形をした金属コア要素 C a を図解する。図7は、同心四角形の中空断面を有する導管、チューブまたはダクトの形をした金属コア要素の中空の成形例を図解する。図9は、長方形の高アスペクト比断面を有するストリップまたはリボンの形をした金属コア要素を図解し、前記比は幅と高さ（又は厚さ）である。

30

【0067】

本発明において、コア手段を構成するのに使用される金属コア要素 C a の材料の融点が、反応温度より少なくとも約500 ~ 1,000 だけ高く、それらの比抵抗が約 $1 \mu\text{ohm-cm}$ ~ 0.1ohm-cm の範囲内であることが好ましく、前記金属コア要素の材料は、タングステン (W)、レニウム (Re)、オスミウム (Os)、タンタル (Ta)、モリブデン (Mo)、ニオブ (Nb)、イリジウム (Ir)、ルテニウム (Ru)、テクネチウム (Tc)、ハフニウム (Hf)、ロジウム (Rh)、バナジウム (V)、クロム (Cr)、ジルコニウム (Zr)、白金 (Pt)、トリウム (Th)、ランタン (La)、チタン (Ti)、ルテチウム (Lu)、イットリウム (Y)、鉄 (Fe)、ニッケル (Ni)、アルミニウム (Al) 及びそれらの混合物からなる群から選択された少なくとも1の金属元素を備える金属または合金であり得る。

40

【0068】

上記のように、金属コア要素の形状は、円形、楕円形または多角形の断面形状を有する棒、ワイヤー、フィラメント、バー、ストリップ及びリボンと、同心円形、同心楕円形または同心多角形の断面形状を有する導管、チューブ、シリンダー及びダクトからなる群から選択され得る。

50

【0069】

製造されるシリコン棒生成物を機械的に支持し、電極手段Eを経て電力供給源Vへの電気接続により、それらの中に抵抗加熱が生じ得るように設置される基本骨格として働かならば、金属コア要素Caの大きさに特別な制約は必要でない。しかしながら、円形の断面を有する金属コア要素Caの場合、その直径が0.1~20mmの範囲内であることが好ましい。その他の点では、中空断面の厚さは、0.1~10mmの範囲内であることが好ましい。高アスペクト比の断面の場合、その厚さ(又は高さ)及び幅は各々、0.1~10mm及び1~200mmの範囲内であることが好ましい。

【0070】

本発明で使用するための優れた電気特性を有することに加えて、コア要素は望ましくは、できるだけ少ない有機又は無機不純物成分を含む高純度材料の中から選択される必要がある。これは、コア要素の外側に形成される析出生成物Dの最小限にされた不純物汚染をもたらし得る。

10

【0071】

一方、コアユニットの長さ方向に基づいて、このコア要素の一部は、直線形、U形、W形などに成形され、その両端は1対の対応する電極手段Eに固定されて設置され得る。直線形は、チューブ型またはチャンバー型の析出反応器に容易な適用のため、好んで利用され得る。W形は抵抗性電気ヒーターに多く利用され; 1対の電極ユニットに設置されて固定されるW形コア要素は、必要に応じて、十分な長さに都合よく製造され得るが、好ましくないことに、析出時間とともに増加する析出生成物Dの重量に耐えるための慎重な設計を必要とする。

20

【0072】

また、図1に図解されたように、コアユニットは、U形(以下、「単体型(single body type)」と称する)コアユニットCが1対の対応する電極ユニットEに適切に固定され得るように設置され得る。また、図2に図解されたように、1対の垂直コア要素部と、垂直部の両側の上端を接続するブリッジ(bridge)としての機能を果たす水平コア要素部は、共に組み立てられて、1対の対応する電極ユニットEに適切に固定される電氣的に接続されたコアユニットC(以下、「組立型」とする)を形成する。

【0073】

個別のコア手段Cを構成するコアユニットは、単体型(U形)コアユニットのような単一コア要素を直接形成することにより製造され得るか、または複数のコア要素部が互いに接続されて、単体型(U形)コアユニットを形成し得る。

30

【0074】

組立型コアユニットについては、コア手段C用コアユニットが複数の直線形コア要素部からなる場合、1対の対応する電極ユニットEに垂直に取り付けられる2つの垂直コア要素部は、ブリッジとしての機能を果たす水平コア要素部と物理的及び電氣的に接続されなければならない。これは、(i)コア要素部の接続部位を機械的に加工するか、(ii)溶接手段またはプラズマ/アークを使用することにより接続部位を溶接または接続するか、(iii)接続フィッティングまたはワイヤー形状の結合材料などの結合補助剤(coupling aid)を使用してコア要素部を接続するか、(iv)先述した方法を組み合わせ

40

【0075】

このような組立型コアユニットにおいて、垂直及び水平コア要素部にとって同一の材料及び同一の断面積を有することが望ましい。しかしながら、垂直及び水平コア要素部が互いに異なる材料で作られ、異なる断面積であっても、本発明を実施するのに問題はない。ここで、断面積、長さなどの含む物理的仕様は、温度依存電気特性に関して決定され得る。更に、垂直コア要素部の両端を加工し、その結果水平コア要素部と効率的に結合することを可能にすることが望ましい。

【0076】

更に、図面に図解されていないが、金属コア要素Caの断面がその長さ方向に沿って変

50

化し得るが、このことは本発明の適用範囲を低下させない。

【0077】

コア要素即ち電気加熱の基礎 (a b a s i s o f) の機能及び役割、及び拡大するシリコン棒を支持する基本の機械的骨格が問題なく実行されるならば、その対応する電極ユニットEと電氣的に接続されるその両端間のコア要素Caの長さに、制約は課され得ない。しかしながら、最小生産設備、析出反応器の内部空間Riの位置に依存する析出生成物Dの形態間の違い、反応器の製造費用 (c o n s t r u c t i o n c o s t) 、析出工程後に取り扱われるシリコン棒生成物の重量などを考慮するならば、金属コア要素Caの各長さは、0.5~20mの範囲内で選択され得る。

【0078】

金属コア要素Caの大きさ及び長さを決定する工程において、金属コア要素Caの長さ
と断面積による電気加熱特性は、析出反応条件、得られるシリコン棒の形状及び重量、反
応器の容量などに関して最適化されることができて、金属コア要素の大きさと長さを最適
化する。

【0079】

既存の鐘形反応器に活用されてきた様々な形状の電極手段は本発明にそのままに使用さ
れ得る。電極手段Eで表される各電極ユニットは、下記要素のうち全部または一部からな
る：(i)低い電気抵抗を有する金属伝導性材料で作られ、それにより電気自己発熱が弱
い電極；(ii)電極と、電力供給のためのケーブル、バー、チューブ、シャフト、導管、
成形物 (s h a p e d a r t i c l e) などの対応する電力伝達手段Tを相互に相互結
合し得る電気結合ユニット又は電気接続手段；(iii)各コアユニットを物理的に支持す
るか、電極を固定しながら、コアユニットを前記電極または電力伝達手段Tと電氣的に接
続する炭素系材質から作られる結合支持体またはチャック；(iv)電極または結合支持体
を、ガス、水またはオイルなどの冷媒で冷却するための冷却手段；(v)析出反応器のシ
ェルRs又はベースRbを構成する金属材料を電氣的に絶縁するための絶縁手段；(vi)
前記のような個別電極ユニットを構成するためのフィッティング及び結合、封止、絶縁及
び組立用の部品など。

【0080】

電極手段Eの対応する電極ユニットの形状及び寸法は、最終的に製造しようとするシリ
コン棒の直径、コアユニットの個数と設置配列、必要な電極手段Eやそれらの対応する電
力伝達手段Tの全てを設置するための許容可能な空間、及び電気自己発熱が弱い電極ユニ
ットの電極の断面積を考慮することにより決定され得る。

【0081】

電極手段を析出反応器のシェルRsまたはベースユニットRbのいずれかに設置するこ
とは許容される。しかしながら、コア手段C及び電極手段Eにかけられるシリコン棒生成
物の重量(荷重)が反応時間の経過とともに、当然増加し続けるため、図1または図2に
図解されたように、設置されたコアユニットの形状が単純または線状であるとき、電極手
段EをベースユニットRbに設置することが構造的側面でも有利である。各コアユニットが
各シリコン棒生成物の荷重に耐えられるように、コアユニットのグループの形状及び構造
が設計されるならば、電極手段Eを、冷却手段が備えられたシェルRs及びベースユニ
ットRbのいずれか又は両方に設置することは許容される。

【0082】

本発明において、電極手段Eは、電力供給システムとコア手段Cとの間の電気接続手段
として働く。各コアユニットに接続された1対の電極ユニットは、単一コアユニットの入
力端子及び出力端子としての機能を果たす。電極ユニット間の相互接続の構成または電極
ユニット全体の電気回路構造は、設置配列、即ちコア手段Cの空間的配置と、それらに対
応する電力供給システムを構成するために予め定められた仕様とによって決定され得る。

【0083】

電極手段Eを構成する電極ユニット及び対応する電力伝達手段Tは、個々に設置され、
最終的に互いに機械的、電氣的に接続され得る。しかしながら、複数の電極ユニットEと

10

20

30

40

50

対応する電力伝達手段 T をより簡単で一体化されたボディのように設計、加工及び予め組み立てることも可能である。

【 0 0 8 4 】

電極ユニットを構成する結合支持体及び/または電気結合ユニットは一般的に、容易に加工し得る高純度の黒鉛材料で作られる。シリコン析出生成物の炭素汚染を防止又は減らすために、炭化ケイ素などの機能性セラミック材料の層は、黒鉛系要素の表面にしばしば形成される。電極ユニットの組立及び設置において、電気絶縁は、伝導性材料と析出反応器の金属系シェル R s 及び/またはベースユニット R b との間に確保されなければならない。

【 0 0 8 5 】

反応器の運転の間、各電極ユニットの一部は、高温の内部空間 R i に曝され、それにより、設置された電気絶縁材料または封止材料が熱分解から保護され得る。従って、ベースユニット R b、金属材料で作られた電極、絶縁部品などの一部または全体を循環される冷媒を使用することにより冷却することが好ましい。

【 0 0 8 6 】

本発明によれば、数十～数百個のコアユニットがシリコン析出反応器の内部空間 R i 内に設置されるため、コアユニットに電気を供給するための電力供給システムを構成する、全てのコアユニットを直列または並列で配置することは好ましくない。それ故に、コア手段 C に接続された電極ユニット E は 1 又は多数の電極グループに分けられることが好ましい。それから、対応するコアユニットが約 1 0 0 ~ 2 0 0 ボルト以下の電位差と、約 1 , 0 0 0 アンペア以下の電流で電氣的に加熱されながら、電気が電極グループごとに独立的に供給され得る。電極グループの区分と対応して、コア手段 C を構成する複数のコアユニットは一つまたは複数のコアグループに分ける。

【 0 0 8 7 】

コアユニットに適用された本発明において、図 3 又は図 4 に図解されるように、コア手段を構成する複数のコアグループは、互いに直列及び/または並列回路で電氣的に相互接続され得る。このような接続体系 (s c h e m e) によって、電極ユニット同士だけでなく、電力供給源 V と電極ユニットとの間を互いに電氣的に接続するための電力伝達手段 T が、析出反応器と対応する電力供給システムに設置されるか、組み立てられ得る。

【 0 0 8 8 】

多数のコアユニットが設置され得る大容量反応器シェル R s において、電力供給用電気回路の構成及び運転条件に応じて、それらの設置位置によりコアユニットの間にはかなりの温度差が生じ得る。更に、この問題は、析出生成物 D の直径が大きくなるにつれ、更に深刻となる。従って、コアグループまたは対応する電極グループは、その上にシリコンが析出されるのを防ぐために冷却される反応器シェル R s の内壁に隣接して設置され、析出反応基の設置配列及び電力供給システムの構成と運転は、反応器シェルに隣接して設置された析出生成物 D からの熱損失が補償され得るように行われる必要がある。

【 0 0 8 9 】

本発明において、電力供給源 V と電極ユニット E とを電氣的に相互接続する電力伝達手段 T は、析出反応器のシェル R s とベースユニット R b の外部に設置され得る。更に、電極ユニット E を相互接続するために使用される電力伝達手段 T 又は電気接続手段は、いずれかの位置、すなわち適当な電気絶縁が金属材質の反応器に対して確保されることが提供される反応器の内部又は外部に、設置され得る。析出反応器の外部に設置される場合、電力伝達手段は、商業的に活用可能な接続手段または、ケーブル、バーまたは成形品のような少ない電力損失を有する導電性金属を備え得る。

【 0 0 9 0 】

この場合、適当な電気絶縁の後、電力伝達手段 T 又は電気接続手段は析出反応器内、例えば、複数の電極ユニット E を電氣的に接続するためのベースユニット R b の真上に設置され、所望する形状に黒鉛材料を機械加工することにより、その目的のために製造される本体 (b o d y) が金属材料に代わって使用され得る。不純物成分や微細粉末の発生を防

10

20

30

40

50

止するために、黒鉛系導電体の表面は、物理的及び／又は化学的に処理されて、炭化ケイ素（SiC）層のような機能性セラミック層を形成することが好ましい。

【0091】

電極ユニットを相互接続するために使用される電力伝達手段T自身または電気接続手段自身は、拡張された電極ユニットとみなされる。なぜならば著しく抵抗加熱が上昇することなく、このように広い断面積を介して電気が流れるという点において共通点を有しているからである。従って、複数の電極ユニットEと、電力伝達手段T又は電極ユニットと相互接続される電気接続手段とは、統合された単一体の形成又は複数の統合された部品の組み立てで設計、製作して設置され得る。この方法は、ベースユニットRbの上部又は下部に設置された複数の電極ユニットEのための電力伝達手段Tを設置するために必要な空間を大幅に減少させ、電極ユニットと対応する電力伝達手段との間の接続に起因する電気接触抵抗の要因を排除し、容易で便利な反応器の組立及び解体を可能とし、そして安全に関する信頼性を強化する。

10

【0092】

各コア手段Cに対する電極グループを電氣的に接続する方式は、上記のように、対応するコアグループの電気回路を構成する方法を決定する。本発明によって、電気が各電極グループに独立的に供給され得るならば、電気加熱のそれぞれの開始時間は各々の電極グループで異なって設定され得る。必要な場合、各々のコアグループの電圧 - 電流条件を異にして制御されることもできる。

【0093】

20

各電極グループに独立的に電力供給を可能にする電力供給システムは、グループが電氣的に直列及び／並列回路に接続され得るように構成され得る。このような電気形式は、各コアユニットに要求される電力、設置配列（空間配列）及び電極ユニットの接続方法、電力供給源の仕様などに基づいて決定される。

【0094】

電力供給源Vは、高電圧 - 低電流特性の入力電気を低電圧 - 高電流特性の出力電気に変換させる機能を有する電力変換システムを含む。本発明において、電力供給源Vは一つに統合された電力変換システムとして構成されることもでき、又は複数の電力変換システムがコアグループごと、即ち、電極グループごとのための別の独立した手段で構成されることもできる。

30

【0095】

シリコン析出工程の間、個々のコアユニットの電気加熱は、コアユニット及び対応するシリコン析出生成物Dを通過する電流、それらの電気抵抗、及び1対の対応する電極ユニット間にかかる電位差との間で相互に依存する傾向がある。電気特性に基づいて、各コア手段、各コアグループ又は各コアユニットの電気加熱の速度を時間に伴って制御することができる。上記のように、これは、制御変数として選択される電圧又は電流のいずれかにより電力供給源Vの運転及び制御を達成することができる。

【0096】

1の析出反応器のための電力供給源Vは、別の析出反応器に含まれる別のコア手段Cに割り当てられ得る。この場合、対応するコアグループ、コアユニット及び電極ユニットを含む一または複数の析出反応器に含まれる1又は複数のコア手段Cは、単一電力供給源V1に基づいて、対応する電力伝達手段Tにより直列及び／または並列回路で電氣的に接続され得る。

40

【0097】

鐘形反応器の基本の特性に従って、析出生成物Dの断面の大きさ、即ち、 $d_1(t)$ 及び $d_2(t)$ は、析出工程の反応時間tによって増加し、シリコン析出生成物間の温度及び物理的形狀の相違が、コアユニットの設置配列によって観察され得る。従って、析出反応器のための電力供給システムを構築し及び運転するときには、コアユニットとコアグループとの間の電氣的性質に差があり、電氣的性質は時間とともに変わり得ることを考慮する価値がある。

50

【0098】

析出反応器が新しく設計されて、本発明を効果的に実施するならば、シリコン析出工程においてコアグループ及び/又はコアユニットによって析出部Dの間で発生し得る温度差及び温度分布を減らす必要がある。この要求を満足するために、コア手段Cに含まれるコアグループ及びコアユニットは、シェルRs、ベースユニットRb、ガス供給手段Gf、ガス排出手段No、温度測定及び制御システムなどの析出反応器からなる要素の仕様又は特性を考慮して、適切に配列されなければならない。また、析出生成物Dの成長に起因する時間による空間上の変化、内部空間Ri内でのガスの流れの時間依存性パターン、反応器シェルRsを介した熱移動による冷却などが、コアユニットの配列(空間配置)に影響を及ぼし得る。

10

【0099】

そして、各コアグループまたはコアユニットに制御された電力を十分に供給するために、制御されるべき電気回路の電圧-電流の特性の変化を使用することも重要である。しかしながら、電力供給システムを制御するために検出された温度を利用することも重要であるので、パイロメーター、温度分布測定器などのように商業的に活用される1又は複数の非接触型温度測定手段が、シェルRs及び/またはベースユニットRbの適切な位置に設置することにより活用され得るように、析出反応器を設計する必要がある。

【0100】

一方、析出反応器の運転の間、電力を供給するための制御パラメータ及び手順は、通常あらかじめ設定されて、許容温度範囲内での設置配列に起因するコアユニット間の温度差を最小化する。このような電力供給方法によって、十分に制御された電気が各コアグループ又はコアユニットに独立的に供給され得る。

20

【0101】

対応する電力伝達手段Tを介して対応するコア手段Cに電力を供給するための電力供給源Vは、各コアグループに別の独立した電力供給システムとして構成され得る。一方、複数の電力供給源は、結合された単一装置として統合されて、対応する電力伝達手段Tを介して電力が各コアグループに独立的に供給される。本発明において、「独立的な電力供給」とは、電力供給源の配置に関わらず、電圧又は電流が各コアグループ又はコアユニットに独立的に調節されて、加えられ得ることを意味する。

【0102】

シリコンコア棒又は金属コア要素からなるコア手段を使用する因習的なシリコン棒の製造方法とは異なり、本発明は、図5から図9に図解されるように、表面に形成された分離層Cbを含む金属コア要素Caからなるコア手段Cに基づいている。従って、析出生成物Dが、電気的に加熱されたコア手段Cの分離層により覆われたその表面の外側方向に形成され、それ故に、高純度多結晶棒が製造され得る。ここで、析出反応器のシェルRsの内部空間Riに与えられたコア手段Cは、コア手段Cの骨格をなす金属コア要素Caの両端が、対応する電極ユニットEと電気的にまたは物理的に接続され得るように設置される。それ故に、遂行された電気加熱は、析出生成物Dの表面で析出反応温度を維持する。本発明において、金属コア要素Caの表面に形成された分離層Cbは、析出生成物Dの形成が開始される基面の役割をし、シリコン析出工程によって拡大する析出生成物Dを安定的に支持する主骨格のようにも作用する。

30

40

【0103】

更に、絶対圧力1~20パールの範囲内の反応圧力と、650~1,300の範囲内の反応温度で、析出生成物Dの表面にシリコン析出を行う工程において、金属コア要素Caの表面を構成する分離層Cbは、対応する金属コア要素Caから析出生成物Dへの不純物成分の拡散を防ぐ障壁としての機能を果たす。

【0104】

また、分離層Cbの物質の種類、構造及び物理的性質が析出生成物Dの多結晶シリコンとは異なるため、分離層Cbと析出生成物Dは互いに容易に分離され得る。

【0105】

50

本発明によって、金属コア要素 C a の表面に形成され、コア手段 C を構成する分離層 C b は、1 又は複数の層からなり得る。分離層 C b を構成する層の数が 5 を超えるならば、分離層形成工程において多量の時間、作業及び費用が必要とされ、本発明の経済的利点を低下させる。従って、分離層 C b の数は 1 から 5 の範囲内であることが好ましく、すなわち、分離層 C b が 5 種以下の層からなることが好ましい。

【 0 1 0 6 】

本発明による分離層 C b は、2 つの金属接触領域間の特定成分又は元素の拡散を防止するための拡散障壁の機能を含む。ここで、分離層 C b の各層を構成する障壁成分は、(i) 窒化ケイ素、酸化ケイ素、炭化ケイ素又は酸窒化ケイ素、又は (ii) 金属コア要素を構成し、タングステン (W)、レニウム (R e)、オスミウム (O s)、タantal (T a)、モリブデン (M o)、ニオブ (N b)、イリジウム (I r)、ルテニウム (R u)、テクネチウム (T c)、ハフニウム (H f)、ロジウム (R h)、バナジウム (V)、クロム (C r)、ジルコニウム (Z r)、白金 (P t)、トリウム (T h)、ランタン (L a)、チタン (T i)、ルテチウム (L u)、イットリウム (Y) 及びそれらの混合物からなる群から選択される少なくとも 1 の金属元素を含む窒化物、酸化物、ケイ化物、炭化物、酸窒化物または酸ケイ化物 (o x y s i l i c i d e) から選択され得る。

10

【 0 1 0 7 】

本発明による分離層 C b を構成する障壁成分は、シリコン又は金属コア要素 C a を構成する金属から選択される元素の窒化物からなる物質を含み、このような窒化物は、S i - N、W - N、O s - N、T a - N、M o - N、N b - N、I r - N、R u - N、T c - N、H f - N、R h - N、V - N、C r - N、Z r - N、P t - N、T h - N、T i - N、L u - N、Y - N などのような単一成分の窒化物と、W - V - N、T i - S i - N、T i - C - N、H f - T a - M o - N などのような混合された金属窒化物を含み得る。

20

【 0 1 0 8 】

このような窒化物系成分の大部分は、2 , 0 0 0 以上の融点を有し、このような窒化物系成分の他の物理的性質が金属コア要素 C a または析出生成物 D と異なる。このような窒化物系成分は、金属コア要素 C a の金属不純物イオンと結合することができ、それで分離層 C b を形成するのに窒化物系成分を使用することが可能である。しかしながら、高温の反応温度で窒化物系分離層 C b の窒素成分により析出生成物 D を汚染する可能性はほとんどなく、それで窒化物系分離層は、単一または複数の分離層 C b を形成するのに使用され、酸化物系、酸窒化物系、炭化物系、ケイ化物系または酸ケイ化物系分離層 C b とともに金属コア手段 C を構成し得る。

30

【 0 1 0 9 】

本発明による分離層 C b を構成する障壁成分は、シリコンまたは金属コア要素 C a を構成する金属の中から選択される元素の酸窒化物からなる物質を含み、このような酸窒化物は、S i - O - N、W - O - N、O s - O - N、T a - O - N、M o - O - N、N b - O - N、I r - O - N、R u - O - N、T c - O - N、H f - O - N、R h - O - N、V - O - N、C r - O - N、Z r - O - N、P t - O - N、T h - O - N、T i - O - N、L u - O - N、Y - O - N などのような単一成分の酸窒化物と、S i - A l - O - N、H f - Z r - O - N、M o - W - O - N、V - M o - W - O - N などのような混合された金属の酸窒化物を含む。

40

【 0 1 1 0 】

このような酸窒化物系成分の大部分は、2 , 0 0 0 以上の融点を有し、酸窒化物系成分の他の物理的性質が金属コア要素 C a または析出生成物 D と異なる。このような酸窒化物系成分は、金属コア要素 C a の金属不純物イオンと結合することができ、それで分離層 C b を形成するのに酸窒化物系成分を使用することが可能である。しかしながら、高温の反応温度で、酸窒化物系分離層 C b の窒素成分により析出生成物 D を汚染する可能性はほとんどなく、それで酸窒化物系分離層は、単一または複数の分離層 C b を形成するのに使用され、窒化物系、酸化物系、炭化物系、ケイ化物系または酸ケイ化物系分離層 C b と共にコア手段 C を構成し得る。

50

【0111】

本発明による分離層C bを構成する障壁成分は、シリコンまたは金属コア要素C aを構成する金属の中から選択される元素の酸化物からなる物質を含み、このような酸化物は、Si - O、W - O、Ta - O、Nb - O、Hf - O、Zr - O、Ti - Oなどのような単一成分の酸化物と、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などのような混合された金属の酸化物を含む。

【0112】

このような酸化物系成分の大部分は、1,420以上の融点を有し、酸化物系成分の他の物理的性質が金属コア要素C aまたは析出生成物Dと異なる。このように酸化物系成分は、金属コア要素C aの金属不純物イオンと結合することができ、それで分離層C bを形成するのに酸化物系成分を使用することが可能である。しかしながら、高温の反応温度で酸化物系分離層C bの酸素成分により析出生成物Dを汚染する可能性はほとんどなく、それで1または複数の分離層C bを形成するのに使用され、窒化物系、酸窒化物系、炭化物系、ケイ化物系または酸ケイ化物系分離層C bとともにコア手段Cを構成し得る。

【0113】

本発明による分離層C bを成す障壁成分は、シリコンまたは金属コア要素C aを構成する金属の中から選択される元素の炭化物からなる物質を含み、このような炭化物は、Si - C、W - 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などのような単一成分の炭化物と、Si - W - C、Ta - Hf - C、Si - Ti - Cなどのような混合された金属の炭化物と、W - C - N、Ta - C - N、Zr - C - N、Ti - C - Nなどのような遷移金属の窒化炭素を含み得る。

【0114】

このような炭化物系成分の大部分は、2,000以上の融点を有し、炭化物系成分の他の物理的性質が金属コア要素C aまたは析出生成物Dと異なる。このような炭化物系成分は、金属コア要素C aからの金属不純物イオンと結合することができ、分離層C bを形成するのに炭化物系成分を使用することが可能である。しかしながら、高温の反応温度で炭化物系分離層C bの炭素成分により析出生成物Dを汚染する可能性があり、それで単一分離層C bの形成に適用するより、窒化物系、酸窒化物系、ケイ化物系または酸ケイ化物系分離層C bで析出生成物Dを分離することが望ましい。

【0115】

本発明による分離層C bを構成する障壁成分は、シリコンまたは金属コア要素C aを構成する金属の中から選択される元素のケイ化物からなる物質を含み、このようなケイ化物は、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などのような単一成分のケイ化物と、W - V - Si、W - Ti - Si - N、Ti - Zr - Si - C、Hf - Ta - Si - Nなどのような混合された金属のケイ化物を含むことができ、このようなケイ化物系成分は、上記のケイ化物に酸素元素を付加することにより得られた酸ケイ系化物を含み得る。

【0116】

成分の含量は、このようなケイ化物系または酸ケイ化物系成分が、1,420以上の融点を有することができるように調節され、ケイ化物系または酸ケイ化物系成分の物理的性質が金属コア要素C aまたは析出生成物Dと異なり、ケイ化物系または酸ケイ化物系成分は金属コア要素C aの金属不純物イオンと結合することができ、それでケイ化物系または酸ケイ化物系成分は、1または複数の分離層C bを形成するのに使用されることができ、ケイ化物系又は酸ケイ化物系分離層は、窒化物系、酸化物系、酸窒化物系または炭化物系分離層C bとともにコア手段Cを形成することができる。

10

20

30

40

50

【0117】

上記のように、分離層C bを構成する障壁成分は、窒化物、酸化物、炭化物または酸窒化物などのような優れた物理的性質を有するホウ素含有成分を含む。高温の反応温度でホウ素系分離層C bのホウ素成分で析出生成物Dを汚染する可能性があるため、金属コア要素C aは、単一分離層C bの形成に適用されるより、窒化物系、酸窒化物系、ケイ化物系または酸ケイ化物系分離層で析出生成物Dから完全に分離されなければならない。

【0118】

本発明によって、金属コア要素C aの表面に分離層C bを形成することによるコア手段Cの構成は、多様な方法で遂行され得る。

【0119】

分離層形成工程の例として、コア手段Cは、上記のような障壁成分で作られる1または複数の分離層構成ユニットでコア要素C aの表面を取り囲むことにより構成され得る。このような分離層構成ユニットは、分離層C bに組み立てられるとき、各ユニットは、所定の寸法、形状及び数で、予め前記障壁成分で製造され、または被覆される必要がある。それから、コア手段Cはそれらを層に組み立てることにより、またはそれらを互いに接続することにより、またはコア要素C aが分離層により取り囲まれる方法で製造された分離層構成ユニットを更に形成することにより完成され得る。この方法は、組立型コアユニットが複数のコア要素部を組み立てることにより構成される場合に特に適している。厚さ方向に障壁成分からなる1または複数の分離層からなるならば、各分離層構成ユニットは、円形、多角形、同心円形または同心多角形の断面形状を有して、予め独立して製作され得る。コアユニットは、層に組み立て、製造された分離層構成ユニットとともにコア要素C aを同心方向に接続することにより構成され得る。この方法によると、微小空間が、コア要素C aの表面と分離層との間、分離層の間または分離層構成ユニットの間に存在し得る。しかしながら、たとえあるとしても、微小空間の存在が本発明に従ってコア要素上の外側方向に析出生成物の形成に逆効果を及ぼすことはない。

【0120】

上記と異なり、分離層C bはコア要素C a表面に障壁成分を被覆することにより形成される。選択された各障壁成分の直接被覆は、所定の厚さでその表面に塗布される。この直接被覆法が使用されるならば、複数の層からなる分離層C bは順々に等しく、同じ被覆装置内で形成され、または多くの別の被覆装置で形成され得る。この方法により、必要な分離層は高密度で密接に形成され得るので、析出生成物Dの形成においていかなる問題も生じることなく、コア要素C aの表面と分離層との間または分離層間に微小空間が観察され得るということはほとんどない。

【0121】

一方、コア要素とそれらに形成された分離層からなる各コアユニットCは、コア要素を有する分離層構成ユニットを組立形式(scheme)と、分離層の直接被覆形式の両方を使用することにより製造され得る。

【0122】

分離層の一部または全体は、コア要素C aの表面に、本発明による別の種類の反応器又は特別のコーティング装置で形成され得る。その他の点では、同一の仕事(work)がシリコン析出反応器で実行され、該仕事は、本発明で使用される析出反応器または利用可能な既存の因習的な析出反応器の内部空間R iでも実施され得る。ここで、1又は複数のコア要素C aが析出反応器の対応する電極ユニット上に設置され、該コア要素は該電極ユニットを介して電気を供給して加熱され、；それから原料ガスは、析出反応器の内部空間に供給されて、コア要素C aの表面に分離層C bを形成し、完成した一組のコア手段Cが最終的に得られる。

【0123】

一方、分離層形成工程は、析出反応器と別の種類のコーティング装置とを組み合わせ、順々に実行されることができ、例えば、特別の被覆装置内に分離層の一部を形成した後、本発明に従った析出反応器又は既存の因習的な析出反応器に分離層C bの残りの部分を更

10

20

30

40

50

に形成することができる。いずれかの析出反応器内で、1又は複数の未完成のコア要素C aが対応する電極ユニット上に設置されて、電極ユニットを介して電気を供給して加熱され、それから、原料ガスが析出反応器の内部空間内に供給されて、未完成のコア要素C aの表面に残りの分離層C bの一部を更に形成し、そしてコア手段Cにより表される、完成された一組のコアユニットが最終的に得られる。

【0124】

本発明による単一層又は複数層からなる分離層C bを形成する工程において、分離層を形成する方法は：(i)物理気相成長法(PVD)(スパッタリング蒸着法、パルスレーザー蒸着法、イオン注入法及びイオンめっき法など含む)；(ii)化学気相成長法(CVD)(常圧化学気相成長法、金属有機化学気相成長法、プラズマ化学気相成長法など含む)；(iii)融解物噴霧被覆法(Melt Spray Coating Method；各種噴霧法及びエアゾール成長法を含む)；(iv)熱反応析出拡散法(溶融塩法及び粉末法を含む)；そして(v)ゾル-ゲル法及び溶液法などのような確立された被覆方法の中から選択され得る。

10

【0125】

本発明によってコア手段Cを構成するためのコア要素C aの表面に形成される個々の分離層C bの厚さは、コア要素C aの種類又は材料、不純物成分の特性、分離層を構成する障壁成分、及び分離層形成する方法などの要因に依存する。個々の分離層の厚さは、数nmから数mmの範囲内であり得る。

【0126】

一般的に、より厚い分離膜は、コア要素C aから析出生成物Dへの不純物成分の拡散をより忠実に十分に防止すると考えられている。しかしながら、約20mmより厚い分離層C bは、過度な費用負担と、分離層C bに従って不必要に大きな温度勾配を課し、析出生成物Dの表面での必要な温度を維持することが非常に困難となる。一方、原子層または数nmの厚さを有する薄膜を形成するために最近発達されて、使用されている先進技術を利用することも可能である。洗練された方法で形成された10nm以下の厚さを有するこのような薄い層は、不純物成分の拡散を防止することもできる。しかしながら、コア要素C a及び分離層C bの表面でしばしば検出される構造上の欠陥の寸法、及びコア要素と分離層間の接触面の実際の粗さ寸法(roughness dimension)を考慮する時、分離層C bの厚さは10nmより厚くなければならない。従って、本発明において、コア手段Cのコア要素C aに形成される分離層C bの全体の厚さが10nm~20mmの範囲であることが好ましい。

20

30

【0127】

前記分離層C bは電気伝導性又は絶縁特性のいずれかを持つことができる。これは、対応する高い伝導性電極ユニットに接続して固定される時、コア手段Cの最も外側の分離層C bの電気特性を熟考する必要がある。分離層C bが優れた電気伝導性を有する時、コア要素C aは分離層C bを介して電極ユニットと十分に接触する。しかしながら、分離層C bが電気絶縁特性を有する障壁成分を含む場合、深刻な接触抵抗を引き起こす分離層の代わりに、伝導性電極ユニットが抵抗性コア要素と直接接触することができるように、このような分離層はコアユニットの両端に形成されるべきではない。

40

【0128】

金属コア要素C aから析出生成物Dへの移動の間、不純物成分はシリコン原子と十分に反応するか、または結合することができる。従って、分離層C bがシリコンを障壁成分として含むシリコン分離層を更に備えて、コア手段Cを構成しても問題ではない。不純物成分により汚染されることから析出生成物Dを防止するために、シリコン分離層は、コア要素C aと分離層C bとの間、分離層C bの間、または分離層C bの最も外側に位置される。シリコン分離層が更に加えられるならば、シリコン層の厚さは、1 μ m~10mmの範囲内とする。その厚さが1 μ mより小さいならば、不純物汚染を防止することができる障壁が不十分となる。しかしながら、厚さが10mmより大きくなる場合には、障壁は不必要に大きくなり、反応器の費用及び生産性のような様々な面で重大な犠牲を必要とする

50

。障壁成分としてシリコンを含むシリコン分離層C bに関して、分離層C bが原料ガスとして反応ガスG fを使用することにより形成されるシリコン分離層C bを含んでも問題はない。ここで、シリコン分離層C bの形成は、シリコン析出生成物Dがシリコン分離層から容易に分離され得るように、結晶構造と熱膨張の特性に関して最適化される必要がある。

【0129】

従って、障壁成分及び/またはシリコンの分離層C bの一部または分離層の全体が、本発明による析出反応器、または先行技術により組み立てられた既存の因習的な析出反応器内のコア要素C aの表面に形成され得る。同じ仕事は、特別な被覆装置、薄膜形成装置又は別種の反応器を使用することにより実行されることもできる。

10

【0130】

上記のように、別の装置で遂行される代わりに、障壁成分としてシリコンを含むシリコン分離層を追加してコア手段Cを構成する仕事は、本発明で使用される析出反応器の内部空間R i内で実行され得る。また、シリコン分離層は、分離層用原料ガスとして、本発明による反応ガスG fを使用してコア手段Cに形成され得る。ここで、シリコン分離層C bの形成は、析出生成物Dがシリコン分離層から容易に分離され得るように、結晶構造と熱膨張特性に関して最適化される必要がある。

【0131】

一方、本発明で使用されるコアユニットを製造する工程の間、コア要素C aを機械加工する前/後、又は分離層形成の前/後または間、又はシリコン析出運転の前に、400～3,000の範囲内の温度で熱処理を遂行して、残留不純物成分を除去するか、または化学的に変化させることが好ましい。そして、コアユニットまたはコア要素の熱処理は、水素、窒素、アルゴンまたはヘリウムなどのようなガス雰囲気下で遂行され得る。該熱処理は、本発明に使用される析出反応器、先行技術により組み立てられた既存の因習的な析出反応器、又は特別な熱処理装置または被覆装置で遂行され得る。

20

【0132】

上記のように、コア手段が室温から本発明による反応温度まで電氣的に、迅速で、容易に加熱された後、シリコン析出生成物は、反応ガスの供給を介してコア手段の外側方向に形成される。このシリコン析出工程は、因習的な析出反応器と実質的に同一である。

【0133】

従って、電気加熱が電極ユニットの使用により遂行され得るならば、先行技術の方法により製作されて設置された利用可能な全ての種類の析出反応器で困難なく、シリコン材料で作られる因習的なコア手段の代わりに本発明による金属コア手段を使用することにより、本発明を適用することが可能である。

30

【0134】

一旦シリコン棒の直径または対角線の長さが最大許容値に達すると、本発明によるシリコン析出運転は終了する。それから、析出運転は、2つの隣接した析出生成物Dの間の不要な接触が起こる前に中止される。その後、反応器は解体され、析出生成物が製品として集められる。

【0135】

本発明によって製造された多結晶シリコン生成物を多結晶または単結晶のインゴット、ブロック、シートまたはフィルムを製造するための原料として使用するために、シリコン棒生成物を析出生成物Dと、コア要素及び/または分離層C bとに分けることが必要である。

40

【0136】

本発明に従うと、コア要素C a、分離層C b及び析出生成物Dは、成分、結晶構造または物理特性の面で互いに異なる。それ故に、本発明により得られた棒状の多結晶シリコンから析出生成物Dを分離して、集めることは困難ではない。このような分離工程において、コア要素C aまたは分離層C bは損傷または破損を被りやすい。しかしながら、分離層形成工程が最適条件で実行されるならば、コア要素C a及び/または分離層C bを回収し

50

、再使用することも可能である。

【0137】

本発明により製造された高純度多結晶シリコン生成物は、半導体素子、太陽電池、化学工程ユニット、産業システム又は小型で高集積精密装置に使用する原料として利用され、各々高純度又は半導体特性を有する材料からなる。

【0138】

本発明により製造された多結晶シリコン生成物は、要求される大きさに基づいて、円筒形または六面体形に加工され、それから包装され得る。また、多結晶シリコン生成物は、大きい塊、小さい塊、断片又は粒子状のシリコン製品に粉碎され得る。必要ならば、製品はさらに洗浄され乾燥されて、粉碎工程の間、汚染されたそれらの表面から不純物成分を除去する。

10

【0139】

円筒形に加工された製品は、フローティングゾーン方法により単結晶の成長のために使用され得る。不規則な形態及び多様な大きさを有する粉碎された製品は、るつぼで溶融され、それから単結晶または多結晶のインゴット、ブロック、シートまたはフィルム形状の物体 (a r t i c l e) に成形され得る。

【0140】

本発明は、下記実施形態とともに、より詳しく以下に説明される。しかしながら、それらが本発明の範囲を限定するわけではない。

【0141】

20

図3は、同一形状を有する36セットのコアユニットからなるコア手段Cの平面的配置を図解し、各コアユニットは、本発明により金属コア要素Caの表面に形成された分離層Cbのある円形断面を有する。このような析出反応器では、全てのコアユニットが直列及び/又は並列回路に配置され得るように、電力供給システムは構成され得る。しかしながら、電力供給源Vから供給される電気の電圧が回路構成によって非常に低く、又は非常に高くかけられるので、この実施形態におけるコア手段Cは、設置配列、すなわちコア手段Cの空間配置によって、6種類のコアグループAからコアグループFに区分される。ここで、各コアグループは6セットのコアユニットを含む。この実施形態の電極Eは、コアグループが互いに並列に相互接続され、一方、各コアグループに含まれるコアユニットが互いに直列に相互接続され得るように構成された電気回路に基づいて、電力伝達手段Tを介して1又は複数の電力供給源に接続される。このような電力供給システムにおいて、電流は、コアグループ-Aの場合、A1 A2 A3 A4 A5 A6の経路に沿って流れ、構成された回路構成によって隣接した電極ユニットEが互いに電氣的に接続されることにより、電力伝達手段T'又は電気接続手段を提供することが好ましい。このようなコア手段の配置と前記配列によって構成された電力供給システムに基づいて、コア手段Cが電氣的に加熱されることで、一旦析出反応器の内部空間Riに反応ガスGfが供給されると、シリコン析出生成物Dがコア手段Cの外側方向に形成される。この析出工程の間、析出生成物Dは、金属コア要素Caからの不純物成分によって明らかに汚染され得ない。結果的に、円に近い断面を有する棒状の多結晶シリコンが製造される。

30

【0142】

40

図4は、12セットのコアユニットを含むコア手段Cの平面配置を図解している。ここで、本発明によって2種の断面を利用するので、コアユニットは、金属コア要素Caの表面に形成された分離層Cbを個々に含む。このような析出反応器において、電力供給システムは、コアユニット全てが直列及び/又は並列回路に配置され得るように構成され得る。しかしながら、電力供給源Vから供給される電気の電圧は、回路構成によって非常に低く、又は非常に高くかけられ得るので、この実施形態におけるコア手段Cは、8セットのコアユニットからなるコアグループ-Aと4セットのコアユニットからなるコアグループ-Bに分けられる。ここで、コアグループ-Aの各コアユニットは、リボン又はストリップ状の金属コア要素からなり、一方、コアグループ-Bのそれは、中空の同心チューブ又は導管形状の金属コア要素からなる。この実施形態の電極Eは、コアグループが互いに並

50

列に相互接続され得るように構成され、各コアグループに含まれるコアユニットが互いに直列に相互接続された電気回路に基づいて、電力伝達手段 T を介して 1 の電力供給源又は複数の電力供給源に接続される。このような電力供給システムにおいて、電流は、コアグループ - B の場合、B 1 B 2 B 3 B 4 の経路に沿って流れ、構成された回路構成によって隣接した電極ユニット E が互いに電氣的に接続されることにより、電力伝達手段 T ' 又は電気接続手段を提供することが好ましい。このようなコア手段の配置と前記配列によって構成された電力供給システムに基づいて、コア手段 C が電氣的に加熱されることで、一旦、析出反応器の内部空間 R i に反応ガス G f が供給されると、シリコン析出生成物 D がコア手段 C の外側方向に形成される。この析出工程の間、析出生成物 D は、金属コア要素 C a からの不純物成分によって、明らかに汚染され得ない。結果的に、円に近い断面を有する棒状の多結晶シリコンが製造される。

10

【 0 1 4 3 】

本発明によって半導体素子及び / 又は太陽電池のための原料として使用される高純度多結晶シリコンを製造するためには、金属コア要素 C a の表面に分離層 C b を形成することが不可欠である。

【 0 1 4 4 】

図 8 に図解されるように、例えば、約 30 μm の厚さ $[= (d b - d a) / 2]$ を有する T i - N 層、約 50 μm の厚さを有するシリコン層、及び約 10 μm の厚さを有する S i - N 層からなる分離層 C b が、99% の純度を有するタングステンで作られた棒状のコア要素 C a の表面に形成されるならば、タングステンのようなコア要素 C a の不純物成分による析出生成物 D の汚染を防止することができる。このような分離層の有益な効果は、誘導結合プラズマ質量分析法 (I C P - M S) などを使用する分析により容易に確認される。

20

【 0 1 4 5 】

別の例として、図 6 に図解されるように、約 30 μm の厚さ $[= (d b - d a) / 2]$ を有する T i - N 層 C b と、約 800 μm の厚さを有する W - S i 層 C b ' の 2 種の分離層が、99.9% の純度を有するタングステンで作られた棒状のコア要素 C a の表面に形成され、従って、タングステンのようなコア要素 C a の不純物成分による析出生成物 D の汚染を防止することもできる。

【 0 1 4 6 】

上記のように、分離層 C b にシリコン層が追加される場合、析出工程のために本発明で使用される反応ガスは、供給ガスとして供給され、コア手段 C を製造するためのシリコン分離層を形成する。

30

【 0 1 4 7 】

シリコン分離層または様々な種類の分離層を金属コア要素 C a の表面に形成する工程は、特別な被覆装置または反応装置で実施され得る。その他の点では、金属コア要素 C a 及び電極ユニット E が、本発明に適用できる鐘型析出反応器の内部空間に互いに接続されて設置された状態で、この工程は実施され、金属コア要素 C a は、電極ユニット E を介して電気を供給することにより加熱され、シリコン層又は他の分離層を形成するための供給ガスは内部空間に供給され、その結果、本発明で要求されるコア手段 C が製造され得る。

40

【 0 1 4 8 】

一方、金属コア要素で分離層 C b ' の一部を作ることによって予め製造される予備コア手段と電極手段 E が内部空間に互いに接続されて、設置される方法によって本発明に必要なコア手段 C を製造することも可能であり、前記予備コア手段は電極手段 E を介して電気を供給することによって加熱され、付加的な分離層 C b " を形成するための供給ガスは内部空間に供給され、従って、シリコンまたは他の障壁成分からなる付加的な分離層 C b " は予備コア手段の表面に製造される。

【 0 1 4 9 】

分離層 C b による有益な効果は、高純度の遷移金属以外の合金で作られたコア要素 C a を適用しても得られる。例えば、トリウム (T h)、ランタン (L a) 及び / 又はチタン

50

(Ti)などの元素がタングステン(W)に0.2~3wt%の範囲内で組み込まれる合金が金属コア要素Caとして使用する場合にも、分離層Cbの効果を得られる。

【0150】

本発明によって、図5、図6及び図8に図解されるように、円形の断面を有する棒、ワイヤーまたはフィラメント、図7に図解されるように、同心四角形の断面を有する導管、チューブ又はダクト、そして図9に図解されるように、長方形の断面を有するストリップ又はリボンなどの様々な形状を有し得る金属コア要素Caの成分に起因される析出生成物Dの汚染を防止するために、分離層形成の様々な方法が適用される。

【0151】

コア手段Cを製造するときには、分離層Cbを形成する工程またはコアユニットを対応する電極ユニットにきつい設置のために必要な形状に加工する工程で、不純物成分がコア手段Cに組み込まれる、発生され得る。従って、本発明によって金属コア手段Cを適用するために、コア手段Cを構成するコアユニットは、400~3,000の範囲内の温度で熱処理されることが好ましい。残留不純物成分を除去するか、又は化学的に変化させるための熱処理は、真空下又は高純度の水素、窒素、アルゴン又はヘリウムのようなガス雰囲気下で実行され得る。

【0152】

上記のように、棒状の多結晶シリコンが、本発明によって製造されたコア手段Cの手段によって析出反応器内に得られた後、製品として使用されるシリコン析出生成物Dを、金属コア要素Ca、分離層Cb又はコア手段Cから分離することが必要となる。本発明によると、前記分離工程は容易に実行され得る。上記分離工程で破損されたコア手段Cは廃棄しても良い。更に、破損されずに分離されて、回収された金属コア要素Ca、分離層Cb又はコア手段Cは、繰り返し使用されて、必要になれば、適当な洗浄工程後、シリコン析出生成物Dを形成することができる。

【産業上の利用可能性】

【0153】

上記のように、本発明による多結晶シリコン棒を製造する方法は、下記の利点を有する。

【0154】

1) 高純度のシリコン材料で作られたコア手段の製造は、コア手段を形成し、そして加工するときには、低い生産工程のために比較的高い費用が必要となり、従って経済的負担が増大する。一方、本発明は、安価なコア材料、コア手段を成形及び加工するときには安い費用、そして向上された生産性に基づいて、経済的で効率的なコア手段の製造を提供する。

【0155】

2) 本発明による金属コア要素の表面に形成された分離層は、シリコン析出の高温工程の間、金属コア要素から析出生成物への不純物成分の拡散を防止するか、又は阻止することができ、従って、高純度の多結晶シリコン棒を製造するための金属コア要素の使用を可能にする。

【0156】

3) 高価な電力供給設備の複雑な運転に基づいて、因習的なシリコン系コア手段を予熱する不可欠な工程に反して、本発明によるコア手段は、一般的で安価な電力供給設備の簡単な運転を基に、室温から反応温度まで容易に電氣的に加熱され得る。それ故に、本発明は、設備及びコア手段の費用、電気加熱の速度、同一生産量に対する析出反応器の運転周期、及び析出反応器の生産性に関して利点を有する。

【0157】

4) 物理的強度の点で、金属コア要素はシリコンコア材料より優れているので、析出により得られる多結晶シリコン棒の構造安定性が高められる。それ故に、より大きい直径及び高さを有する多結晶シリコン棒を製造することができ、従って、各析出反応器当りの生産能力を著しく高める。

10

20

30

40

50

【 0 1 5 8 】

5) 本発明において、シリコン材料よりはるかに高い融点を有する金属コア要素は、コア手段を構成するために使用され得るので、コア手段が加熱される時、シリコン棒の最大直径を増加し、シリコン棒の表面温度を比較的高く維持することができるように、シリコンの溶点より金属コア要素の最大許容温度が高くなる。結果として、シリコン析出反応器の生産性及び経済効率性が著しく高められ得る。

【 0 1 5 9 】

6) 本発明による金属コア手段は、金属コア要素にかかわらず、製品の汚染が最小化されるか、防止されることを特徴とする。従って、本発明は、鐘型、チューブ型又はチャンバー型を含む析出反応器の形状と構造に関係なく、棒状の多結晶シリコンを製造するための全ての種類の析出反応器に広く使用され得る。反応器の生産性を高めるので、本発明は、先行技術で製造及び構成された因習的な析出反応に適用され得る。

10

【 0 1 6 0 】

本発明がここでその好ましい実施形態に関して記述され、そして図解されるが、様々な変更及び変化は本発明の精神と範囲から逸脱することなく、その中でなされ得ることは問う業者にとって明らかである。それ故に、本発明が添付の請求項及びそれらの均等物の範囲内となるこの発明の変更及び変化をカバーすることを意図する。

【 符号の説明 】

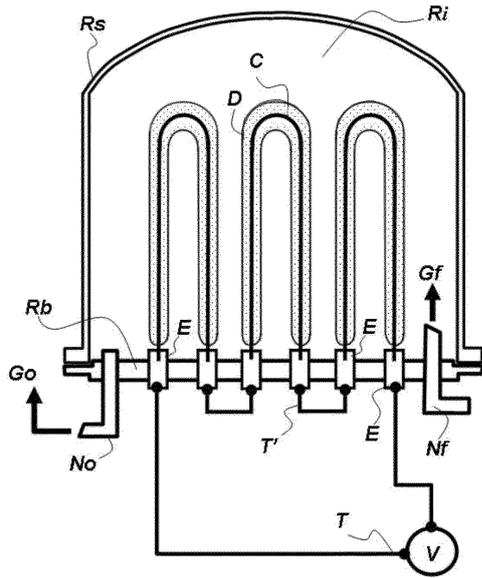
【 0 1 6 1 】

- C コア手段
- C a コア要素
- C b , C b ' , C b " 分離層
- D 析出生成物
- E 電極手段
- G f 反応ガス
- G o 排ガス
- N f ガス供給部
- N o ガス排出部
- R b 析出反応器ベースユニット
- R i 析出反応器の内部空間
- R s 析出反応器シェル
- T 電力伝達手段
- V 電力供給源

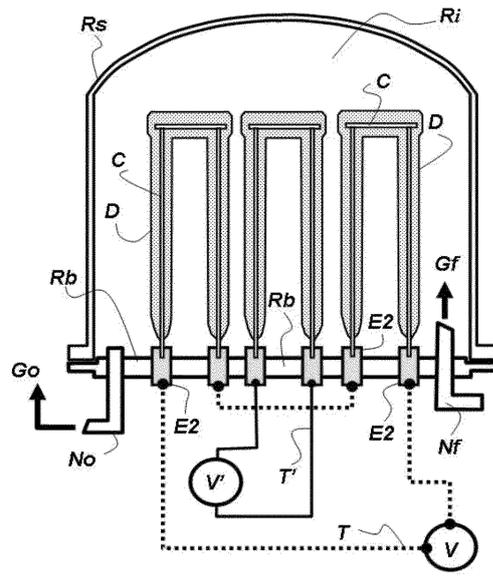
20

30

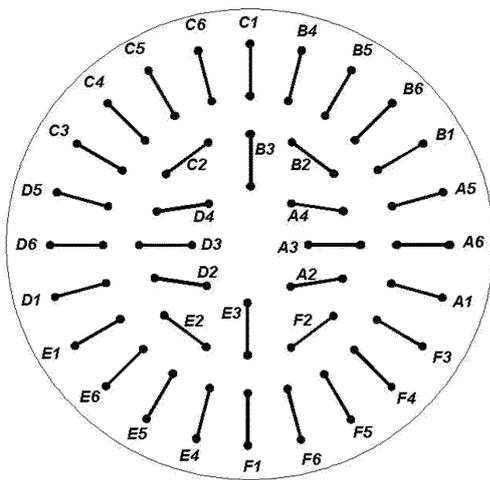
【図1】



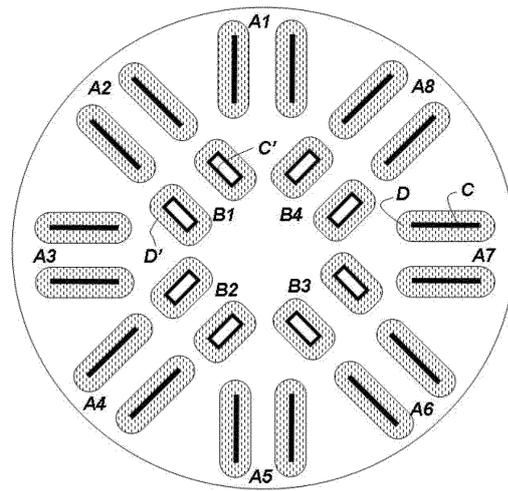
【図2】



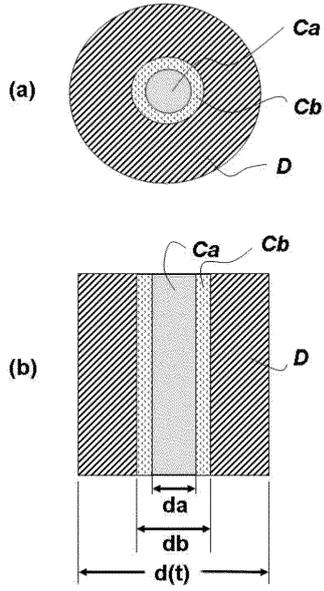
【図3】



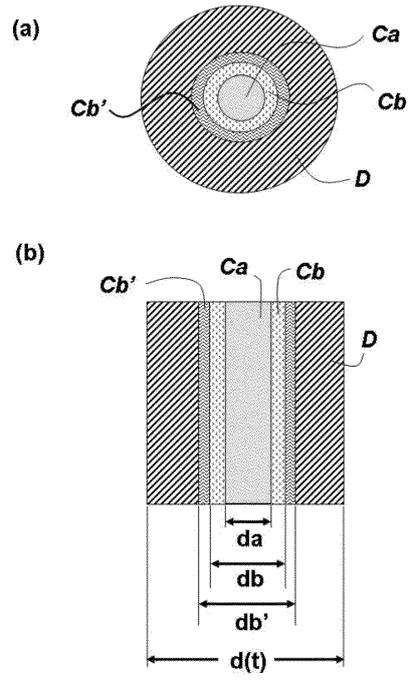
【図4】



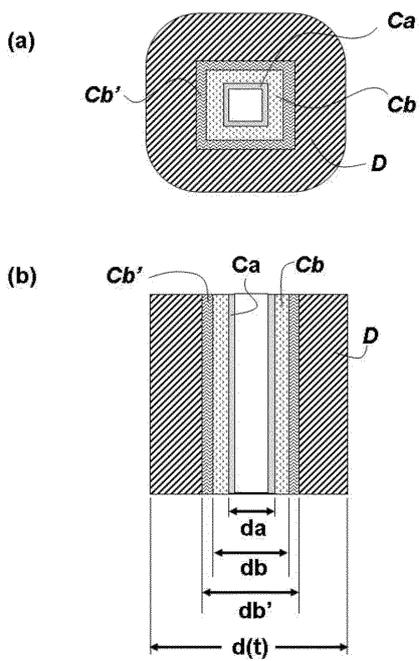
【 図 5 】



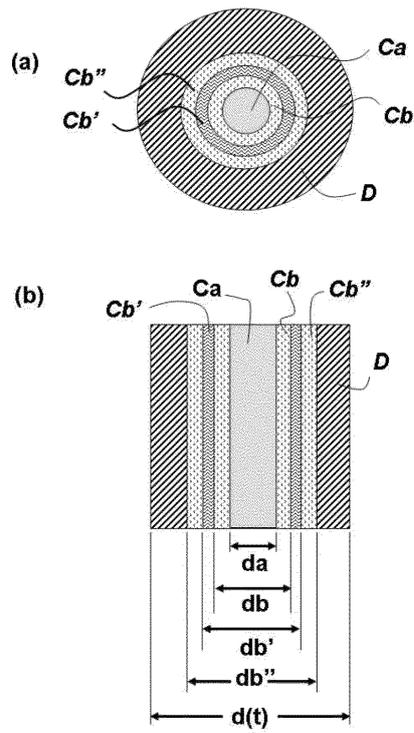
【 図 6 】



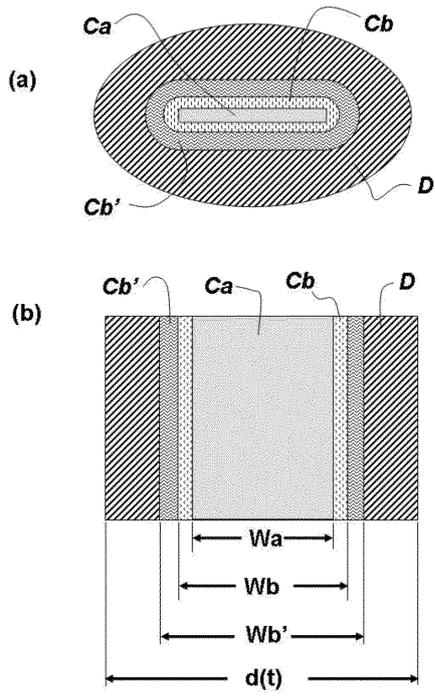
【 図 7 】



【 図 8 】



【 図 9 】



フロントページの続き

- (72)発明者 ヨン, キュン コ
大韓民国 305-755 デジョン ユソン-グ エオン-ドン ハンビットアパート 101
-306
- (72)発明者 パク, ヨン キ
大韓民国 305-755 デジョン ユソン-グ エオン-ドン ハンビットアパート 119
-302
- (72)発明者 モン, サン ジン
大韓民国 305-755 デジョン ユソン-グ エオン-ドン ハンビットアパート 119
-801
- (72)発明者 チョイ, ウォン チュン
大韓民国 305-761 デジョン ユソン-グ ヨンミン-ドン エクスボアパート 210
-1202

審査官 廣野 知子

- (56)参考文献 特公昭36-008707(JP, B1)
特公昭43-001406(JP, B1)
特開2003-119015(JP, A)
特開2006-036628(JP, A)
特開昭53-108030(JP, A)
特公昭49-006463(JP, B1)
特公昭36-000656(JP, B1)
特公昭50-000814(JP, B1)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C01B 33/00-33/193