

(19) 日本国特許庁(JP)

再公表特許(A1)

(11) 国際公開番号

W02014/156986

発行日 平成29年2月16日 (2017. 2. 16)

(43) 国際公開日 平成26年10月2日 (2014. 10. 2)

(51) Int.Cl.			F I	テーマコード (参考)		
C30B	29/06	(2006.01)	C30B	29/06	501Z	4G072
C30B	11/02	(2006.01)	C30B	11/02		4G077
C01B	33/021	(2006.01)	C01B	33/021		

審査請求 未請求 予備審査請求 有 (全 17 頁)

出願番号	特願2015-508425 (P2015-508425)	(71) 出願人	504145342 国立大学法人九州大学 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号
(21) 国際出願番号	PCT/JP2014/057833	(71) 出願人	301023238 国立研究開発法人物質・材料研究機構 茨城県つくば市千現一丁目2番地1
(22) 国際出願日	平成26年3月20日 (2014. 3. 20)	(74) 代理人	100099634 弁理士 平井 安雄
(31) 優先権主張番号	特願2013-61698 (P2013-61698)	(72) 発明者	柿本 浩一 福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 国立大学法人九州大学内
(32) 優先日	平成25年3月25日 (2013. 3. 25)	(72) 発明者	原田 博文 茨城県つくば市千現一丁目2番地1 国立 研究開発法人物質・材料研究機構内
(33) 優先権主張国	日本国 (JP)		

最終頁に続く

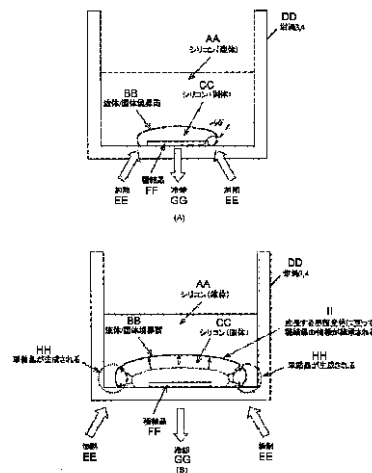
(54) 【発明の名称】 シリコン単結晶生成装置、シリコン単結晶生成方法

(57) 【要約】

鑄造法を利用して高品質で大型のシリコン単結晶を容易に生成することができるシリコン単結晶生成装置を提供する。

底面部の一部の領域に単一のシリコン単結晶の種結晶が保持されると共に、固体及び/又は液体のシリコンが保持される坩堝3、4と、坩堝3、4内に配置されたシリコン単結晶の種結晶の領域を坩堝3、4の底面部から吸熱する吸熱部と、吸熱部により冷却される領域の周辺領域を坩堝3、4の底面部より下方の熱源により加熱する加熱部とを備え、吸熱部による熱流束のベクトルAと加熱部による熱流束のベクトルBとが、 $A \times B < 0$ の関係を保って制御される。

【選択図】 図3



AA SILICON (LIQUID)
 BB LIQUID/SOLID INTERFACE
 CC SILICON (SOLID)
 DD CRUCIBLE (3, 4)
 EE HEATING
 FF SEED CRYSTAL
 GG COOLING
 HH SINGLE CRYSTAL IS PRODUCED
 II INFORMATION ON SEED CRYSTAL IS INHERITED OVER WHOLE OF GROWING INTERFACE

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

底面部の一部の領域に単一のシリコン単結晶の種結晶が保持されると共に、固体及び／又は液体のシリコンが保持される坩堝と、

前記坩堝内のシリコン熔融液を少なくとも前記種結晶の領域を含んで前記坩堝の下方から吸熱する吸熱部と、

前記吸熱部により冷却される領域の周辺領域を加熱する加熱部とを備え、

前記吸熱部による熱流束のベクトル A と前記加熱部による熱流束のベクトル B とが、 $A \times B < 0$ の関係を保って制御されることを特徴とするシリコン単結晶生成装置。

【請求項 2】

請求項 1 に記載のシリコン単結晶生成装置において、

前記吸熱部が前記坩堝の底面部から前記坩堝内を冷却すると同時に、前記加熱部が前記吸熱部により冷却される領域の周辺領域を前記坩堝の底面部より下方に配設された熱源により加熱することを特徴とするシリコン単結晶生成装置。

【請求項 3】

請求項 1 又は 2 に記載のシリコン単結晶生成装置において、

前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御する制御手段を備え、

前記制御手段が、前記シリコン単結晶の少なくとも一部が種結晶として固体を維持するように、前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御して、前記種結晶の領域の温度を調整することを特徴とするシリコン単結晶生成装置。

【請求項 4】

請求項 1 ないし 3 のいずれかに記載のシリコン単結晶生成装置において、

前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御する制御手段を備え、

前記制御手段が、前記シリコン単結晶の成長面及び前記坩堝の底面がなす固化された前記シリコン単結晶の角度が 90° より大きく維持されるように前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御することを特徴とするシリコン単結晶生成装置。

【請求項 5】

請求項 1 ないし 4 のいずれかに記載のシリコン単結晶生成装置において、

前記坩堝内における所定箇所の温度を検出する温度検出手段と、

前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御する制御手段とを備え、

前記温度検出手段で検出された前記温度に基づいて、前記吸熱部及び／又は前記加熱部の熱流束が制御されることを備えることを特徴とするシリコン単結晶生成装置。

【請求項 6】

坩堝内の底面部にシリコン単結晶の種結晶を投入し、生成されるシリコン結晶の原料となる固体のシリコンを投入する原料投入ステップと、

前記原料を加熱して熔融する熔融ステップと、

熔融した前記原料を少なくとも前記種結晶の領域を含んで前記坩堝の下方から吸熱すると同時に、当該吸熱領域の周辺領域を加熱してシリコン結晶を生成する結晶生成ステップとを含み、

前記結晶生成ステップが、前記吸熱による熱流束のベクトル A と前記加熱による熱流束のベクトル B とが、 $A \times B < 0$ の関係を保って実行されることを特徴とするシリコン単結晶生成方法。

【請求項 7】

請求項 6 に記載のシリコン単結晶生成方法において、

前記結晶生成ステップが、前記坩堝の底面部から前記坩堝内を冷却すると同時に、当該冷却される領域の周辺領域を前記坩堝の底面部より下方に配設された熱源により加熱することを特徴とするシリコン単結晶生成方法。

【請求項 8】

請求項 6 又は 7 に記載のシリコン単結晶生成方法において、

前記結晶生成ステップが、前記シリコン単結晶の少なくとも一部が種結晶として固体を

10

20

30

40

50

維持するように、前記吸熱及び前記加熱の熱流速を制御して、前記種結晶の領域の温度を調整することを特徴とするシリコン単結晶生成方法。

【請求項 9】

請求項 6 ないし 8 のいずれかに記載のシリコン単結晶生成方法において、前記結晶生成ステップが、前記シリコン単結晶の成長面及び前記坩堝の底面がなす固化された前記シリコン単結晶の角度が 90°より大きく維持されるように前記吸熱及び前記加熱の熱流速を制御して実行されることを特徴とするシリコン単結晶生成方法。

【請求項 10】

請求項 6 ないし 9 のいずれかに記載のシリコン単結晶生成方法において、前記結晶生成ステップが、前記坩堝内の所定箇所で検出された温度に基づいて、前記吸熱及び/又は前記加熱の熱流束を制御して実行されることを特徴とするシリコン単結晶生成方法。

10

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本発明は、鑄造法によりシリコン単結晶を生成するシリコン単結晶生成装置等に関する。

【背景技術】

【0002】

シリコンの単結晶を生成する方法として、チョクラルスキー（CZ）法や浮遊帯域（FZ）法が一般的に行われている。CZ法は、坩堝内で多結晶のシリコンを溶融し、作成したい方位の種結晶と共に引き上げて単結晶を生成するものである。また、FZ法は、棒状の多結晶シリコンの下部に種結晶を配設し、加熱により種結晶と多結晶との境界部分を溶融して単結晶を生成するものである。いずれの方法においても高品質なシリコン単結晶を生成することができるが、設備が高価になるとともに、作業工程が煩わしいものとなり、太陽光パネルなどに用いるような大型のものや大量生産に不向きな技術である。

20

【0003】

そこで、太陽光パネルなどに用いる大型のシリコン結晶を効率よく生成するために鑄造法が用いられている（例えば、特許文献 1 を参照）。鑄造法は固体のシリコンを坩堝内で溶融し冷却することで、シリコン結晶を大量に安価に生成することができる。しかしながら、この従来 of 鑄造法では主に多結晶が生成されるため、鑄造法により高純度の単結晶を効率よく大量に生産する技術が望まれている。

30

【0004】

上記課題に関して、鑄造法を利用してシリコン単結晶を生成する技術が特許文献 2 に開示されている。特許文献 2 に示す技術には、種結晶が配置された坩堝底面に配置された熱シンクから熱を引き抜きながら、熱シンク上に載置された坩堝の壁部に配置された更なる加熱器により加熱することで種結晶の成長を側部領域に引き起こしてシリコン単結晶を生成する技術が開示されている。

【先行技術文献】

【特許文献】

40

【0005】

【特許文献 1】特開 2003 - 267717 号公報

【特許文献 2】特表 2011 - 528308 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0006】

しかしながら、特許文献 2 に示す技術は、種結晶の大きさを坩堝の底面全体に相当する大きさにする必要があるのであるため、コストの増大を招き大型化するのに非常に困難なものになってしまう。また、仮に種結晶を小さくしてしまうと、種結晶が配置されていない部分については種が無いために種結晶の情報が伝達されず、多結晶のシリコンが生成されてしま

50

い、高品質なシリコン単結晶を生成することができないという課題を有する。

【0007】

また、坩堝の底面を複数のブロックに分割し、各ブロックごとに種結晶を配設して成長させる方法があるが、各ブロック間で成長が衝突して欠陥になってしまうという問題がある。

【0008】

本発明は、鑄造法を利用して高品質で大型のシリコン単結晶を容易に生成することができるシリコン単結晶生成装置を提供する。

【課題を解決するための手段】

【0009】

本発明に係るシリコン単結晶生成装置は、底面部の一部の領域に単一のシリコン単結晶の種結晶が保持されると共に、固体及び/又は液体のシリコンが保持される坩堝と、前記坩堝内のシリコン熔融液を少なくとも前記種結晶の領域を含んで前記坩堝の下方から吸熱する吸熱部と、前記吸熱部により冷却される領域の周辺領域を加熱する加熱部とを備え、前記吸熱部による熱流束のベクトルAと前記加熱部による熱流束のベクトルBとが、 $A \times B < 0$ の関係を保って制御されるものである。

10

【0010】

このように、本発明に係るシリコン単結晶生成装置においては、吸熱部による熱流束のベクトルAと加熱部による熱流束のベクトルBとが、 $A \times B < 0$ の関係、すなわち、熱の流れる方向が逆向きの関係を保って制御されることで、種結晶から上方向への成長を行うと同時に、種から横方向への結晶成長も可能となり、小さい種結晶であっても全ての成長方向に対して確実に種結晶の情報を伝達することができ、多結晶の含有を最小限に抑えた高品質なシリコン単結晶を生成することができるという効果を奏する。

20

【0011】

また、鑄造法を利用して熱制御のみの簡易的な作業工程で、単一の小さな種結晶から高品質かつ大型のシリコン単結晶を生成することができるため、安価な設備で大量生産を行うことが可能になるという効果を奏する。

【0012】

本発明に係るシリコン単結晶生成装置は、前記吸熱部が前記坩堝の底面部から前記坩堝内を冷却すると同時に、前記加熱部が前記吸熱部により冷却される領域の周辺領域を前記坩堝の底面部より下方に配設された熱源により加熱するものである。

30

【0013】

このように、本発明に係るシリコン単結晶生成装置においては、シリコン単結晶の種結晶の領域を坩堝の底面部から吸熱しながら、その吸熱により冷却される領域の周辺領域を坩堝の底面より下方に配設された熱源により加熱することで、種結晶から上方向への成長を行うと共に、横方向への結晶成長も可能となり、小さい種結晶から多結晶を含まない高品質なシリコン単結晶を生成することができるという効果を奏する。

【0014】

本発明に係るシリコン単結晶生成装置は、前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御する制御手段を備え、前記制御手段が、前記シリコン単結晶の少なくとも一部が種結晶として固体を維持するように、前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御して、前記種結晶の領域の温度を調整するものである。

40

【0015】

このように、本発明に係るシリコン単結晶生成装置においては、シリコン単結晶の少なくとも一部が種結晶として固体を維持するように、吸熱部及び加熱部の熱流速を制御して、種結晶の領域の温度を調整するため、種結晶から確実に情報伝達を行って多結晶を含まない高品質なシリコン単結晶を生成することができるという効果を奏する。

【0016】

本発明に係るシリコン単結晶生成装置は、前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御する制御手段を備え、前記制御手段が、前記シリコン単結晶の成長面及び前記坩堝の底面が

50

なす固化された前記シリコン単結晶の角度が 90° より大きく維持されるように前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御するものである。

【0017】

このように、本発明に係るシリコン単結晶生成装置においては、シリコン単結晶の成長面及び前記坩堝の底面がなす固化された前記シリコン単結晶の角度が 90° より大きく維持（すなわち、横方向に成長するシリコン結晶の固体/液体の境界面が、坩堝の底面に対して成長方向で 90 度未満に維持）されるように吸熱部及び加熱部の熱流速を制御するため、種結晶から確実に情報伝達が行われて多結晶を含まない高品質なシリコン単結晶を生成することができるという効果を奏する。

【0018】

本発明に係るシリコン単結晶生成装置は、前記坩堝内における所定箇所の温度を検出する温度検出手段と、検出された前記温度に基づいて、前記吸熱部及び/又は前記加熱部の熱流束を制御する制御手段とを備えるものである。

【0019】

このように、本発明に係るシリコン単結晶生成装置においては、坩堝内における所定箇所の温度を検出し、検出された温度に基づいて、吸熱部及び/又は加熱部の熱流束を制御するため、多結晶を含まない高品質なシリコン単結晶を生成できると共に、作業を効率よく行うことができるという効果を奏する。

【0020】

本発明に係るシリコン単結晶生成方法は、坩堝内の底面部にシリコン単結晶の種結晶を投入し、生成されるシリコン結晶の原料となる固体のシリコンを投入する原料投入ステップと、前記原料を加熱して溶融する溶融ステップと、溶融した前記原料を少なくとも前記種結晶の領域を含んで前記坩堝の下方から吸熱すると同時に、当該吸熱領域の周辺領域を加熱してシリコン結晶を生成する結晶生成ステップとを含み、前記吸熱による熱流束のベクトルAと前記加熱による熱流束のベクトルBとが、 $A \times B < 0$ の関係を保って実行されるものである。

【0021】

本発明に係るシリコン単結晶生成方法は、前記結晶生成ステップが、前記坩堝の底面部から前記坩堝内を冷却すると同時に、当該冷却される領域の周辺領域を前記坩堝の底面部より下方に配設された熱源により加熱するものである。

【0022】

本発明に係るシリコン単結晶生成方法は、前記結晶生成ステップが、前記シリコン単結晶の少なくとも一部が種結晶として固体を維持するように、前記吸熱及び前記加熱の熱流速を制御して、前記種結晶の領域の温度を調整するものである。

【0023】

本発明に係るシリコン単結晶生成方法は、前記結晶生成ステップが、前記シリコン単結晶の成長面及び前記坩堝の底面がなす前記シリコン単結晶の角度が 90° より大きく維持されるように前記吸熱及び前記加熱の熱流速を制御して実行されるものである。

【0024】

本発明に係るシリコン単結晶生成方法は、前記結晶生成ステップが、前記坩堝内の所定箇所で検出された温度に基づいて、前記吸熱及び/又は前記加熱の熱流束を制御して実行されるものである。

【図面の簡単な説明】

【0025】

【図1】第1の実施形態に係るシリコン単結晶生成装置の断面図である。

【図2】従来の一一般的なシリコン結晶成長法を示す図である。

【図3】第1の実施形態に係るシリコン単結晶生成装置で実現されるシリコンの結晶成長を示す図である。

【図4】従来における熱源からの加熱の一例及び第1の実施形態に係るシリコン単結晶生成装置における熱源からの加熱の一例を示すイメージ図である。

10

20

30

40

50

【図 5】第 1 の実施形態に係るシリコン単結晶生成方法の手順を示すフローチャートである。

【図 6】第 1 の実施形態に係るシリコン単結晶生成方法でシリコン単結晶を成長させた場合の成長過程を示す図である。

【図 7】第 1 の実施形態に係るシリコン単結晶生成方法で生成されたシリコンの単結晶と多結晶の分布を示す図である。

【図 8】第 1 の実施形態に係るシリコン単結晶生成方法において坩堝底面及び成長面の間でシリコン溶融液がなす角度と成長時間との関係を示す図である。

【発明を実施するための最良の形態】

【0026】

10

以下、本発明の実施の形態を説明する。本発明は多くの異なる形態で実施可能である。また、本実施形態の全体を通して同じ要素には同じ符号を付けている。

【0027】

(本発明の第 1 の実施形態)

本実施形態に係るシリコン単結晶生成装置及び当該シリコン単結晶生成装置を用いたシリコン単結晶生成方法について、図 1 ないし図 8 を用いて説明する。本実施形態に係るシリコン単結晶生成装置は、主に太陽光パネルとして利用されているシリコン (Si) 半導体の単結晶を鑄造法により製造するものである。

【0028】

20

本実施形態に係るシリコン単結晶生成装置で用いられる鑄造法は、固体のシリコン原料を坩堝内に投入して高温で溶融し、当該溶融した液体のシリコンを所定の方法で冷却して固化することで、目的とする形状のシリコン結晶を得るものである。通常であれば、この鑄造法により固化されたシリコンは多結晶となるが、予め坩堝の底に単結晶の種を配置し、以下に詳細に示すような冷却方法を行うことで、欠陥の少ない高品質の単結晶を生成することができる。

【0029】

30

本実施形態に係るシリコン単結晶生成装置の一例を図 1 の断面図に示す。シリコン単結晶生成装置 100 において、溶融している液体シリコン 1 とその一部が固化することで生成されたシリコン結晶 2 とを収納するための容器である坩堝 3, 4 が台座 5 に載置されており、台座 5 に接続して当該台座 5 を支持する軸受台 6 が上下移動可能に配設されている。坩堝 3, 4、台座 5 及び軸受台 6 の周囲にはヒータ 12 - 14 が配設されており、加熱及び冷却の温度制御が行われる。シリコン単結晶生成装置 100 の最外周には、熱を遮断するための断熱材 7 - 11 が配設され、外部との熱エネルギーの移動を遮断している構成である。

【0030】

40

図 2 に、従来一般的なシリコン結晶成長法を示す。図 2 (A) は、ある瞬間における坩堝 3, 4 内のシリコンの状態を示し、図 2 (B) は、図 2 (A) の状態から時間が経って成長が進んだ場合の坩堝 3, 4 内のシリコンの状態を示す。従来は、図 2 (A) に示すように、坩堝 3, 4 の中で溶融された液体のシリコンを坩堝 3, 4 の底部から冷却して結晶成長させることが一般的に行われている。そして、そのまま冷却し続けると、図 2 (B) に示すように液体シリコンと固体シリコンの界面が、シリコン結晶の成長に伴って変動する。図 2 (B) から明らかなように、従来方法でシリコン結晶の成長を行うと、シリコン単結晶の種結晶から成長できない領域 (図中の一点鎖線が示す領域) が発生し、その領域で成長したシリコン結晶は多結晶になってしまう。

【0031】

この多結晶の領域をなくすために、例えば単結晶の種結晶を坩堝 3, 4 の底面全体を覆うように配置することが考えられるが、種結晶のサイズが非常に大きくなり、コスト面も含めて大型化するのに困難を有する。また、小さい種結晶で結晶成長させた場合は、図 2 (A) に示すように結晶成長の界面と坩堝 3, 4 の底面とのなす角度 (固体のシリコン単結晶がなす角度) が 90 度以下であるため、上述したように、シリコン単結晶の種結晶が

50

ら成長できない領域が発生してしまう。このような問題を解決するために、本実施形態においては、坩堝 3, 4 の底面から冷却される領域の周辺領域を坩堝 3, 4 の底面から同時に加熱する。

【0032】

図 3 は、本実施形態に係るシリコン単結晶生成装置で実現されるシリコンの結晶成長を示す図である。図 3 (A) は、ある瞬間における坩堝 3, 4 内のシリコンの状態を示し、図 3 (B) は、図 3 (A) の状態から時間が経って成長が進んだ場合の坩堝 3, 4 内のシリコンの状態を示す。図 3 (A) に示すように、本実施形態においては、坩堝 3, 4 の底面に配置されたシリコン単結晶の種結晶の領域を冷却すると共に、その冷却される領域の周辺領域を同時に加熱する。

10

【0033】

そうすることで、図 3 (A) に示すように液体シリコンと固体シリコンの界面が、略楕円体を形成するようにシリコン単結晶の成長が進む。すなわち、結晶成長の界面と坩堝 3, 4 の底面とのなす角度 (固体のシリコン単結晶がなす角度) が 90 度より大きくなり、図 3 (B) に示すように、小さい種結晶で成長させた場合であっても、図 2 (B) に示すようなシリコン単結晶の種結晶から成長できない領域が発生することなく、横方向の成長であっても種結晶の情報が正確に伝達され高品質のシリコン単結晶を生成することができる。

【0034】

図 4 は、熱源からの加熱の一例を示す図である。図 4 (A) は、従来における坩堝の側面からの加熱の一例を示し、図 4 (B) は、本実施形態における坩堝の底面からの加熱の一例を示している。図 4 からわかるように、坩堝底部では、熱源 A への熱流束 a は下向きで、熱源 B からの熱流束 b は斜め下向きであるため、熱流束 a と b の関係が $a \times b = 0$ となる。すなわち、図 4 (A) に示すように、結晶成長の界面と坩堝 3, 4 の底面との間でシリコン単結晶がなす角度が 90 度以下となり、上述したように、シリコン多結晶が成長する領域が発生してしまう。

20

【0035】

一方、本実施形態に係るシリコン単結晶生成装置で実現されるシリコンの結晶成長の場合は、図 4 (B) に示すように、熱流束 a と熱流束 b の向きがお互いに逆方向を向いているので、 $a \times b < 0$ の関係となっている。すなわち、結晶成長の界面と坩堝 3, 4 の底面との間でシリコン単結晶がなす角度が 90 度より大きくなり、上述したように、種結晶の情報が正確に伝達され高品質のシリコン単結晶を生成することができる。

30

【0036】

次に、本実施形態に係るシリコン単結晶生成装置を用いたシリコン単結晶生成方法について説明する。図 5 は、本実施形態に係るシリコン単結晶生成方法の手順を示すフローチャートである。まず、坩堝 3, 4 にシリコン単結晶の種結晶が投入され、坩堝 3, 4 の底面部に配置される (S1)。なお、このとき、種結晶は坩堝 3, 4 の底面部の中心付近に配置されることが好ましいが、必ずしも中心付近である必要はなく、吸熱部による吸熱が可能な位置であればよい。例えば、坩堝 3, 4 の底面部が矩形である場合には、そのいずれかの角に配置してもよい。また、種結晶を複数に分割して複数の領域に配置することは好ましくなく、一の種結晶を一の領域に配置することが好ましい。種結晶が配置されると、生成するシリコン単結晶となる原料を坩堝 3, 4 内に投入する (S2)。ヒータ 12 - 14 により坩堝 3, 4 内を加熱してシリコン原料を溶融する (S3)。このとき、種結晶の少なくとも一部は固体として維持されるように加熱する。

40

【0037】

原料が溶融されると、坩堝 3, 4 の底面部から種結晶の領域を冷却すると共に、その冷却される領域の周辺領域を同時に加熱しながら原料を固化する (S4)。このとき、種結晶の領域は坩堝 3, 4 の底面部の熱源 A から吸熱され、その冷却される領域の周辺領域は坩堝 3, 4 の底面より下方の熱源 B により加熱される。そうすることで、熱源 A の熱流束 a と熱源 B の熱流束 b との関係を $a \times b < 0$ にすることができ、結晶成長の界面と坩堝 3

50

、4の底面とのなす角度（シリコン単結晶がなす角度）が90度より大きくなり、種結晶の情報が正確に伝達され高品質のシリコン単結晶を生成することができる。また、このとき、熱流束の制御を坩堝3、4全体の温度を監視して行う。坩堝3、4全体の温度を監視しながら、所定のタイミングで加熱及び吸熱をそれぞれ停止して（S5、S6）、シリコン単結晶の生成を完了する。なお、加熱及び吸熱の停止は、坩堝3、4の形状や融液の深さに応じて制御される。

【0038】

図6は、上記で説明した方法でシリコン単結晶を成長させた場合の成長過程を示す図である。図6（A）から順次シリコン結晶が成長し、最終的に図6（H）にまで成長してシリコン単結晶の生成が終了する。図6からわかるように、種結晶を中心として放射状（マシユマロ状、球体状、楕円体状）に成長が進み、最終的には図7に示すように、一部に多結晶が形成されているものの大部分を単結晶として生成することができる。

10

【0039】

図8は、上記の方法でシリコン単結晶を成長させた場合の成長時間と、結晶成長の界面及び坩堝3、4の底面の間でシリコン原料の溶融液がなす角度との関係を示す図である。グラフ中の各プロット（a）～（h）は、図6の（A）～（H）に対応している。各工程において、坩堝全体の温度に基づいて吸熱と加熱を制御することで、結晶成長の界面及び坩堝3、4の底面の間で溶融液がなす角度（図8における縦軸に相当）を90度未満としている。すなわち、結晶成長の界面及び坩堝底面の間でシリコン結晶がなす角度は常に90度以上を保っており、結晶の成長がマシユマロ状（球体状、楕円体状）に進んでいること

20

【0040】

このように、本発明に係るシリコン単結晶生成装置及び当該装置を用いたシリコン単結晶生成方法によれば、種結晶から上方向ではなく横方向への結晶成長が可能となり、小さい種結晶から多結晶を含まない高品質なシリコン単結晶を生成することができる。また、鑄造法を利用して坩堝底面からの熱制御のみの簡易的な作業工程で、高品質且つ大型のシリコン結晶を生成することができるため、安価な設備で大量生産を行うことが可能になる。

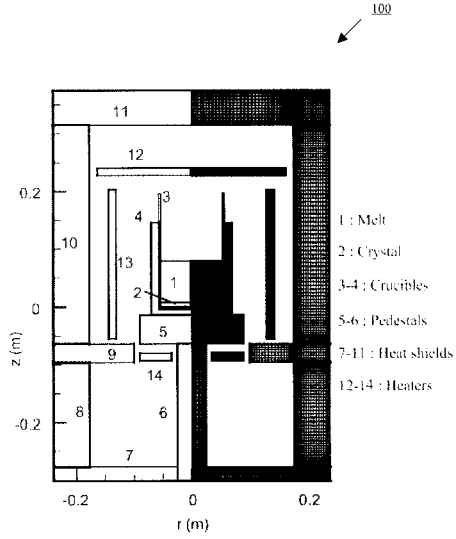
【符号の説明】

【0041】

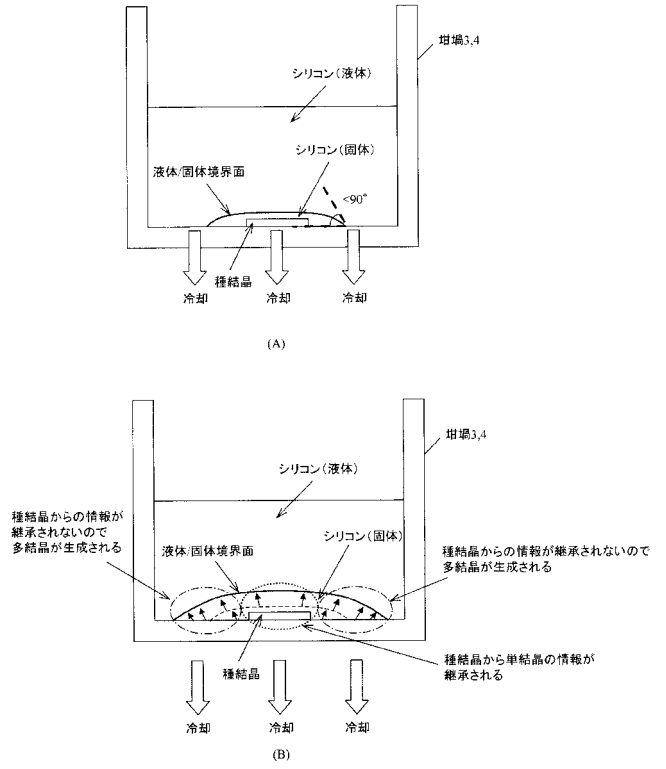
- 1 液体シリコン
- 2 シリコン結晶
- 3 - 4 坩堝
- 5 台座
- 6 軸受台
- 7 - 1 1 断熱材
- 1 2 - 1 4 ヒータ
- 1 0 0 シリコン単結晶生成装置

30

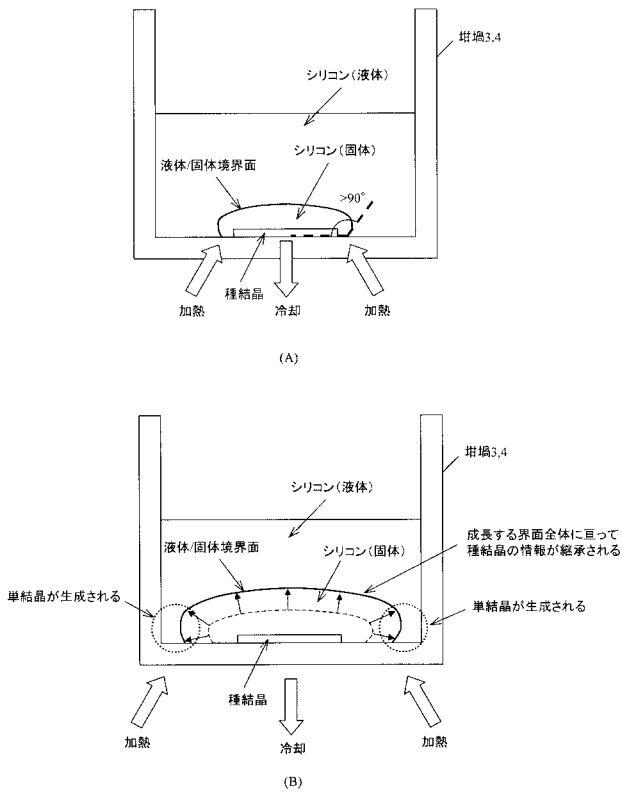
【 図 1 】



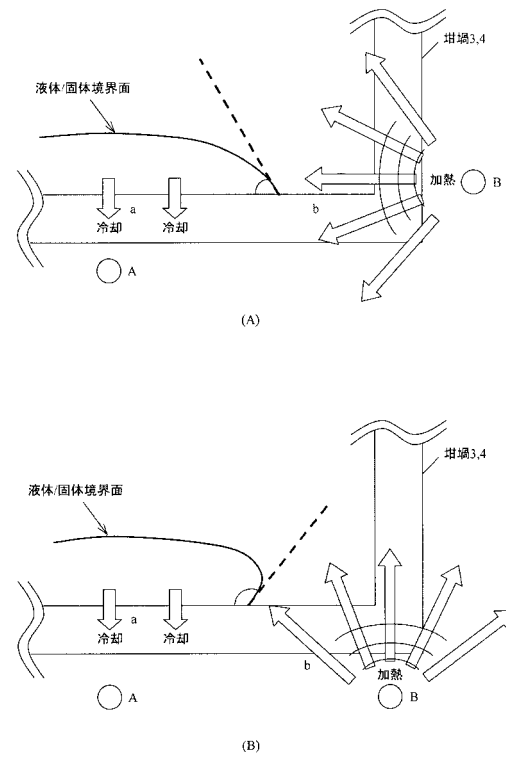
【 図 2 】



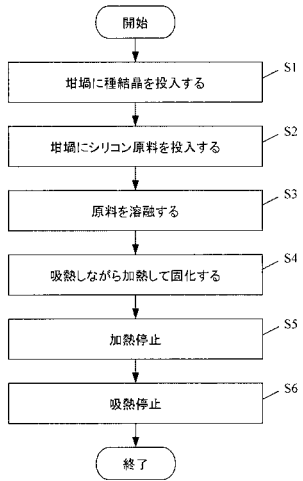
【 図 3 】



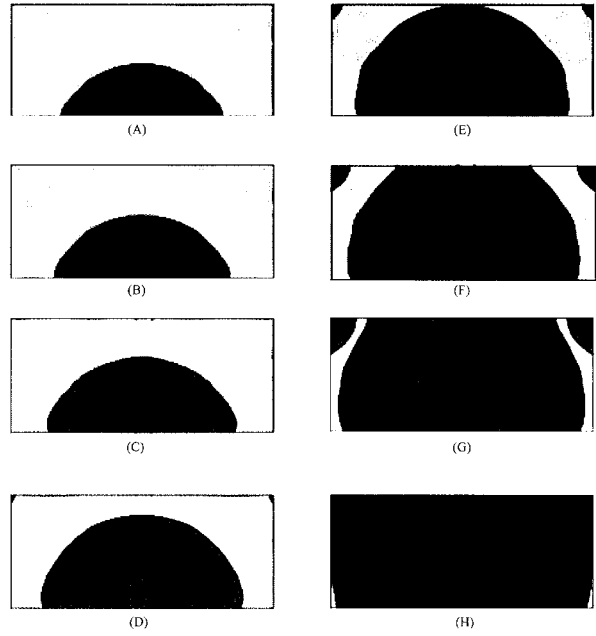
【 図 4 】



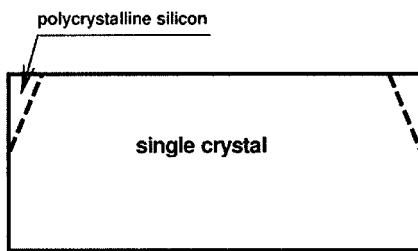
【 図 5 】



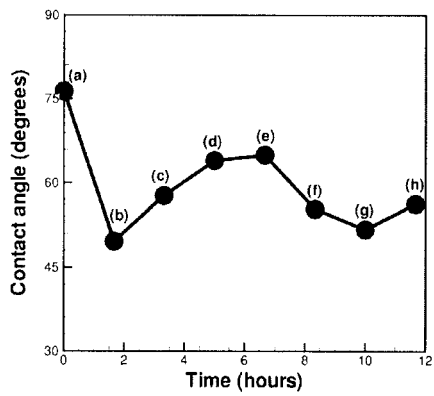
【 図 6 】



【 図 7 】



【 図 8 】



【手続補正書】

【提出日】平成27年1月9日(2015.1.9)

【手続補正1】

【補正対象書類名】特許請求の範囲

【補正対象項目名】全文

【補正方法】変更

【補正の内容】

【特許請求の範囲】

【請求項1】

底面部の一部の領域に単一のシリコン単結晶の種結晶が保持されると共に、固体及び/又は液体のシリコンが保持される坩堝と、

前記坩堝内のシリコン溶融液を少なくとも前記種結晶の領域を含んで前記坩堝の下方から吸熱する吸熱部と、

前記坩堝の底面より下方で且つ当該底面の面内の領域に配設され、前記吸熱部が前記坩堝の底面部から前記坩堝内を冷却すると同時に前記吸熱部により冷却される領域の周辺領域を加熱する加熱部とを備え、

前記吸熱部による熱流束のベクトルAが、前記坩堝の上部から下部に向かう方向であり、前記加熱部による熱流束のベクトルBが、前記坩堝の下部から上部に向かう方向であり、前記ベクトルA及び前記ベクトルBが、 $A \times B < 0$ の関係を保って制御されることを特徴とするシリコン単結晶生成装置。

【請求項2】

(削除)

【請求項3】

請求項1又は2に記載のシリコン単結晶生成装置において、

前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御する制御手段を備え、

前記制御手段が、前記シリコン単結晶の少なくとも一部が種結晶として固体を維持するように、前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御して、前記種結晶の領域の温度を調整することを特徴とするシリコン単結晶生成装置。

【請求項4】

請求項1ないし3のいずれかに記載のシリコン単結晶生成装置において、

前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御する制御手段を備え、

前記制御手段が、前記シリコン単結晶の成長面及び前記坩堝の底面がなす固化された前記シリコン単結晶の角度が 90° より大きく維持されるように前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御することを特徴とするシリコン単結晶生成装置。

【請求項5】

請求項1ないし4のいずれかに記載のシリコン単結晶生成装置において、

前記坩堝内における所定箇所の温度を検出する温度検出手段と、

前記吸熱部及び前記加熱部の熱流速を制御する制御手段とを備え、

前記温度検出手段で検出された前記温度に基づいて、前記吸熱部及び/又は前記加熱部の熱流束が制御されることを備えることを特徴とするシリコン単結晶生成装置。

【請求項6】

坩堝内の底面部にシリコン単結晶の種結晶を投入し、生成されるシリコン結晶の原料となる固体のシリコンを投入する原料投入ステップと、

前記原料を加熱して溶融する溶融ステップと、

溶融した前記原料を少なくとも前記種結晶の領域を含んで前記坩堝の下方から吸熱すると同時に、当該吸熱領域の周辺領域を前記坩堝の底面より下方で且つ当該底面の面内の領域に配設された加熱手段が加熱してシリコン結晶を生成する結晶生成ステップとを含み、

前記結晶生成ステップが、前記吸熱による前記坩堝の上部から下部に向かう方向の熱流束のベクトルAと前記加熱手段の加熱による前記坩堝の下部から上部に向かう方向の熱流束のベクトルBとが、 $A \times B < 0$ の関係を保って実行されることを特徴とするシリコン単

結晶生成方法。

【請求項 7】

(削除)

【請求項 8】

請求項 6 又は 7 に記載のシリコン単結晶生成方法において、

前記結晶生成ステップが、前記シリコン単結晶の少なくとも一部が種結晶として固体を維持するように、前記吸熱及び前記加熱の熱流速を制御して、前記種結晶の領域の温度を調整することを特徴とするシリコン単結晶生成方法。

【請求項 9】

請求項 6 ないし 8 のいずれかに記載のシリコン単結晶生成方法において、

前記結晶生成ステップが、前記シリコン単結晶の成長面及び前記坩堝の底面がなす固化された前記シリコン単結晶の角度が 90° より大きく維持されるように前記吸熱及び前記加熱の熱流速を制御して実行されることを特徴とするシリコン単結晶生成方法。

【請求項 10】

請求項 6 ないし 9 のいずれかに記載のシリコン単結晶生成方法において、

前記結晶生成ステップが、前記坩堝内の所定箇所で検出された温度に基づいて、前記吸熱及び / 又は前記加熱の熱流束を制御して実行されることを特徴とするシリコン単結晶生成方法。

【 国際調査報告 】

INTERNATIONAL SEARCH REPORT		International application No. PCT/JP2014/057833
A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER C30B29/06(2006.01)i, B22D27/04(2006.01)i, C01B33/02(2006.01)i, C30B11/00(2006.01)i, H01L31/18(2006.01)i According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
B. FIELDS SEARCHED Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C30B29/06, B22D27/04, C01B33/02, C30B11/00, H01L31/18 Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Jitsuyo Shinan Koho 1922-1996 Jitsuyo Shinan Toroku Koho 1996-2014 Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2014 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2014 Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 50-097587 A (Crystal Systems, Inc.), 02 August 1975 (02.08.1975), page 2, upper right column, line 13 to page 7, lower right column, line 14; fig. 1 to 3 & US 3898051 A & GB 1463180 A & DE 2461553 A1 & FR 2255950 A & CH 595881 A & CA 1038268 A	1-10
Y	JP 2010-534179 A (BP Corporation North America Inc.), 04 November 2010 (04.11.2010), paragraphs [0051] to [0053]; fig. 8 & US 2010/0193031 A1 & EP 2179079 A1 & WO 2009/014963 A1 & AU 2008279411 A & KR 10-2010-0049077 A & CN 101755075 A & TW 200909619 A & AU 2012203401 A	1-10
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input type="checkbox"/> See patent family annex.		
* Special categories of cited documents: "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance "E" earlier application or patent but published on or after the international filing date "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified) "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art "&" document member of the same patent family		
Date of the actual completion of the international search 10 June, 2014 (10.06.14)		Date of mailing of the international search report 17 June, 2014 (17.06.14)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office		Authorized officer
Facsimile No.		Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2014/057833

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 11-310496 A (Mitsubishi Materials Corp.), 09 November 1999 (09.11.1999), paragraphs [0014] to [0021]; fig. 1 to 4 & US 6299682 B1 & US 6378835 B1 & EP 939146 A1 & DE 69932760 D	1-10
A	JP 2000-327487 A (Mitsubishi Materials Corp.), 28 November 2000 (28.11.2000), paragraphs [0014] to [0021]; fig. 1 to 3 (Family: none)	1-10

国際調査報告		国際出願番号 PCT/J P 2 0 1 4 / 0 5 7 8 3 3	
A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C30B29/06(2006.01)i, B22D27/04(2006.01)i, C01B33/02(2006.01)i, C30B11/00(2006.01)i, H01L31/18(2006.01)i			
B. 調査を行った分野 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC)) Int.Cl. C30B29/06, B22D27/04, C01B33/02, C30B11/00, H01L31/18			
最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの 日本国実用新案公報 1922-1996年 日本国公開実用新案公報 1971-2014年 日本国実用新案登録公報 1996-2014年 日本国登録実用新案公報 1994-2014年			
国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)			
C. 関連すると認められる文献			
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号	
Y	JP 50-097587 A (クリスタル・システムズ・インコーポレーテッド) 1975.08.02, 第2頁右上欄第13行-第7頁右下欄第14行, 第1 -3図 & US 3898051 A & GB 1463180 A & DE 2461553 A1 & FR 2255950 A & CH 595881 A & CA 1038268 A	1-10	
C欄の続きにも文献が列挙されている。		パテントファミリーに関する別紙を参照。	
* 引用文献のカテゴリー 「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの 「E」国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの 「L」優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す) 「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献 「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願		の日の後に公表された文献 「T」国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの 「X」特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの 「Y」特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの 「&」同一パテントファミリー文献	
国際調査を完了した日 10.06.2014		国際調査報告の発送日 17.06.2014	
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁 (ISA/J P) 郵便番号100-8915 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		特許庁審査官 (権限のある職員) 萩原 周治	4G 9835
		電話番号 03-3581-1101 内線 3416	

国際調査報告		国際出願番号 PCT/JP2014/057833
C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
Y	JP 2010-534179 A (ビーピー・コーポレーション・ノース・アメリカ・インコーポレーテッド) 2010.11.04, 段落【0051】 - 【0053】, 第8図 & US 2010/0193031 A1 & EP 2179079 A1 & WO 2009/014963 A1 & AU 2008279411 A & KR 10-2010-0049077 A & CN 101755075 A & TW 200909619 A & AU 2012203401 A	1-10
A	JP 11-310496 A (三菱マテリアル株式会社) 1999.11.09, 段落【0014】 - 【0021】, 第1-4図 & US 6299682 B1 & US 6378835 B1 & EP 939146 A1 & DE 69932760 D	1-10
A	JP 2000-327487 A (三菱マテリアル株式会社) 2000.11.28, 段落【0014】 - 【0021】, 第1-3図 (ファミリーなし)	1-10

フロントページの続き

(81)指定国 AP(BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), EA(AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), EP(AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OA(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG), AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US

(出願人による申告)平成22年度～24年度、独立行政法人新エネルギー・産業技術総合開発機構、「太陽エネルギー技術研究開発/太陽光発電システム次世代高性能技術の開発/極限シリコン結晶太陽電池の研究開発(革新的太陽電池用単結晶成長法の研究開発)」委託事業、産業技術力強化法第19条の適用を受ける特許出願

(72)発明者 高 冰

福岡県福岡市東区箱崎六丁目10番1号 国立大学法人九州大学内

Fターム(参考) 4G072 AA01 BB01 BB11 BB12 DD01 GG03 HH01 MM38 NN02 NN03
RR21 UU02
4G077 AA02 BA04 CD08 EG15 EH07 HA01 HA12 MB14 MB22 MB26
MB33

(注)この公表は、国際事務局(WIPO)により国際公開された公報を基に作成したものである。なおこの公表に係る日本語特許出願(日本語実用新案登録出願)の国際公開の効果は、特許法第184条の10第1項(実用新案法第48条の13第2項)により生ずるものであり、本掲載とは関係ありません。