

(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関  
国際事務局

(43) 国際公開日  
2012年9月27日(27.09.2012)



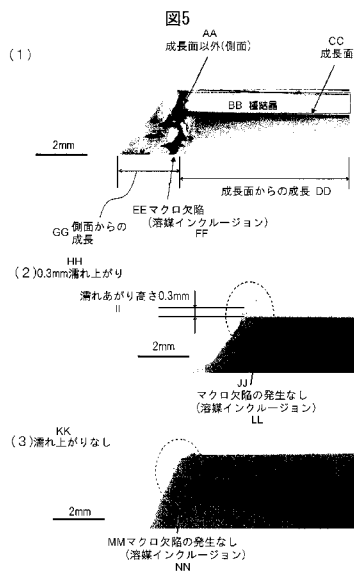
(10) 国際公開番号  
WO 2012/127703 A1

- (51) 国際特許分類:  
C30B 29/36 (2006.01) C30B 19/12 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2011/067715
- (22) 国際出願日: 2011年7月27日(27.07.2011)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:  
特願 2011-063772 2011年3月23日(23.03.2011) JP  
特願 2011-109837 2011年5月16日(16.05.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): トヨタ自動車株式会社 (TOYOTA JIDOSHA KABUSHIKI KAISHA) [JP/JP]; 〒4718571 愛知県豊田市トヨタ町1番地 Aichi (JP). 住友金属工業株式会社 (SUMITOMO METAL INDUSTRIES, LTD.) [JP/JP]; 〒5410041 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号 Osaka (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 大黒 寛典 (DAIKOKU, Hironori) [JP/JP]; 〒4718571 愛知県豊田市トヨタ町1番地トヨタ自動車株式会社内 Aichi (JP). 亀井 一人 (KAMEI, Kazuhito) [JP/JP]; 〒5410041 大阪府大阪市中央区北浜4丁目5番33号住友金属工業株式会社内 Osaka (JP).
- (74) 代理人: 青木 篤, 外 (AOKI, Atsushi et al.); 〒1058423 東京都港区虎ノ門三丁目5番1号 虎ノ門37森ビル青和特許法律事務所 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY,

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING SiC SINGLE CRYSTALS AND PRODUCTION DEVICE

(54) 発明の名称: SiC 単結晶の製造方法および製造装置



(57) Abstract: Provided is a method for producing SiC single crystals while maintaining a temperature gradient such that the temperature decreases from within an Si solution inside a graphite crucible toward the solution surface, with the SiC seed crystals that have contacted the solution surface serving as the starting point for crystal seed growth, wherein when the crystal growth surface of the SiC seed crystals, which serves as the starting point for SiC single crystal growth, contacts the solution surface, the height by which the solution rises to the side of the SiC seed crystals is within the range where the SiC single crystals that have grown from the crystal growth surface and the SiC single crystals that have grown from the side grow as one SiC single crystal unit. Also provided is a device for producing an SiC single crystal comprising a graphite crucible, a heating means for heating and melting the starting materials inside the crucible to form the starting material solution and maintaining the temperature gradient necessary for SiC single crystal growth, a supporting rod for supporting the SiC seed crystals at the bottom end, and a support mechanism for maintaining the support such that the height by which the solution rises to the side of the SiC seed crystals is within the range where the SiC single crystals that have grown from the crystal growth surface and the SiC single crystals that have grown from the side grow as one SiC single crystal unit.

(57) 要約:

[続葉有]

- AA... SURFACE OTHER THAN GROWTH SURFACE (SIDE)
- BB... SEED CRYSTAL
- CC... GROWTH SURFACE
- DD... GROWTH FROM GROWTH SURFACE
- EE... MACRO DEFECT
- FF... (SOLVENT INCLUSIONS)
- GG... GROWTH FROM SIDE
- HH... SOLUTION RISES 0.3 mm
- II... HEIGHT BY WHICH SOLUTION RISES 0.3 mm
- JJ... NO MACRO DEFECT
- KK... SOLUTION DOES NOT RISE
- LL... (SOLVENT INCLUSIONS)
- MM... NO MACRO DEFECT
- NN... (SOLVENT INCLUSIONS)

WO 2012/127703 A1



TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC,  
VN, ZA, ZM, ZW.

- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR,

GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

- 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

黒鉛坩堝内の Si 溶液内に内部から溶液面に向けて温度低下する温度勾配を維持しつつ、該溶液面に接触させた SiC 種結晶を起点として SiC 単結晶を成長させる方法において、SiC 単結晶の成長起点となる、SiC 種結晶の結晶成長面を上記溶液面に接触させる際に、SiC 種結晶の側面への溶液の濡れ上がり高さを、結晶成長面から成長した SiC 単結晶と側面から成長した SiC 単結晶とが一体の SiC 単結晶として成長する範囲内とする SiC 単結晶の製造方法。黒鉛坩堝と、上記坩堝内の原料を加熱し融解して上記原料溶液を形成し且つ SiC 単結晶の成長に必要な温度勾配を維持するための加熱手段と、下端に種結晶を保持する支持棒と、SiC 種結晶の側面への溶液の濡れ上がり高さが、結晶成長面から成長した SiC 単結晶と側面から成長した SiC 単結晶とが一体の SiC 単結晶として成長する範囲内となるように、上記保持を維持する保持機構とを備えた SiC 単結晶の製造装置。

## 明 細 書

発明の名称 S i C 単結晶の製造方法および製造装置

## 技術分野

本発明は、溶液法による S i C 単結晶の製造方法および製造装置に関する。

溶液法による S i C 単結晶の製造方法は、黒鉛坩堝内の S i 溶液内に内部から溶液面へ向けて下部から上部へ温度低下する温度勾配を維持する。下方の高温部で黒鉛坩堝から S i 溶液内に溶解した C は主として溶液の対流に乗って上昇し溶液面近傍の低温部に達して過飽和になる。支持棒（黒鉛製）の先端に S i C 種結晶を保持し、種結晶の下面を結晶成長面として溶液に接触させ、種結晶の結晶成長面上で過飽和の溶液からエピタキシャル成長により S i C 単結晶が成長する。

しかし、種結晶の下面（結晶成長面）以外の面（種結晶の側面等）から、あるいは黒鉛棒から、多数の結晶がばらばらに成長して多結晶化が起き易く、発生した多結晶が単結晶の領域にまで侵入し、長尺成長や径拡大工程に支障が出るという問題があった。

すなわち図 1 に示すように、支持棒の下端に保持された種結晶の側面から外方へ張り出すように S i C 多結晶が生成してしまう。図 1（1）は、（A）が正面、（B）が下面であり、破線で示した種結晶全体を覆って S i C 多結晶が傘のように張り出していることを示す。図 1（2）は同様の例であり、（A）が正面、（B）が縦断面であり、特に（B）に示すように、破線で示した種結晶の結晶成長面（下面）に成長した単結晶（薄いグレー）の領域まで、種結晶の側面から成長した S i C 多結晶（黒色部分）が覆いかぶさってい

ることが分かる。

このように、一旦、溶液が種結晶の結晶成長面以外の部位（種結晶の側面や支持棒）に濡れ上がってしまうと、濡れ上がった部分から多数の結晶核が発生してしまい、多結晶化（3次元成長）が起きてしまう。

さらに、Si単結晶の溶液成長とは異なり、SiC単結晶の溶液成長の場合は、c面（ $[0001]$ 面または $[000-1]$ 面）以外の結晶面からの成長では、高品質なSiC単結晶が得られないため、結晶成長面であるc面以外からの多結晶生成の問題は、SiC単結晶の溶液成長に特有の問題ともいえる。

特開平4-321590号公報には、種結晶の少なくとも溶液に接触する部分を略円筒形とすることにより、種結晶と溶液との間に形成されるメニスカスの傾斜角が種結晶の外周においてばらつきが殆どなくなり、種結晶直下での結晶欠陥の発生を抑制する方法が開示されている。

しかし、特許文献1の方法では、種結晶の結晶成長面以外の面から、あるいは黒鉛棒から、多数の結晶がばらばらに成長して多結晶化が起きる現象については、何ら配慮がなく、多結晶化を防止することはできない。

## 発明の概要

本発明は、溶液法によるSiC単結晶の製造方法において、種結晶の結晶成長面以外の面から、あるいは種結晶を支持する黒鉛棒から、多数の結晶がばらばらに成長する多結晶化を防止したSiC単結晶の製造方法および製造装置を提供することを目的とする。

上記の目的は、本発明によれば、坩堝内のSi-C溶液を用い、該溶液面に接触させたSiC種結晶を起点としてSiC単結晶を成

長させる方法において、

S i C 単結晶の成長起点となる S i C 種結晶の結晶成長面を上記溶液面に接触させる際に、S i C 種結晶の側面への溶液の濡れ上がり高さを、結晶成長面から成長した S i C 単結晶と側面から成長した S i C 単結晶とが一体の S i C 単結晶として成長する範囲内とすることを特徴とする S i C 単結晶の製造方法によって達成できる。

また、上記の目的は、本発明の S i C 単結晶の製造方法を行なうための装置であって、

原料溶液を収容するための黒鉛坩堝と、

上記坩堝内の原料を加熱し融解して上記原料溶液を形成し且つ S i C 単結晶の成長に必要な温度勾配を維持するための加熱手段と、

下端に種結晶を保持する支持棒と、

S i C 種結晶の側面への溶液の濡れ上がり高さが、結晶成長面から成長した S i C 単結晶と側面から成長した S i C 単結晶とが一体の S i C 単結晶として成長する範囲内になるように、上記保持を維持する保持機構と

を備えたことを特徴とする S i C 単結晶の製造装置によっても達成される。

本発明によれば、S i C 単結晶の成長起点となる S i C 種結晶の結晶成長面を上記溶液面に接触させる際に、S i C 種結晶の側面への溶液の濡れ上がり高さを、結晶成長面から成長した S i C 単結晶と側面から成長した S i C 単結晶とが一体の S i C 単結晶として成長する範囲内とするので、種結晶の他の部位からや、種結晶を支持する黒鉛棒からの結晶成長による多結晶化を防止することができる。

図面の簡単な説明

図 1 は、従来技術における多結晶発生の状況を示す写真である。

図 2 は、本発明の方法により SiC 単結晶を製造するための装置の基本構成を示す模式図である。

図 3 は、従来技術 (1) と本発明の最良の形態 (2) における種結晶と溶液面との関係を比較して示す模式図である。

図 4 は、本発明における種結晶と溶液面との関係を拡大して詳細に示す模式図である。

図 5 は、種結晶側面への濡れ上がり高さが (1) 1 mm、(2) 0.3 mm、(3) 0 mm の場合について、成長した SiC 単結晶のマクロ欠陥の有無を示す写真である。

図 6 は、溶液の濡れ上がりができ易い支持棒の下端形状の典型例を示す模式図である。

図 7 は、引き上げ高さを変えて結晶成長を行なった場合の成長の状況を示す写真である。

図 8 は、SiC 成長中の各部位間の関係を示す模式図である。

図 9 は、引き上げ高さ と 拡大角度 と の 関係を示すグラフである。

図 10 は、本発明の方法により成長を行なった SiC 単結晶を示す写真である。

図 11 は、本発明の方法により成長を行なった SiC 単結晶を示す写真である。

図 12 は、引き上げ高さ と 拡大角度 と の 関係を示すグラフである。

図 13 は、異なる組成の溶液を用いた場合について、引き上げ高さ と 拡大角度 と の 関係を示すグラフである。

図 14 は、本発明の方法により成長を行なった SiC 単結晶を

示す写真である。

図 15 は、濡れ上がり高さを変えて成長を行なった S i C 単結晶を示す写真である。

発明を実施するための形態

図 2 に、本発明の方法を行なうのに適した、溶液法による S i C 単結晶の成長装置の基本構造を示す。

黒鉛坩堝 10 の周囲を取り巻く高周波加熱コイル 12 により、坩堝 10 内の原料を加熱溶解して溶液 14 を形成し、その上方に黒鉛製支持棒 16 の下端に支持した S i C 種結晶 18 を溶液 14 の溶液面 S に接触させ、A r ガス等の不活性雰囲気 20 中で S i C 種結晶 18 の下面に S i C 単結晶を成長させる。

黒鉛坩堝 10 は全体が断熱材 22 で覆われている。溶液面 S の温度を放射温度計 24 により非接触方式で測定すると共に、種結晶 18 の裏面温度を W - R e 等の熱電対 26 により接触方式で測定する。

。 C C D カメラ 24 は、溶液面 S を直視できる溶液面上方の観察窓に設置し、S i C 成長中の溶液面 S を直接観察することができる。

放射温度計を C C D カメラ 24 と同様に溶液面 S を直視できる溶液面上方の観察窓に設置し、種結晶 18 を溶液 14 に接触させる前後の溶液面温度を測定することができる。

熱電対 26 は、その検知端を、種結晶 18 が接着される黒鉛製支持棒 16 の下端内側（種結晶 18 の接着面から 2 m m 程度の位置）に固定し、種結晶 18 を溶液 14 に接触させた直後からの種結晶温度を測定することができる。

一般に、黒鉛坩堝 10 内に S i 溶液の原料として S i を投入し、高周波加熱コイル 12 により加熱して S i 溶液を形成する。黒鉛坩

坩 10 の内壁から C がこの Si 溶液に溶解して Si-C 溶液 14 が形成される。このように SiC の C 源は基本的には黒鉛坩 10 であるが、補助的に黒鉛ブロックを投入することもできる。また坩 10 は SiC 製であってもよく、その場合は、C 源として黒鉛ブロックの投入が必須である。

場合によっては、成長速度を高めるために、最初に黒鉛坩 10 内に Si の他に例えば Cr、Ni 等を投入し、Si-Cr 溶液、Si-Cr-Ni 溶液等を形成することもできる。

以上の構成は従来から用いられてきたが、本発明においては、更に、SiC 種結晶の側面への溶液の濡れ上がり高さが、結晶成長面から成長した SiC 単結晶と側面から成長した SiC 単結晶とが一体の SiC 単結晶として成長する範囲内になるように、維持して成長を行なうための制御装置 30 を備えている点が特徴である。最良の形態においては、種結晶の成長面のみを溶液に接触させて濡れ上がり高さを 0 にする。制御装置 30 は、図示しない溶液面高さ検知器および種結晶支持棒駆動装置と電気的および／または機械的に連携して、溶液面からの種結晶の結晶成長面の高さを時々刻々適正値に制御する。

本発明の方法は、図 2 の基本構成を備えた装置を用いて、黒鉛坩 10 内の Si 溶液内に内部から溶液面に向けて温度低下する温度勾配を維持しつつ、該溶液面に接触させた SiC 種結晶を起点として SiC 単結晶を成長させる方法において、

SiC 単結晶の成長起点となる、SiC 種結晶の結晶成長面のみを、上記溶液面に接触させることを特徴とする。

本発明の特徴を従来技術と対比して説明する。

図 3 (1) に、従来技術の溶液法における種結晶と溶液面との関係を模式的に示す。

(A) まず、支持棒 16 の下端に種結晶 18 を保持し、結晶成長面 G を溶液 14 の溶液面 S に接触させる。その際、図に示したように結晶成長面 G と溶液面 S とが一致するか、結晶成長面 G が溶液面 S より若干下方になって溶液 14 中に僅かに浸漬した状態になる。

(B) この状態で保持すると、溶液 14 は種結晶 18 の側面を濡れ上がり、図示したようにメニスカス 40 が形成される。

(C) 種結晶 18 は、下面が優先成長方位  $[0001]$  または  $[000-1]$  の結晶成長面であり、側面は SiC 単結晶の優先成長方位ではないため、側面に接触してメニスカス 40 を形成する部分からはばらばらな方位の多数の単結晶から成る多結晶 42 となる。すなわち、図 1 に示したような多結晶化が起こる。

そこで本発明においては、図 3 (1) の (B) に示すような種結晶側面への濡れ上がり高さを制御して、多結晶化を防止する。最良の形態においては、濡れ上がり高さを 0 とする。

すなわち最良の形態においては図 3 (2) に示すように、(A) に示す接触の際には、必ず結晶成長面 G と溶液面 S とを一致させ、結晶成長面 G が溶液面 S より下方になって溶液 14 中への浸漬が起きないように厳格に防止する。かつ、望ましくは、(A) の接触が起きたら直ちに (例えば 2 分以内に) 若干引き上げて (引き上げ高さ  $h$  : 図 4)、(B) に示すように結晶成長面 G と溶液との間でメニスカス 50 を形成させ、この状態を維持して SiC 単結晶の成長を行う。更に望ましくは、メニスカス 50 と種結晶 18 の側面との成す接触角  $\alpha$  (図 4) が  $200$  度以下である。これにより、多結晶化を有利に防止できる。

一般的な形態においては、SiC 種結晶の側面への溶液の濡れ上がり高さが、種結晶の結晶成長面から成長した SiC 単結晶と種結晶の側面から成長した SiC 単結晶とが一体の SiC 単結晶として

成長する範囲内になるように、維持して成長を行なう。多くの場合、結晶成長面から成長した結晶と側面から成長した結晶は間にマクロ欠陥を伴い一体化しない。これが従来からの認識であり、上記した最良の形態で説明したように、結晶成長面のみを溶液面に接触させ、側面への溶液の濡れ上がりは厳密に回避してきた。

これに対し、本発明による新規な知見として、濡れ上がり高さが必ずしも0でなくとも、マクロ欠陥を伴わずに側面から成長した結晶（側面結晶）と結晶成長面から成長した結晶（主結晶）と一体化する場合があることが観察された。図5に一例を示す。

図5（1）は、濡れ上がり高さが種結晶の高さである1mmに達した場合であり、側面結晶と主結晶との間にマクロ欠陥が発生し、溶液の浸潤（インクルージョン）が起きてしまい、側面結晶と主結晶は別々の結晶として成長している。これは多結晶化を引き起こすだけでなく、SiC単結晶の拡大成長を阻害する。拡大成長は、実用的な直胴部を持つ形状のSiC単結晶の成長に必須である。

図5（2）は、種結晶の側面に高さ0.3mmまで濡れ上がりが起きた場合であるが、側面結晶と主結晶とはマクロ欠陥を伴わず一体の単結晶として成長している。

図5（3）は、最良の形態である濡れ上がり高さ0mmの場合、すなわち結晶成長面のみが溶液面に接触した場合であり、マクロ欠陥は発生していない。

このように種結晶の側面への溶液の濡れ上がり高さには、許容される範囲があることが分かった。したがって、予備実験を行ない、マクロ欠陥の発生の有無と濡れ上がり高さとの関係を求めておき、この関係に従って引き上げ高さを調整する等により、濡れ上がり高さの許容範囲内で成長を行なうことができる。このように成長のパラメータに許容幅があることは、工業的なSiC単結晶の成長の観

点から非常に有意義である。

本発明において、望ましくは、種結晶 18 の結晶成長面 G と側面とのなす角度  $\beta$  (図 4) が 90 度以下である。これにより、多結晶化を有利に防止できる。

望ましくは、種結晶 18 を引き上げてメニスカス 50 を形成した後に、溶液面 S に対する種結晶 18 の回転を開始する。回転により、溶液の温度および組成がより均一になる。

溶液面 S が振動している場合に、この振動を利用して溶液面 S と種結晶 18 の結晶成長面 G との接触を行うこともできる。この場合も、接触したら直ちに種結晶 18 を引き上げてメニスカス 50 を形成させる。

更に、種結晶 18 を保持する支持棒 16 の下端の形状は、溶液 14 による濡れが起きやすい形状は避けることが望ましい。

悪い典型例として、図 6 (A) に示すように、支持棒 16 の先端面の種結晶装着部分が窪んでいると、先端面の他の部分 (凸部分) が溶液面 S に近づき、図 6 (B) に示すように種結晶 18 の結晶成長面 G を溶液面 S に接触させたときに、この凸部分も溶液面 S に接触してしまい、結局、図示の例では種結晶の溶液 14 が支持棒 16 の先端部と種結晶 18 の側面にも接触してしまう。

支持棒 16 の先端面は平坦であることが望ましく、もっとも望ましくは種結晶 18 の外形と先端面の外形とが一致することである。これにより、結晶成長に直接影響を及ぼす、種結晶から支持棒への熱伝達が均一化する。

## 実施例

### 〔実施例 1〕

図 2 に示した基本構成を有する単結晶成長装置を用いた。

坩堝 10 内に固体の Si、Cr、Ni を投入し、加熱コイル 12 により融解して、Si-20Cr-5Ni 溶液を形成した。ここで、Cr、Ni は C の溶解度を高めるための添加元素であり、成長する SiC 単結晶中には混入しない。

SiC 種結晶 18 は [0001] 面を結晶成長面とし、結晶成長面と側面との角度  $\beta$  は、最も望ましい  $90^\circ$  とした。

投入した固体が全て融解して上記の溶液が形成された後に、溶液温度  $1900^\circ\text{C}$  に保持した状態で、種結晶の結晶成長面のみを溶液面に接触させた。

接触後、2 時間の結晶成長を行なった。その際、溶液面 S からの種結晶 18 の結晶成長面 G の高さ  $h$  を (a) 0 mm、(b) 1.5 mm、(c) 2.5 mm に変えて結晶成長を行なった。得られた結晶の成長状況を図 7 に示す。

(a) 引き上げ高さ  $h = 0$  mm の場合、結晶成長面 G に加えて支持棒 16 まで溶液 14 が濡れ上がった結果、支持棒 16 から多結晶 42 が発生して、種結晶 18 を全て覆ってしまった。

(b) 引き上げ高さ  $h = 1.5$  mm の場合、支持棒 16 からは多結晶が発生していないが、種結晶 18 の結晶成長面 G 以外の部位から多結晶が発生している。

(c) 引き上げ高さ  $h = 2.5$  mm の場合、種結晶 18 の結晶成長面 G のみから結晶成長が起きており、支持棒 16 や種結晶 18 の側面からの多結晶化が防止できた。

引き上げ高さ  $h$  に応じて、種結晶 18 の側面とメニスカス 50 との成す接触角  $\alpha$  が変化する。上記の例に加えて、引き上げ高さ  $h$  を  $0 \sim 3.5$  mm の範囲で変化させたときの接触角  $\alpha$  と多結晶化の有無との関係を表 1 に示す。

表 1 ( $\beta = 90^\circ$ )

	引き上げ高さ h (mm)						
	0.5	1.0	1.5	2.0	2.5	3.0	3.5
接触角 $\alpha$ ( $^\circ$ )	—	—	—	197 $^\circ$	194 $^\circ$	175.6 $^\circ$	130.4 $^\circ$
側面からの多結晶	発生 (NG)	発生 (NG)	発生 (NG)	なし	なし	なし	なし
拡大角度 ( $^\circ$ )	—	—	—	18.7	15.1	-4.4	-21.5

表 1 に示されるように、引き上げ高さ h が 2.0 mm 以上で接触角  $\alpha$  が 200 度以下となっており、多結晶が発生しない。多結晶化に関するパラメータのうち、引き上げ高さ h に比べて接触角  $\alpha$  の方がより本質的な関係があると考えられる。

表 1 には更に、成長する結晶の径の拡大を示す拡大角度  $\gamma$  を併せて示した。図 8 に示すように、拡大角度  $\gamma$  は、種結晶 18 の引き上げ軸（鉛直方向）と結晶成長中のメニスカス 50 との角度である。拡大角度  $\gamma$  が正の値であれば結晶は成長に伴って径拡大し、逆に負であれば結晶は成長に伴って径縮小する。表 1 に示した拡大角度  $\gamma$  と引き上げ高さ h との関係を図 9 にプロットする。

表 1 および図 9 に示すように、引き上げ高さ h の増加に伴い拡大角度  $\gamma$  は減少する。引き上げ高さ h が 3.0 mm 弱のときに拡大角度  $\gamma = 0^\circ$  となり、結晶径を一定に維持した成長が達成される。

このように、引き上げ高さ h の設定により結晶成長時の径拡大、径縮小、径一定維持を選択的に制御できる。

#### 〔実施例 2〕

実施例 1 と同様にして SiC 単結晶の成長を行なった。ただし、種結晶 18 の結晶成長面 G と側面との角度  $\beta$  は 60 度とした。また引き上げ高さは 1.0 mm とした。接触角  $\alpha = 180$  度であり、200 度以下であった。

図 10 に、得られた SiC 単結晶を示す。結晶成長面 G 以外の部

位から結晶成長しておらず、多結晶化が防止されている。

〔実施例 3〕

実施例 2 と同様にして SiC 単結晶の成長を行なった。ただし、種結晶 18 の結晶成長面 G と側面との角度  $\beta$  を種々に変えた。得られた結果を表 2 に示す。

表 2

	種結晶の成長面と側面との角度 $\beta$				
	30°	60°	90°	120°	150°
側面からの多結晶	なし	なし	なし	発生 (NG)	発生 (NG)

表 2 に示されるように、種結晶の結晶成長面 G と側面との角度  $\beta$  が 90 度以下の場合に、多結晶化が防止されている。

〔実施例 4〕

実施例 1 と同様にして SiC 単結晶の成長を行なった。ただし、種結晶 18 の結晶成長面 G と側面との角度  $\beta$  は 30 度とした。種結晶の結晶成長面 G と溶液面 S と接触させた後、直ちにメニスカスを形成し、引き上げ高さ h を 0.5 ~ 1.5 mm の範囲で変えて、2 時間の結晶成長を行なった。その他の条件は、実施例 1 と同様にした。

表 3 ( $\beta = 30^\circ$ )

	引き上げ高さ h (mm)						
	0.5	1	1.5	2	2.5	3	3.5
接触角 $\alpha$ (°)	181	152.5	138.7	—	—	—	—
側面からの多結晶	なし	なし	なし	—	—	—	—
拡大角度 (°)	61	32.5	23.2	—	—	—	—

これにより、図 8 および図 11 に示すように種結晶 18 に対して

径拡大したSiC単結晶が得られた。結晶成長面G以外から結晶成長しておらず、側面からの多結晶化が抑制できていることが確認できる。この場合の接触角は $\alpha = 180^\circ$ になっており、 $200^\circ$ 以下の条件を満たしている。

得られた結果を表3および図12にまとめて示す。ただし図12中、黒菱形プロットは前記の実施例1 ( $\beta = 90^\circ$ ) の結果である。引き上げ高さの調整によって拡大角度を制御できることが分かる。

#### 〔実施例5〕

実施例1と同様にしてSiC単結晶の成長を行なった。ただし、Si-23%Ti溶液を用い、種結晶18の結晶成長面Gと側面との角度 $\beta$ は30度とした。種結晶の結晶成長面Gと溶液面Sと接触させた後、直ちにメニスカスを形成し、引き上げ高さhを2~5mmの範囲で変えて、2時間の結晶成長を行なった。その他の条件は、実施例1と同様にした。

これにより、種結晶に対して径拡大したSiC単結晶が得られた。結晶成長面G以外から結晶成長しておらず、側面からの多結晶化が抑制できていることが確認できる。この場合の接触角は $\alpha = 180^\circ$ になっており、 $200^\circ$ 以下の条件を満たしている。

得られた結果を表4および図13にまとめて示す。図13には、比較のため図11に示したSi-Cr-Ni溶液の結果も併せて示す。ただし、縦軸/横軸を入れ替えてある。

表 4

拡大角度 (°)	溶液	引き上げ高さ (h) mm													
		2.0	2.0	3.5	3.5	4.0	5.0	61	0.5	1.0	1.5	2.0	2.5	3.0	3.5
	Si-Cr-Ni							61		32.5	23.2	18.7	15.1	-4.4	-21.5
	Si-Ti	35.1	46.8	10.4	17.4	14.1	2.1								

表 4 および図 1 3 の結果からも、引き上げ高さの調整によって拡大角度を制御できることが分かる。同時に、溶液の組成によって拡大角と引き上げ高さとの関係曲線がシフトしていることが分かる。シフトする一因は溶液の粘性であろうと考えられる。この場合、S i - C r - N i 溶液よりも S i - T i 溶液の方が粘性が高い。

〔実施例 6〕

実施例 1 と同様にして S i C 単結晶の成長を行なった。種結晶 1 8 の結晶成長面 G と側面との角度  $\beta$  は同じく 9 0 度とした。種結晶の結晶成長面 G と溶液面 S と接触させた後、直ちにメニスカスを形成し、引き上げ高さ h を 3 . 5 m m (一定) とし、種結晶 1 8 の側面と溶液面 S との接触角  $\alpha = 1 5 8 . 5 ^{\circ}$  とした。成長中に接触角  $\alpha$  を徐々に増加させ、成長終了時に 1 9 5  $^{\circ}$  とした。その他の条件は、実施例 1 と同様にした。

図 1 4 に、得られた S i C 単結晶を示す。結晶成長面 G 以外から結晶成長しておらず、側面からの多結晶化が抑制できていることが確認できる。また、成長した結晶径は、経時的に見ると、まず縮小し、次いで一定に維持され、最後に拡大していることが確認できる。

〔実施例 7〕

以上の実施例は本発明の最良の形態により種結晶の結晶成長面のみを溶液に接触させ、すなわち濡れ上がり高さ 0 で S i C 単結晶の成長を行なった。本実施例では、本発明の一般的な形態により、濡れ上がり高さの許容範囲を求めた。

すなわち、実施例 1 と同様にして S i C 単結晶の成長を行なった。ただし、種結晶 1 8 の結晶成長面 G と側面との角度  $\beta$  は 9 0 度とした。また引き上げ高さの調整 ( 1 . 0 m m ~ 3 . 0 m m ) により、濡れ上がり高さを種々 ( 0 m m ~ 0 . 9 m m ) に変化させた。接

触角  $\alpha = 180$  度であり、 $200$  度以下であった。

図 15 (1) ~ (4) に、得られた SiC 単結晶を示す。結果を表 5 にまとめて示す。

表 5

	種結晶側面への濡れ上がり (mm)			
	(1) 0	(2) 0.3	(3) 0.68	(4) 0.9
マクロ欠陥の発生	無し	無し	有り	有り

(1) 濡れ上がり高さ  $0$  mm (引き上げ高さ  $3.0$  mm) とした場合、すなわち種結晶の結晶成長面のみを溶液面に接触させた場合 (本発明の最良の形態) は、結晶成長面以外の部位から結晶成長しておらず、マクロ欠陥あるいは多結晶化が防止された良好な SiC 単結晶が成長している。

(2) 濡れ上がり高さ  $0.3$  mm (引き上げ高さ  $2.0$  mm) とした場合は、種結晶の結晶成長面から成長した結晶 (主結晶) と種結晶の側面から成長した結晶 (側面結晶) とが一体の単結晶として成長しており、(1) と同様に、マクロ欠陥あるいは多結晶化が防止された良好な SiC 単結晶が成長している。

(3) 濡れ上がり高さ  $0.68$  mm (引き上げ高さ  $1.5$  mm) とした場合は、主結晶と側面結晶との間にマクロ欠陥が発生しており、良好な SiC 単結晶は成長できなかった。

(4) 濡れ上がり高さ  $0.9$  mm (引き上げ高さ  $1.0$  mm) とした場合は、(3) と同様に、主結晶と側面結晶との間にマクロ欠陥が発生しており、良好な SiC 単結晶は成長できなかった。

本実施例の場合、濡れ上がり高さの許容上限は  $0.3$  mm 以上  $0.68$  mm 以下の範囲の値である。更に濡れ上がり高さを細かく設定して実験を行えば、より詳細な上限値を求めることができる。

すなわち、予備実験により濡れ上がり高さの上限値を求め、これを超えないように引き上げ高さ等の製造パラメータを設定してSiC単結晶の成長を行なうことができる。

このように、種結晶18の引き上げ軸とメニスカス50との角度 $\gamma$ によって、成長する結晶の径を拡大率または縮小率を制御することができる。

また、種結晶18の引き上げ高さ $h$ によって、引き上げ軸とメニスカス50との角度 $\gamma$ を制御することができる。

更に、引き上げ高さ $h$ と引き上げ軸とメニスカス50との角度 $\gamma$ との関係を示すマップを予め作成しておき、このマップに用いて引き上げ高さ $h$ を調節することにより引き上げ軸とメニスカス50との角度を調節することができる。

#### 産業上の利用可能性

本発明によれば、溶液法によるSiC単結晶の製造方法において、種結晶の結晶成長面以外の面から、あるいは種結晶を支持する黒鉛棒から、多数の結晶がばらばらに成長する多結晶化を防止したSiC単結晶の製造方法および製造装置が提供される。

更に、種結晶の側面と溶液面との角度 $\alpha$ 、種結晶の結晶成長面Gと側面との角度 $\beta$ 、種結晶の引き上げ軸と結晶成長中のメニスカスとの角度（拡大角度） $\gamma$ 、引き上げ高さ $h$ というパラメータの調整により、多結晶化を防止しながら成長結晶の径を拡大、縮小、一定維持する選択制御が可能である。

#### 符号の説明

- 10 黒鉛坩堝
- 12 高周波加熱コイル

1 4	溶液
1 6	支持棒
1 8	種結晶
2 0	不活性雰囲気
2 2	断熱材
2 4	放射温度計
2 6	熱電対
3 0	制御装置
4 0	メニスカス（種結晶の側面と溶液とが形成）
4 2	多結晶
5 0	メニスカス（種結晶の結晶成長面と溶液とが形成）
G	種結晶の結晶成長面
S	溶液面
h	引き上げ高さ
$\alpha$	溶液の接触角
$\beta$	種結晶の結晶成長面と側面との角度

## 請 求 の 範 囲

1. 坩堝内のSi-C溶液を用い、該溶液面に接触させたSiC種結晶を起点としてSiC単結晶を成長させる方法において、  
SiC単結晶の成長起点となるSiC種結晶の結晶成長面を上記溶液面に接触させる際に、SiC種結晶の側面への溶液の濡れ上がり高さを、結晶成長面から成長したSiC単結晶と側面から成長したSiC単結晶とが一体のSiC単結晶として成長する範囲内とすることを特徴とするSiC単結晶の製造方法。
2. 請求項1において、上記SiC種結晶の結晶成長面のみを上記溶液面に接触させて上記濡れ上がり高さを0とすることを特徴とするSiC単結晶の製造方法。
3. 請求項1または2において、上記種結晶の上記結晶成長面と上記溶液との間でメニスカスを形成した状態で成長を行うことを特徴とするSiC単結晶の製造方法。
4. 請求項3において、上記メニスカスと上記種結晶の側面との成す角度が200度以下であることを特徴とするSiC単結晶の製造方法。
5. 請求項3または4において、上記種結晶の引き上げ軸と上記メニスカスとの角度によって、成長する結晶の径の拡大率または縮小率を制御することを特徴とするSiC単結晶の製造方法。
6. 請求項5において、上記種結晶の引き上げ高さによって、上記引き上げ軸と上記メニスカスとの角度を制御することを特徴とするSiC単結晶の製造方法。
7. 請求項5または6において、上記引き上げ高さとして上記引き上げ軸と上記メニスカスとの角度との関係を示すマップを予め作成し、このマップを用いて上記引き上げ高さを調節することにより上

記引き上げ軸と上記メニスカスとの角度を調節することを特徴とするSiC単結晶の製造方法。

8. 請求項1～7のいずれか1項において、該坩堝内のSi-C溶液内には、内部から溶液面に向けて温度低下する温度勾配を維持していることを特徴とするSiC単結晶の製造方法。

9. 請求項1～8のいずれか1項において、上記種結晶の上記結晶成長面と上記側面とのなす角度が90度以下であることを特徴とするSiC単結晶の製造方法。

10. 請求項1～9のいずれか1項において、上記種結晶の上記結晶成長面がSiC結晶の $[0001]$ 面または $[000-1]$ 面であることを特徴とするSiC単結晶の製造方法。

11. 請求項2～10のいずれか1項において、上記種結晶の上記結晶成長面を上記溶液面に接触させたら直ちに種結晶を引き上げて上記メニスカスを形成させることを特徴とするSiC単結晶の製造方法。

12. 請求項11において、上記種結晶を引き上げてメニスカスを形成した後に、上記溶液面に対する上記種結晶の回転を開始することを特徴とするSiC単結晶の製造方法。

13. 請求項1～12のいずれか1項において、上記溶液面が振動している場合に、この振動を利用して上記溶液面と上記種結晶の上記結晶成長面との接触を行うことを特徴とするSiC単結晶の製造方法。

14. 請求項1～13のいずれか1項記載のSiC単結晶の製造方法を行なうための装置であって、

原料溶液を収容するための黒鉛坩堝と、

上記坩堝内の原料を加熱し融解して上記原料溶液を形成し且つSiC単結晶の成長に必要な温度勾配を維持するための加熱手段と、

下端に種結晶を保持する支持棒と、

S i C種結晶の側面への溶液の濡れ上がり高さが、結晶成長面から成長したS i C単結晶と側面から成長したS i C単結晶とが一体のS i C単結晶として成長する範囲内になるように、上記保持を維持する保持機構と

を備えたことを特徴とするS i C単結晶の製造装置。

15. 坩堝内のS i - C溶液を用い、該溶液面に接触させたS i C種結晶を起点としてS i C種結晶の径拡大によりS i C単結晶を成長させる方法において、該成長したS i C単結晶の側面と前記S i C種結晶の側面とのなす角度が200度以上となるように成長を行なうことを特徴とするS i C単結晶の成長方法。

16. 坩堝内のS i - C溶液を用い、該溶液面に接触させたS i C種結晶を起点としてS i C種結晶の径拡大によりS i C単結晶を成長させる方法において、溶液面からS i C単結晶の成長面までの引き上げ高さにより、上記径拡大の拡大角度を制御することを特徴とするS i C単結晶の成長方法。

図1

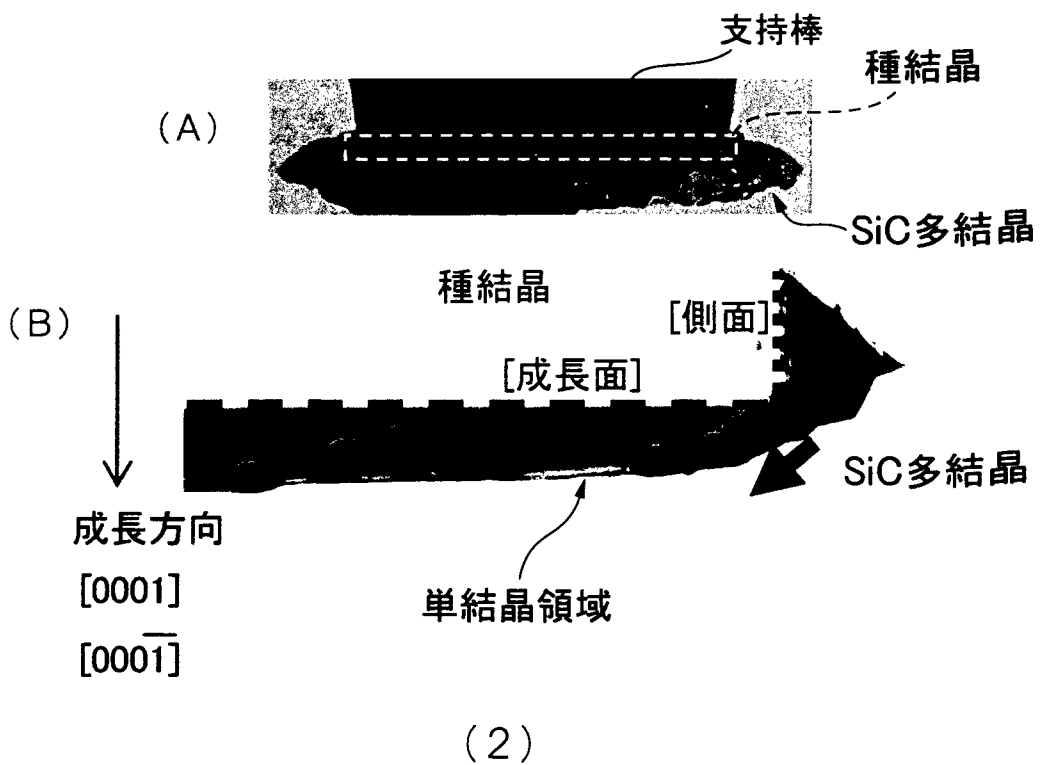
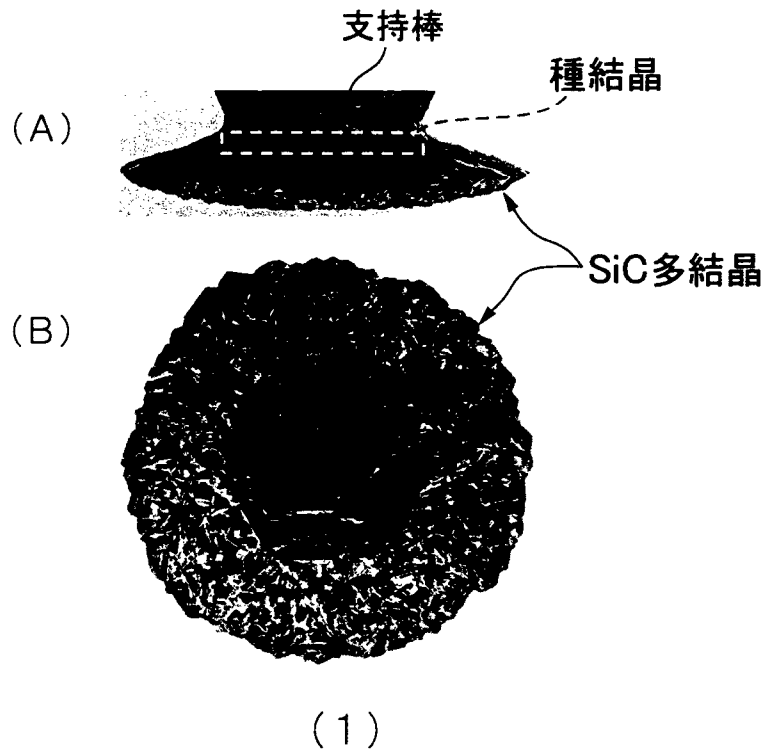


図 2

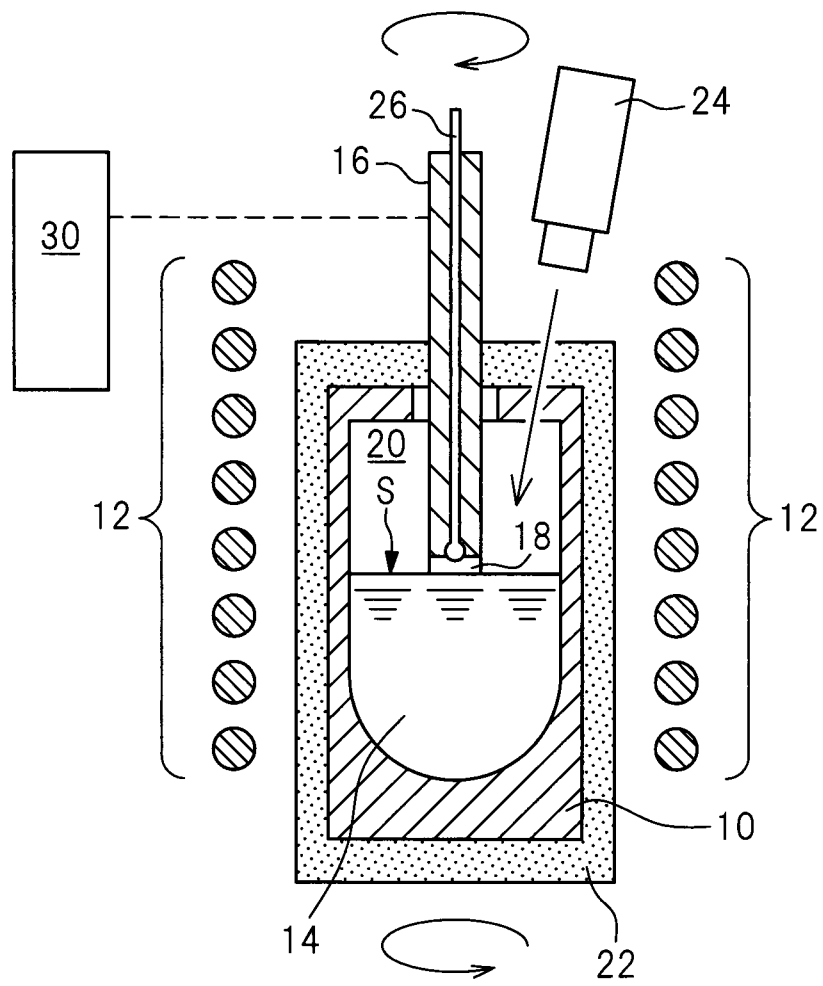


図3

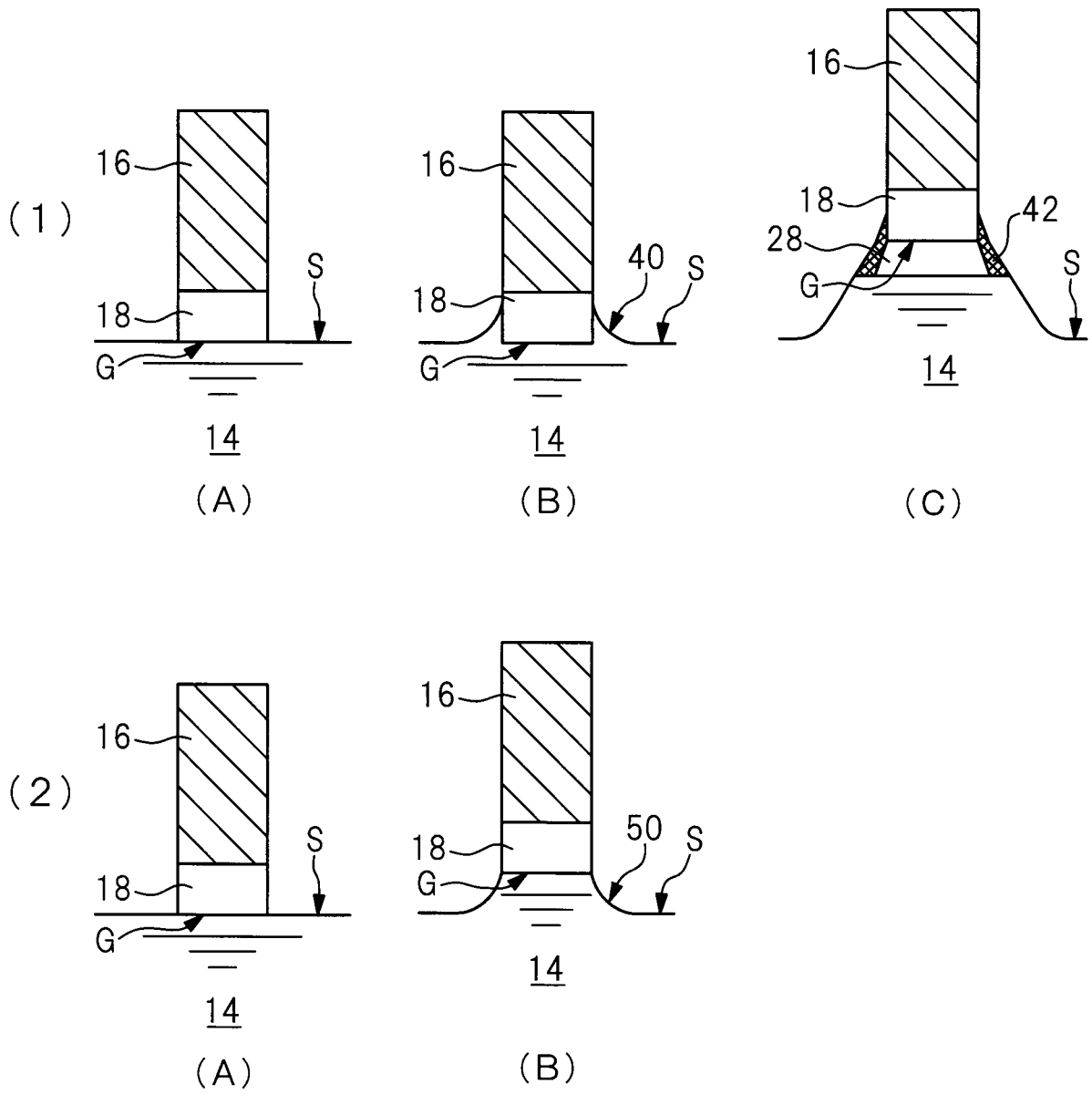


図4

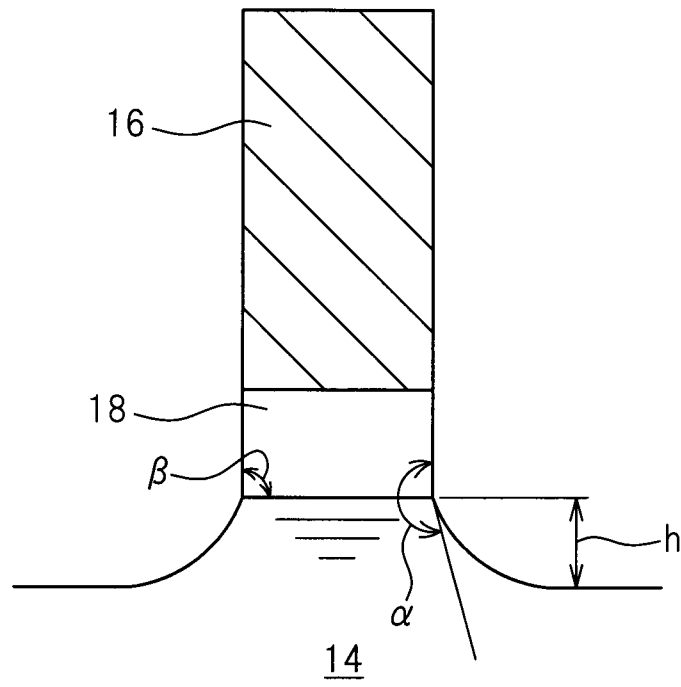
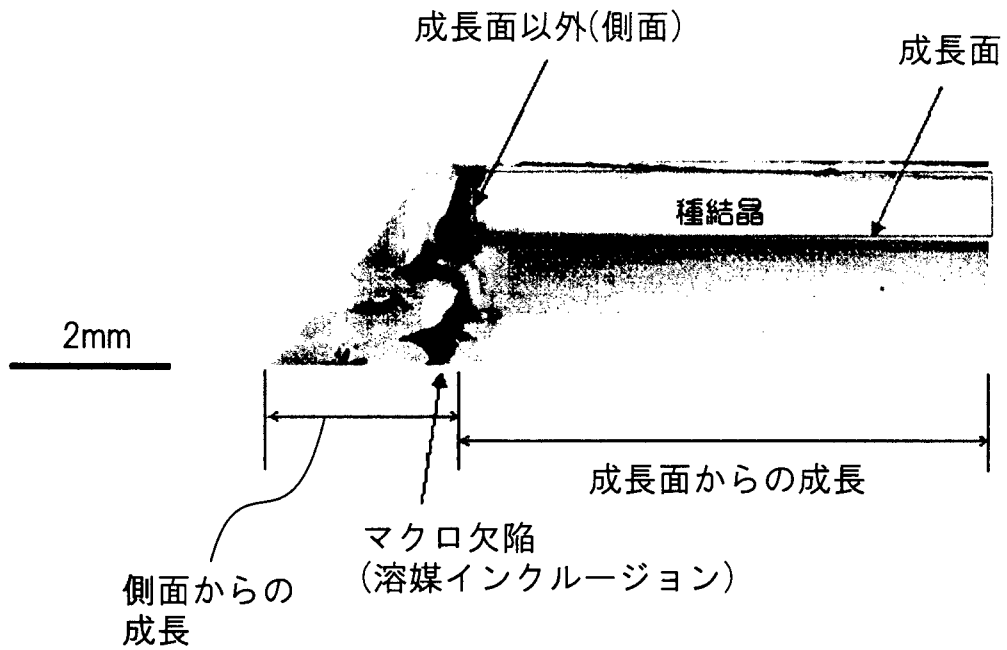
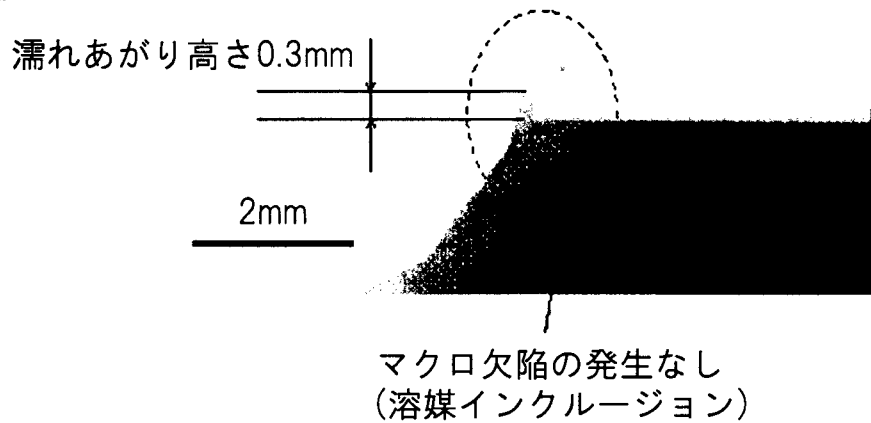


図5

(1)



(2) 0.3mm濡れ上がり



(3) 濡れ上がりなし

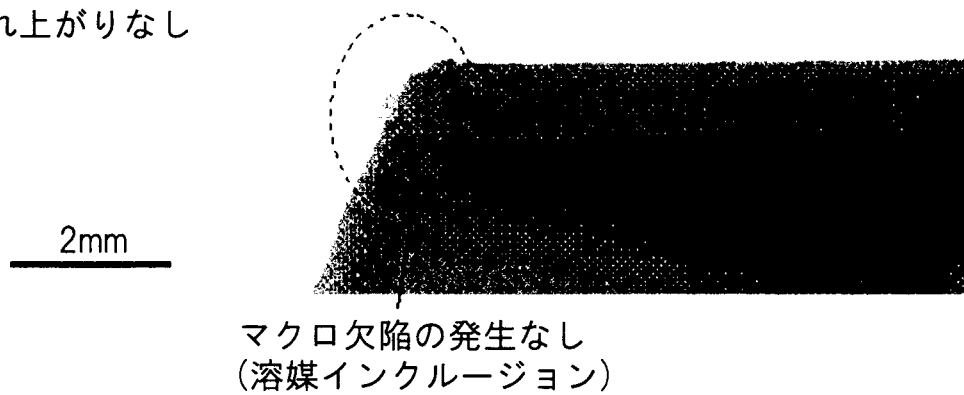


図6

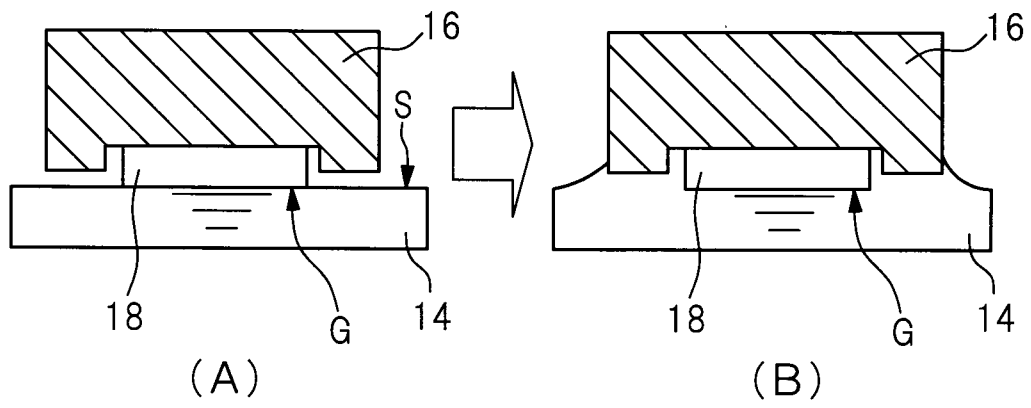


図7

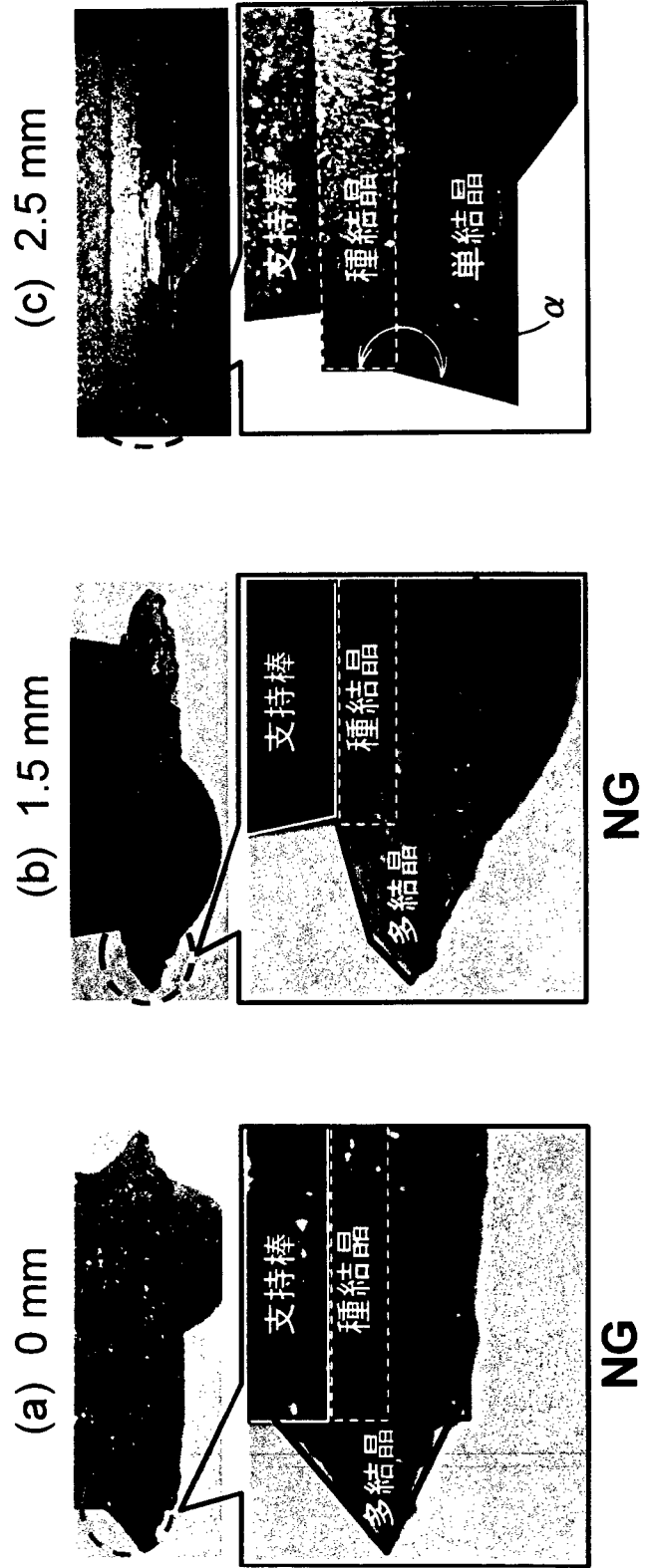


図8

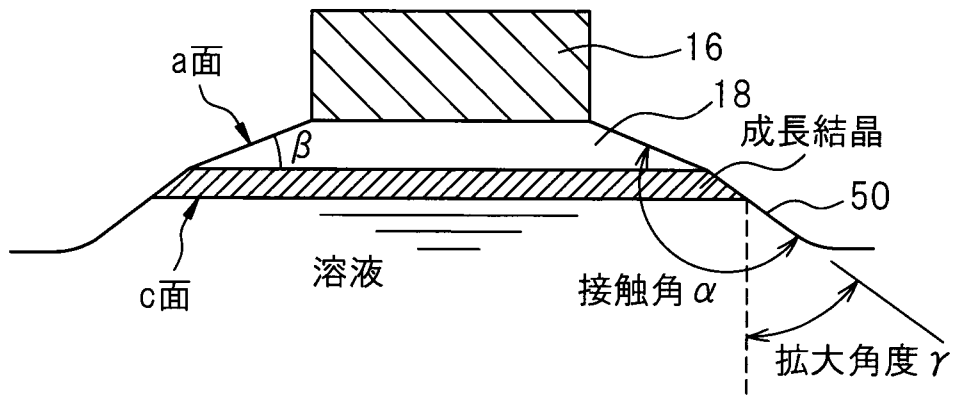


図9

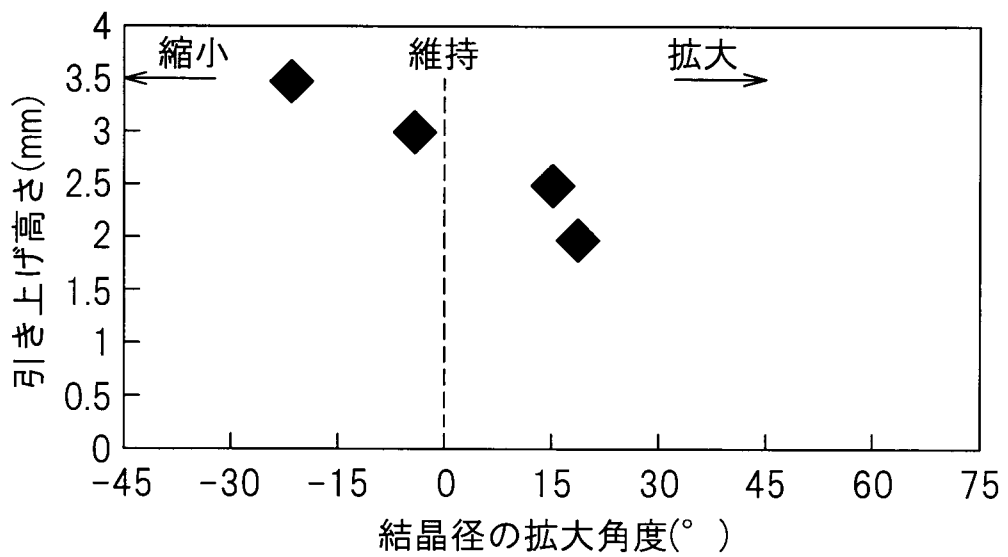


図10

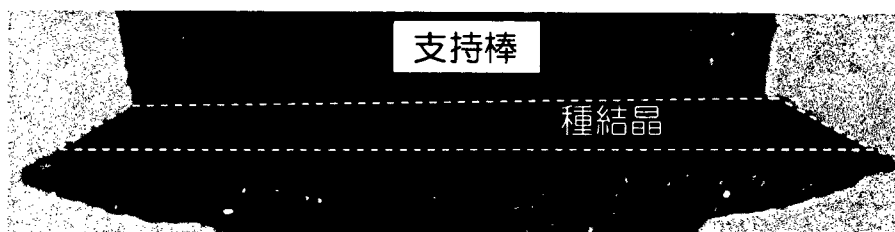


図11



図12

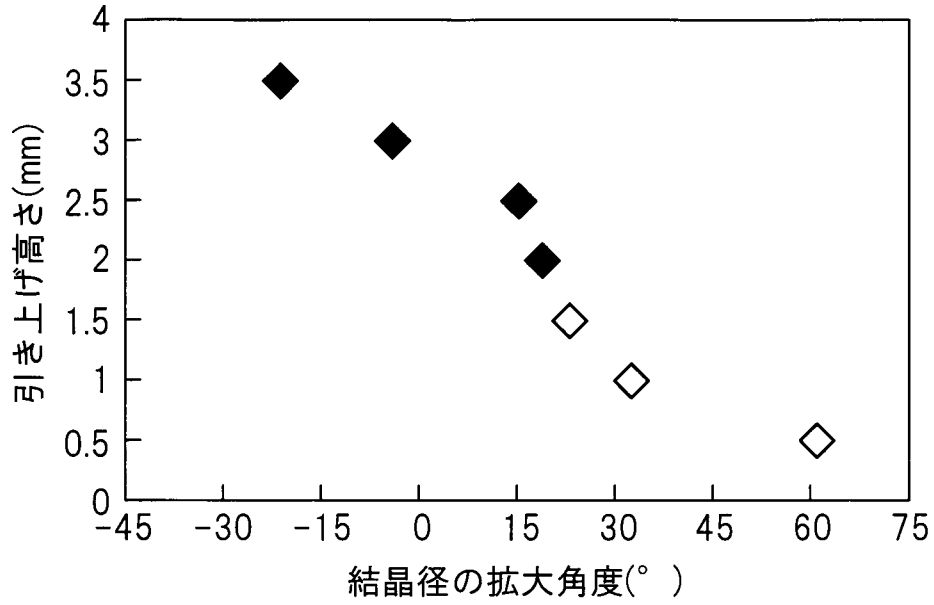


図13

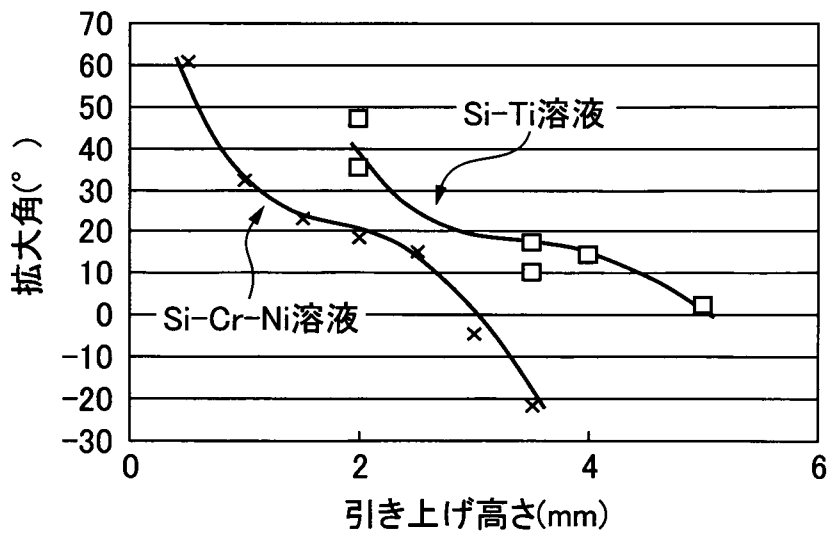
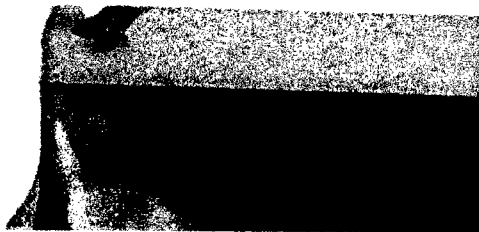


図14

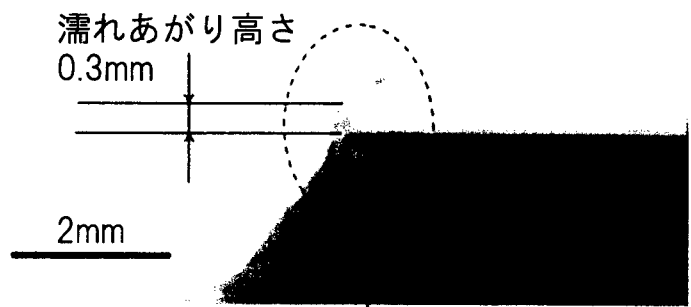


図15

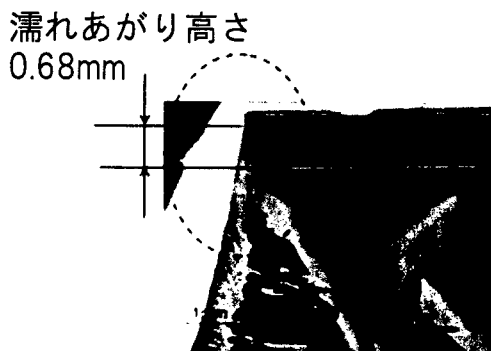
(1) 0mm



(2) 0.3mm



(3) 0.68mm



(4) 0.9mm



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2011/067715

**A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**

C30B29/36(2006.01) i, C30B19/12(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)

C30B1/00-35/00

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 1996-2011

Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2011 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2011

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

JSTPlus (JDreamII), Science Direct

**C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT**

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	JP 2010-184838 A (Toyota Motor Corp.), 26 August 2010 (26.08.2010), claims; paragraphs [0034], [0038]; fig. 3, 10 (Family: none)	1, 9, 13-15 8, 10 2-7, 11, 12, 16
Y	JP 2007-197231 A (Toyota Motor Corp.), 09 August 2007 (09.08.2007), claims; paragraph [0016] & US 2009/0084309 A1 & EP 1978137 A1 & WO 2007/094155 A1 & KR 10-2008-0079332 A & CN 101421442 A	8, 10
A	JP 2008-105896 A (Toyota Motor Corp.), 08 May 2008 (08.05.2008), claims (Family: none)	1-16

Further documents are listed in the continuation of Box C.

See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:

“A” document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

“E” earlier application or patent but published on or after the international filing date

“L” document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

“O” document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

“P” document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

“T” later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

“X” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

“Y” document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

“&” document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
17 August, 2011 (17.08.11)

Date of mailing of the international search report  
25 October, 2011 (25.10.11)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2011/067715

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 2000-264790 A (Hitachi, Ltd.), 26 September 2000 (26.09.2000), paragraph [0034] (Family: none)	1-16
A	JP 2007-326736 A (SUMCO Corp.), 20 December 2007 (20.12.2007), paragraphs [0005] to [0009]; fig. 1(a) (Family: none)	1-16

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2011/067715

**Box No. II Observations where certain claims were found unsearchable (Continuation of item 2 of first sheet)**

This international search report has not been established in respect of certain claims under Article 17(2)(a) for the following reasons:

- 1.  Claims Nos.:  
because they relate to subject matter not required to be searched by this Authority, namely:
  
- 2.  Claims Nos.:  
because they relate to parts of the international application that do not comply with the prescribed requirements to such an extent that no meaningful international search can be carried out, specifically:
  
- 3.  Claims Nos.:  
because they are dependent claims and are not drafted in accordance with the second and third sentences of Rule 6.4(a).

**Box No. III Observations where unity of invention is lacking (Continuation of item 3 of first sheet)**

This International Searching Authority found multiple inventions in this international application, as follows:

The invention set forth in claim 1, the invention set forth in claim 15, and the invention set forth in claim 16 do not have the same or corresponding special technical features. The set of claims involves the three inventions shown below.

(Invention 1) The inventions set forth in claims 1-14 are an invention relating to a method for growing single-crystal SiC, a technical feature of which resides in that the solution is inhibited from wetting upward the lateral surface of the SiC seed crystal.

(Invention 2) The invention set forth in claim 15 is an invention relating (continued to extra sheet)

- 1.  As all required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers all searchable claims.
- 2.  As all searchable claims could be searched without effort justifying additional fees, this Authority did not invite payment of additional fees.
- 3.  As only some of the required additional search fees were timely paid by the applicant, this international search report covers only those claims for which fees were paid, specifically claims Nos.:
  
- 4.  No required additional search fees were timely paid by the applicant. Consequently, this international search report is restricted to the invention first mentioned in the claims; it is covered by claims Nos.:

**Remark on Protest**

- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest and, where applicable, the payment of a protest fee.
- The additional search fees were accompanied by the applicant's protest but the applicable protest fee was not paid within the time limit specified in the invitation.
- No protest accompanied the payment of additional search fees.

**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**

International application No.

PCT/JP2011/067715

Continuation of Box No.III of continuation of first sheet (2)

to a method for growing single-crystal SiC, a technical feature of which resides in that the angle between the lateral surface of the grown single-crystal SiC and the lateral surface of the SiC seed crystal is regulated to 200° or more.

(Invention 3) The invention set forth in claim 16 is an invention relating to a method for growing single-crystal SiC, a technical feature of which resides in that the angle at which the diameter of the SiC seed crystal increases is controlled by regulating the height of the growth surface of the lifted single-crystal SiC from the surface of the solution.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C30B29/36(2006.01)i, C30B19/12(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. C30B1/00-35/00

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	1971-2011年
日本国実用新案登録公報	1996-2011年
日本国登録実用新案公報	1994-2011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)

JSTPlus(JDreamII), Science Direct

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
X Y A	JP 2010-184838 A (トヨタ自動車株式会社) 2010.08.26, 特許請求の範囲, [0034], [0038], 図3, 図10 (ファミリーなし)	1, 9, 13-15 8, 10 2-7, 11, 12, 16
Y	JP 2007-197231 A (トヨタ自動車株式会社) 2007.08.09, 特許請求 の範囲, [0016] & US 2009/0084309 A1 & EP 1978137 A1 & WO 2007/094155 A1 & KR 10-2008-0079332 A & CN 101421442 A	8, 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、一般的な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

17.08.2011

国際調査報告の発送日

25.10.2011

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)  
 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)

吉田 直裕

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

4G

3028

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
A	JP 2008-105896 A (トヨタ自動車株式会社) 2008.05.08, 特許請求の範囲, (ファミリーなし)	1-16
A	JP 2000-264790 A (株式会社日立製作所) 2000.09.26, [0034] (ファミリーなし)	1-16
A	JP 2007-326736 A (株式会社SUMCO) 2007.12.20, [0005]-[0009], 図1(a) (ファミリーなし)	1-16

## 第II欄 請求の範囲の一部の調査ができないときの意見（第1ページの2の続き）

法第8条第3項（PCT17条(2)(a)）の規定により、この国際調査報告は次の理由により請求の範囲の一部について作成しなかった。

1.  請求項 \_\_\_\_\_ は、この国際調査機関が調査をすることを要しない対象に係るものである。つまり、
  
2.  請求項 \_\_\_\_\_ は、有意義な国際調査をすることができる程度まで所定の要件を満たしていない国際出願の部分に係るものである。つまり、
  
3.  請求項 \_\_\_\_\_ は、従属請求の範囲であってPCT規則6.4(a)の第2文及び第3文の規定に従って記載されていない。

## 第III欄 発明の単一性が欠如しているときの意見（第1ページの3の続き）

次に述べるようにこの国際出願に二以上の発明があるところの国際調査機関は認めた。

請求項1に係る発明、請求項15に係る発明、請求項16に係る発明は、同一の又は対応する特別な技術的特徴を有しない。そして、請求の範囲には以下に示す3つの発明が含まれる。

（発明1）請求項1-14に係る発明は、SiC種結晶の側面への溶液の濡れ上がりを抑制する点に技術的特徴を有するSiC単結晶の成長方法の発明である。

（発明2）請求項15に係る発明は、成長したSiC単結晶の側面とSiC種結晶の側面とのなす角度が200度以上とする点に技術的特徴を有するSiC単結晶の成長方法の発明である。

（発明3）請求項16に係る発明は、溶液面からSiC単結晶の成長面までの引き上げ高さにより、SiC種結晶の径拡大の拡大角度を制御する点に技術的特徴を有するSiC単結晶の成長方法の発明である。

1.  出願人が必要な追加調査手数料をすべて期間内に納付したので、この国際調査報告は、すべての調査可能な請求項について作成した。
2.  追加調査手数料を要求するまでもなく、すべての調査可能な請求項について調査することができたので、追加調査手数料の納付を求めなかった。
3.  出願人が必要な追加調査手数料を一部のみしか期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、手数料の納付のあった次の請求項のみについて作成した。
4.  出願人が必要な追加調査手数料を期間内に納付しなかったため、この国際調査報告は、請求の範囲の最初に記載されている発明に係る次の請求項について作成した。

## 追加調査手数料の異議の申立てに関する注意

- 追加調査手数料及び、該当する場合には、異議申立手数料の納付と共に、出願人から異議申立てがあった。
- 追加調査手数料の納付と共に出願人から異議申立てがあったが、異議申立手数料が納付命令書に示した期間内に支払われなかった。
- 追加調査手数料の納付はあったが、異議申立てはなかった。