

(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
2014年5月30日(30.05.2014)



(10) 国際公開番号
WO 2014/080573 A1

- (51) 国際特許分類:
C30B 15/02 (2006.01) **C30B 29/06** (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/006344
- (22) 国際出願日: 2013年10月28日(28.10.2013)
- (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 2012-254568 2012年11月20日(20.11.2012) JP
- (71) 出願人: 信越半導体株式会社 (SHIN-ETSU HAN-
DOTAI CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1000004 東京都千代田
区大手町二丁目6番2号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 北川 勝之 (KITAGAWA, Katsuyuki); 〒
9618061 福島県西白河郡西郷村大字小田倉字大
平150番地信越半導体株式会社 白河工場内
Fukushima (JP). 浦野 雅彦 (URANO, Masahiko); 〒
9618061 福島県西白河郡西郷村大字小田倉字大
平150番地信越半導体株式会社 白河工場内
Fukushima (JP). 吉田 勝浩 (YOSHIDA, Katsuhiko);
〒9618061 福島県西白河郡西郷村大字小田倉字

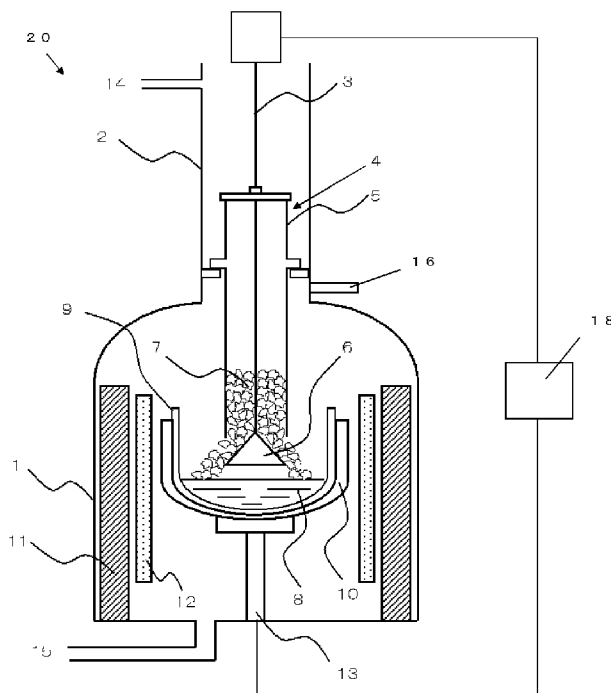
大平150番地信越半導体株式会社 白河工場
内 Fukushima (JP).

- (74) 代理人: 好宮 幹夫 (YOSHIMIYA, Mikio); 〒
1100005 東京都台東区上野7丁目6番11号第
一下谷ビル8F 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, 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, 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, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保
護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW,
MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシ
ア (AM, AZ, BY, KG, KZ, 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,

[続葉有]

(54) Title: RAW MATERIAL FILLING METHOD, METHOD FOR MANUFACTURING SINGLE CRYSTAL, AND DEVICE
FOR MANUFACTURING SINGLE CRYSTAL

(54) 発明の名称: 原料充填方法、単結晶の製造方法及び単結晶製造装置



(57) Abstract: The present invention is a raw material filling method wherein raw material is accommodated in a recharging tube that has a cylindrical member that is made of quartz and accommodates the raw material and a circular cone valve for opening and closing an opening part in the lower end of the cylindrical member; the recharging tube that accommodates the raw material is set inside a chamber, and the raw material accommodated in the recharging tube is introduced into a quartz crucible by lowering the circular cone valve and opening the opening part in the lower end of the cylindrical member. The raw material filling method is characterized by arranging the recharging tube and the quartz crucible such that the distance between the lower end of the recharging tube and raw material or a melt in the quartz crucible at the beginning of the introduction of the raw material is 200 - 250 mm, and, thereafter, introducing the raw material while simultaneously lowering the quartz crucible and the circular cone valve of the recharging tube such that the ratio (CL/SL) of the lowering rate (CL) of the quartz crucible and the lowering rate (SL) of the circular cone valve of the recharging tube is 1.3 - 1.45. Thus, damage to the quartz crucible and recharging tube can be suppressed.

(57) 要約:

[続葉有]



NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI 添付公開書類:

(BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, — 国際調査報告 (条約第 21 条(3))
MR, NE, SN, TD, TG).

本発明は、原料を収容する石英製の円筒部材と、該円筒部材の下端の開口部を開閉するための円錐バルブとを有するリチャージ管に原料を収容し、該原料を収容したリチャージ管をチャンバー内にセットし、円錐バルブを下降させて円筒部材の下端の開口部を開けることで石英ルツボ内にリチャージ管内に収容した原料を投入する原料充填方法であって、原料の投入開始時に前記リチャージ管の下端と石英ルツボ内の原料又は融液との距離が200mm以上、250mm以下となるように、リチャージ管及び石英ルツボを配置し、その後、石英ルツボの下降速度（CL）とリチャージ管の円錐バルブの下降速度（SL）の比（CL/SL）が1.3以上、1.45以下となるように、石英ルツボとリチャージ管の円錐バルブとを同時に下降させながら原料を投入することを特徴とする原料充填方法である。これにより、石英ルツボやリチャージ管が破損するのを抑制できる。

明 細 書

発明の名称：

原料充填方法、単結晶の製造方法及び単結晶製造装置

技術分野

[0001] 本発明は、単結晶の製造において、リチャージ管を用いて原料を石英ルツボに充填する方法に関する。

背景技術

[0002] 半導体集積回路の基板として用いられるシリコン単結晶の製法としては、CZ（チョクラルスキー）法や、磁場を印加するMCZ（磁場印加チョクラルスキー）法が一般的である。これらCZ/MCZ法では、石英ルツボ内にシリコン原料を充填して溶融し、その融液に種結晶を着液した後、引き上げることでシリコン単結晶を育成することができる。CZ/MCZ法の単結晶製造装置（引き上げ機）では、メインチャンバー内に融液を加熱するヒーターが設置され、その内側に融液を収容する石英ルツボが設置される。

[0003] 通常、まずこの石英ルツボに原料を詰め、ヒーター加熱によって原料が溶融される。近年のシリコン単結晶の大口径化や結晶長尺化に伴い、石英ルツボ内に初期に詰めた原料分だけでは不足、さらに原料を追加する場合がある。これを追いチャージと呼び、後に説明するリチャージと同様に、円錐状のコーン（円錐バルブ）を下端に有するリチャージ管に原料を詰め、そのリチャージ管で石英ルツボ内に原料を投入する。そして、これらの原料を全て溶融した後、シリコン単結晶の育成を開始する。

[0004] 石英ルツボ内には原料が溶解された融液が満たされており、ここからシリコン単結晶が育成される。育成された単結晶は、メインチャンバー上部にゲートバルブを介して接続されている引き上げチャンバー内に収容され、冷却される。その後、この引き上げチャンバーから単結晶を取り出す。

[0005] このような単結晶の製造において、1つの石英ルツボから1本の単結晶を育成するのみであれば、この時点で単結晶の育成は終了となるが、石英ルツ

ボは割れて再使用ができないことから製造コストが高くなってしまう。そこで1つの石英ルツボから複数の単結晶を育成するマルチ操業が行われる場合がある。その場合、単結晶育成後には石英ルツボ中の融液は育成された結晶分だけ減少しているため、そのままでは次の単結晶を育成できない。従って、この減少分を補うために原料を再度投入するリチャージが行われる。

[0006] リチャージの方法としては、ロッドリチャージ法や、特許文献1に開示されたような原料タンクから供給する方法などが古くから提案されてきた。しかし、多くの特許文献に取り上げられている技術は、下端に円錐バルブを有するリチャージ管に原料を収容し、そのリチャージ管に収容された原料を石英ルツボ内に投入する方法である。この技術の基本が開示されているのが、特許文献2、3である。

[0007] このような方法において、ゲートバルブで仕切られた引き上げチャンバーからシリコン単結晶を取り出した後、原料を収容したリチャージ管をワイヤーで吊り下げて装着し、真空引きにより引き上げチャンバー内の炉内圧をメインチャンバー内の炉内圧にあわせた後ゲートバルブを開き、リチャージ管を下降させた後、円錐バルブを下降させることでリチャージ管の開口部を開けて原料を投入する。

[0008] 上記のように充填される原料は、通常、多結晶もしくは稀に単結晶の場合もあり、それらの結晶を砕いたものが用いられ、リチャージ管に詰められた状態では空隙がある。従って、単結晶を育成した分に相当するような原料を追加するためには、リチャージ管による1回の投入では不足となる場合がある。このような場合は、複数回の投入を連続して行うことになる。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：特開昭62-260791号公報

特許文献2：特開平2-157180号公報

特許文献3：WO2002/068732

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0010] 特許文献3には、リチャージ管本体が下方端部に向かって外方に拡開しているリチャージ管を用いて、残余融液を固化させた表面とリチャージ管の円錐バルブとを接触させるために石英ルツボを上昇させ、その固化表面と円錐バルブとを接触させた後、吊り下げているリチャージ管ワイヤーの負荷を緩め、石英ルツボを降下させることで円錐バルブを降下させ、原料を充填する方法が記載されている。

しかし、この方法で原料を投入すると原料が均一に出ず中央部に集まり、未熔融原料高さのばらつきが大きくなることがある。そのため、前に投入した原料がある程度溶けるまで待ってから次の原料投入を行ったり、うまく全原料を投入できたとしても原料の熔融に時間がかかったりし、何れにしても追加原料の熔融に時間がかかるという問題がある。

[0011] また、原料投入時のワイヤーや石英ルツボの操作は、オペレーターが炉内を確認しながら行っていた。このとき、ワイヤーと石英ルツボを同時に操作することが理想であるが、オペレーターによりこれら両方を確認しながら同時に操作するのは難しく、このことが最適な投入ができない要因となっている。

[0012] そのため、予め円錐バルブの下降分を見込んで、石英ルツボとの距離を多めにとって、すなわち石英ルツボ位置を十分に下方に下げて投入を開始することが多かったが、このようにすると投入された原料が石英ルツボに勢いよくぶつかり、大きくダメージを与えてしまうという問題がある。反対に、投入開始時の石英ルツボの位置を高くすると、リチャージ管と石英ルツボ間の距離が狭くなり、投入終盤で円錐バルブが投入された原料の上に乗り、それによって円錐バルブが大きく振られ、石英製のリチャージ管のヒビや割れが発生したり、投入された原料の上面が平坦にならず溶け方にムラができる等の問題がある。

[0013] 本発明は前述のような問題に鑑みてなされたもので、ルツボ内に原料をスムーズに投入し、熔融時間を短縮するとともに、石英ルツボやリチャージ管

が破損するのを抑制できる原料充填方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0014] 上記目的を達成するために、本発明によれば、石英ルツボ内に原料を充填する工程と、前記石英ルツボ内で前記原料を溶融して融液とする工程と、該融液から単結晶を引き上げる工程とを有する単結晶の製造における、前記石英ルツボ内に原料を充填する工程において、前記原料を収容する石英製の円筒部材と、該円筒部材の下端の開口部を開閉するための円錐バルブとを有するリチャージ管に前記原料を収容し、該原料を収容したリチャージ管をチャンバー内にセットし、前記円錐バルブを下降させて前記円筒部材の下端の開口部を開けることで前記石英ルツボ内に前記リチャージ管内に収容した原料を投入する原料充填方法であって、前記原料の投入開始時に前記リチャージ管の下端と前記石英ルツボ内の原料又は融液との距離が200mm以上、250mm以下となるように、前記リチャージ管及び前記石英ルツボを配置し、その後、前記石英ルツボの下降速度（CL）と前記リチャージ管の円錐バルブの下降速度（SL）の比（CL／SL）が1.3以上、1.45以下となるように、前記石英ルツボと前記リチャージ管の円錐バルブとを同時に下降させながら前記原料を投入することを特徴とする原料充填方法が提供される。

[0015] このような原料充填方法であれば、リチャージ管と石英ルツボとを適切な位置に配置してから適切な投入速度で原料を投入できるので、落下する原料によって石英ルツボが破損したり、リチャージ管と投入した原料とが干渉してリチャージ管が破損することを抑制できる。しかも、投入された原料の上面は平坦となり、その後の溶融も効率的に行うことができる。

[0016] このとき、前記リチャージ管の円錐バルブの下降速度（SL）を250mm／min以上、375mm／min以下とすることが好ましい。

このように下降速度（SL）が250mm／min以上であれば、原料の投入が断続的となって投入時間が増加するのを抑制でき、原料を石英ルツボ内に確実に均一に投入できる。これにより、原料の溶融時間や連続投入する

際の次の投入までの待ち時間を低減できる。また、下降速度（SL）が375 mm/min以下であれば、原料が勢いよく投入されて石英ルツボを破損してしまうのをより確実に抑制できる。

[0017] また、本発明によれば、前記石英ルツボ内に原料を充填する工程と、前記石英ルツボ内で前記原料を溶融して融液とする工程と、該融液から単結晶を引き上げる工程とを繰り返し、同一の石英ルツボを用いて複数の単結晶を製造する方法であって、前記原料を充填する工程において、上記本発明の原料充填方法により前記原料を充填することを特徴とする単結晶の製造方法が提供される。

[0018] このような単結晶の製造方法であれば、原料を充填する工程において、落下する原料によって石英ルツボが破損したり、リチャージ管と投入した原料とが干渉してリチャージ管が破損することを抑制できる。また、原料を石英ルツボ内に均一に投入できるので、原料の溶融時間や連続投入する際の次の投入までの待ち時間を低減でき、単結晶の製造時間を低減できる。

[0019] また、本発明によれば、原料を収容する石英ルツボと、該原料を溶融して融液にするヒータを格納するチャンバーと、該チャンバー内にセットされ、前記原料を収容する石英製の円筒部材と、該円筒部材の下端の開口部を開閉するための円錐バルブとを有するリチャージ管とを具備する単結晶製造装置であって、上記本発明の原料充填方法における前記石英ルツボ内に原料を充填する工程において、前記原料の投入開始時の前記リチャージ管及び前記石英ルツボの配置と、前記原料の投入中の前記石英ルツボと前記リチャージ管の円錐バルブの下降を自動で制御する制御装置を更に具備するものであることを特徴とする単結晶製造装置が提供される。

[0020] このような単結晶製造装置であれば、単結晶製造の原料を充填する工程において、リチャージ管及び石英ルツボの制御を確実に短時間で実施して、上記した原料充填方法の実施を確実に可能とするものとなる。これにより、単結晶製造の生産性を向上できる。

発明の効果

[0021] 本発明では、単結晶製造の石英ルツボ内に原料を充填する工程において、原料の投入開始時にリチャージ管の下端と石英ルツボ内の原料又は融液との距離が200mm以上、250mm以下となるようにし、石英ルツボの下降速度（CL）とリチャージ管の円錐バルブの下降速度（SL）の比（CL／SL）を1.3以上、1.45以下となるようにするので、リチャージ管と石英ルツボとを適切な位置に配置してから適切な投入速度で原料を投入でき、これにより落下する原料によって石英ルツボが破損したり、リチャージ管と投入した原料とが干渉してリチャージ管が破損することを抑制できる。また、オペレーターによる作業の時間ばらつきを低減し、安定した運転が可能となる。

また、円錐バルブの下降速度（SL）を250mm／min以上、375mm／min以下とすれば、原料を石英ルツボ内に確実に均一に投入できる。これにより、原料の溶融時間や連続投入する際の次の投入までの待ち時間を低減できる。

図面の簡単な説明

[0022] [図1]本発明の単結晶製造装置の一例を示す概略図である。

[図2]本発明に用いることができるリチャージ管の一例を示す概略図である。

[図3]リチャージ管の下端と石英ルツボ内の原料又は融液との距離を決定する方法の一例を説明する説明図である。

[図4]実施例1－2、比較例1－2で用いた石英ルツボの概略を示す図である。

[図5]実施例1、比較例1の結果を示す図である。

発明を実施するための形態

[0023] 以下、本発明について、実施態様の一例として、図を参照しながら詳細に説明するが、本発明はこれに限定されるものではない。

[0024] まず、本発明の単結晶製造装置について説明する。

図1に示すように、単結晶製造装置20は、メインチャンバー1と、メインチャンバー1内で融液8を収容する石英ルツボ9及び黒鉛ルツボ10と、

石英ルツボ 9 及び黒鉛ルツボ 10 の周囲に配置されたヒーター 12 と、ヒーター 12 の外側周囲の断熱部材 11 と、メインチャンバー 1 の上部にゲートバルブ 16 を介して連設され、育成した単結晶（単結晶インゴット）を収納するプルチャンバー 2 と、リチャージ管 4 とを備えている。

[0025] プルチャンバー 2 には炉内を循環させるガスを導入するガス導入口 14 が設けられ、メインチャンバー 1 の底部には炉内を循環したガスを排出するガス流出口 15 が設けられている。石英ルツボ 9 及び黒鉛ルツボ 10 は支持軸 13 を介して設置され、結晶成長軸方向に昇降可能であり、結晶成長中に結晶化して減少した融液 8 の液面下降分を補うように石英ルツボ 9 及び黒鉛ルツボ 10 を上昇させる。これにより、融液 8 の液面の高さはほぼ一定に保たれる。

[0026] 図 2 に示すように、リチャージ管 4 は、原料（多結晶又は単結晶）7 を収容する石英製の円筒部材 5 と、該円筒部材 5 の下端の開口部を開閉するための円錐バルブ 6 と、円筒部材 5 の上端に取付けるリチャージ管蓋 17 を有している。リチャージ管 4 に収容した原料 7 はヒーター 12 のパワーを低下させ、石英ルツボ 9 内の融液 8 の表面を固化させてから、図 1 に示すように、円錐バルブ 6 を下降させて開口部を開けることで原料 7 を石英ルツボ 9 内に投入することができる。リチャージ管 4 は原料を投入する際にプルチャンバー 2 内にワイヤー 3 で吊してセットされ、原料投入後に単結晶を製造する際には取り外される。ここで、ワイヤー 3 の先端はリチャージ管 4 の円錐バルブ 6 に固定され、ワイヤー 3 を下方に送ることで円錐バルブ 6 を下降させることができる。

[0027] 本発明の単結晶製造装置 20 は、更に、下記で詳述する本発明の原料充填方法における石英ルツボ内に原料を充填する工程において、原料 7 の投入開始時のリチャージ管 4 及び石英ルツボ 9 の配置位置と、原料 7 の投入中の石英ルツボ 9 とリチャージ管 4 の円錐バルブ 6 の下降速度を自動で制御する制御装置 18 を有している。この制御装置 18 によって、リチャージ管 4 及び石英ルツボ 9 の制御を確実に短時間で実施することができ、生産性を向上し

、省力化を図ることができる。この場合、例えば石英ルツボ 9 内の融液面や投入された原料の位置を検出するレーザー測長センサ又はカメラを設けることができる。

[0028] 次に、本発明の原料充填方法及び単結晶の製造方法について説明する。ここでは、図 1 に示す上記した本発明の単結晶製造装置 20 を用いた場合を例として説明する。

本発明の単結晶の製造方法は、石英ルツボ 9 内に原料 7 を充填する工程と、石英ルツボ 9 内で原料 7 を溶融して融液 8 とする工程と、該融液 8 から単結晶を引き上げる工程とを繰り返し、同一の石英ルツボ 9 を用いて複数の単結晶を製造する方法である。また、本発明の原料充填方法は、本発明の単結晶の製造における石英ルツボ 9 内に原料 7 を充填する工程において、石英ルツボ 9 内にリチャージ管 4 内に収容した原料 7 を投入する方法である。

[0029] 本発明の単結晶の製造方法では、本発明の原料充填方法により石英ルツボ 9 内に原料 7 を充填する。まず、図 2 に示すように、リチャージ管 4 に原料 7 を収容する。次に、図 1 に示すように、原料 7 を収容したリチャージ管 4 をプルチャンバー 2 内にワイヤー 3 で吊してセットする。ヒーター 12 のパワーを低下させ、石英ルツボ 9 内の融液 8 の表面を固化させてから、原料 7 の投入開始時にリチャージ管 4 の下端と石英ルツボ 9 内の原料又は融液 8 との距離が 200 mm 以上、250 mm 以下となるように、リチャージ管 4 及び石英ルツボ 9 を配置する。この際、上記距離は石英ルツボ 9 を上下方向に動かすことで調整できる。

[0030] 更に、上記距離は下記の式 (2) を用いて、200 mm 以上、250 mm 以下の範囲内で詳細に決定できる。ここで、各記号の説明を図 3 に示す。

$$V = (D1 \times 10^{-3})^2 \times \pi / 4 \times (L1 \times 10^{-3}) \quad (1)$$

$$H = k \times L2 \quad (2)$$

$$L2 = V / ((D2 \times 10^{-3})^2 \times \pi / 4) \quad (3)$$

D1 : リチャージ管内径 (mm)

L1 : リチャージ管長さ (mm)

V : 原料容積[m³]

H : 距離 [mm]

L₂ : 投入後の原料の推定高さ[mm]

D₂ : 石英ルツボ内径[mm]

ここで、k は予め実験等で定められた定数である。例えば、直径800 mmの石英ルツボを用いた場合のkを1.42とすることができる。

[0031] 次に、円錐バルブ6を下降させて円筒部材5の開口部を開けることでリチャージ管4内に收容した原料7を石英ルツボ9内に投入する。この際、石英ルツボ9の下降速度(C_L)とリチャージ管4の円錐バルブ6の下降速度(S_L)の比(C_L/S_L)が1.3以上、1.45以下となるように、石英ルツボ9とリチャージ管4とを同時に下降させながら原料7を投入する。

全ての原料を1度に投入できない場合には、投入を複数に分け、上記の原料充填方法を繰り返し行うようにすることができる。

[0032] このように本発明の原料充填方法では、リチャージ管と石英ルツボを適切な位置に配置してから投入を開始するので、石英ルツボの位置が低すぎることによって原料が空中散布される状態、すなわち原料が勢いよく石英ルツボに落下して石英ルツボを破損させたり、石英ルツボの位置が高すぎることで円錐バルブと投入した原料とが干渉してリチャージ管を破損させてしまうことを抑制できる。また、石英ルツボの下降速度(C_L)を円錐バルブの下降速度(S_L)より早くして、その比(C_L/S_L)を1.3以上、1.45以下とすれば、原料の投入量に応じた分だけ石英ルツボの位置を早めに下降させることができるので、上記した石英ルツボやリチャージ管の破損を確実に抑制できる。

[0033] また、本発明の原料充填方法では従来のようなオペレータによる操作のばらつきをなくすことができ、作業時間のばらつきを低減し、安定した原料充填が期待できる。また、安定した原料充填が可能となることで、リチャージ管をプルチャンバー内にセットしてから、ゲートバルブを開き、原料充填し、リチャージ管のプルチャンバー内への引き上げ、ゲートバルブを閉じ、プ

ルチャンバー内を常圧に戻すまでの一連の工程を自動で行うようにすることができ、これらの制御を上記した制御装置 18 で行うことができる。

[0034] また、原料投入時におけるリチャージ管の円錐バルブの下降速度（SL）を 250 mm/min 以上、 375 mm/min 以下とすることが好ましい。

このように下降速度（SL）が 250 mm/min 以上であれば、原料の投入が断続的となって投入時間が増加するのを抑制でき、原料を石英ルツボ内に確実に均一に投入できる。これにより、原料の溶融時間や連続投入する際の次の投入までの待ち時間を低減できる。また、下降速度（SL）が 375 mm/min 以下であれば、勢いよく投入された原料が石英ルツボを破損してしまうのをより確実に抑制できる。

[0035] 原料充填後、ヒーター 12 により石英ルツボ 9 内で原料 7 を溶融して融液 8 とする。その後、融液 8 に種結晶（不図示）を接触させ、引上げながら単結晶を成長させる。そして、本発明の原料充填方法により充填し、同一の石英ルツボを用いて単結晶を引き上げる工程を繰り返し、複数の単結晶を製造する。

このような本発明の単結晶の製造方法では、原料を充填する工程において、落下する原料によって石英ルツボが破損したり、リチャージ管と投入した原料とが干渉してリチャージ管が破損することを抑制しつつ、原料を石英ルツボ内に均一に投入できる。そのため、原料の溶融時間や連続投入する際の次の投入までの待ち時間を低減でき、単結晶の製造時間を低減できる。

実施例

[0036] 以下、本発明の実施例及び比較例を示して本発明をより具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

[0037] （実施例 1）

図 1 に示すような本発明の単結晶製造装置を用い、本発明の原料充填方法に従って原料 75 kg を石英ルツボ内に投入し、投入された原料の落下の様子及び投入の均一さについて評価した。使用した石英ルツボは直径 800 mm

m (32インチ) のものとした。また、図4に示すように、石英ルツボの内部に嵩上げ用原料、クッション材、板をこの順に配置して仮想固化面を作り、ルツボ冷間時の条件で原料を投入した。ここで、原料の落下の様子は、投入された原料と石英ルツボとの衝突頻度と、投入された原料とリチャージ管との干渉の有無をカメラによる動画によって評価した。また、図4に示すように、原料の投入の均一さは、仮想固化面からの原料の高さの最大 h_{max} と最小 h_{min} の差 Δh をデプスゲージにて測定することにより評価した。

[0038] 原料の投入時の条件は以下のようにした。

投入開始時のリチャージ管の下端と石英ルツボ内の仮想固化面との距離 H
: 200 mm、250 mm

石英ルツボの下降速度 (CL) : 362.5 mm/min

円錐バルブの下降速度 (SL) : 250 mm/min

CL/SL : 1.45

また、仮想固化面の位置を、融液の量が少ない (A)、中間 (B)、多い (C) 状態となるように3段階に分けて実施した。

[0039] 原料の落下の様子の結果を表1に示す。尚、表中の落下状態の○は原料と石英ルツボとの衝突が少なく、原料とリチャージ管との干渉が無かったことを示し、△は原料と石英ルツボとの衝突があったか、又は、原料とリチャージ管との干渉が少なかったことを示し、×は原料と石英ルツボとの衝突が多かったか、又は、原料とリチャージ管との干渉も多かったことを示す。

表1に示すように、実施例1ではいずれの場合も原料の落下状態は良好で、石英ルツボとの衝突は少なく抑えられ、原料とリチャージ管との干渉は無かった。また、仮想固化面からの原料の高さの最大と最小の差 Δh も小さく抑えられ、原料が均一に投入されていた。

[0040] これに対し、後述する比較例1では原料の落下状態が実施例1と比べ悪化し、原料と石英ルツボとの衝突や原料とリチャージ管との干渉が増加していた。

[0041] また、距離 H が200 mmの条件で、原料225 kgを3回に分割して (

1 回 7 5 k g) 原料充填し、分割した各原料の投入開始から終了までの時間を測定した。これを繰り返し行い (データ数 4 6 回) 平均値及び最大値と最小値の差を評価した。この結果を図 5 (A) に示す。図 5 (A) に示すように、実施例 1 では工程時間のばらつきが抑制できた。これは原料が安定して均一に投入できたことを示しており、しかも原料の均一投入の再現性も高いと言える。これに対し、後述する比較例 1 では工程時間のばらつきが次第に大きくなってしまった。また、図 5 (B) に投入開始前の石英ルツボの高さ位置 (C P) の平均値及び最大値と最小値の差を測定した結果を示す。図 5 (B) に示すように、実施例 1 では石英ルツボの高さ位置 (C P) のばらつきが少ない一方、後述する比較例 1 ではこのばらつきが大きくなっていた。

[0042] (実施例 2)

原料の投入時の条件は以下のようにした以外、実施例 1 と同じ条件で原料を投入し、実施例 1 と同様に評価した。

投入開始時のリチャージ管の下端と石英ルツボ内の仮想固化面との距離 H : 2 0 0 m m

円錐バルブの下降速度 (S L) : 1 2 5 m m / m i n 、 2 5 0 m m / m i n 、 3 7 5 m m / m i n

C L / S L : 1 . 3 、 1 . 4 5

尚、距離 H の 2 0 0 m m は、実施例 1 での結果が一番良かった条件である。

[0043] 原料の落下の様子の結果を表 2 に示す。表 2 に示すように、実施例 2 ではいずれの場合も原料の落下状態は良好で、石英ルツボとの衝突は少なく抑えられ、原料とリチャージ管との干渉は無かった。さらに、円錐バルブの下降速度が 2 5 0 m m / m i n 及び 3 7 5 m m / m i n の場合では、 Δh も小さく抑えられ、原料が均一に投入されていた。

これに対し、後述する比較例 2 では原料の落下状態が実施例 2 と比べ悪化し、原料と石英ルツボとの衝突や原料とリチャージ管との干渉が増加していた。

[0044] (比較例 1)

原料の投入時の条件は以下のようにした以外、実施例 1 と同じ条件で原料を投入し、実施例 1 と同様に評価した。

投入開始時のリチャージ管の下端と石英ルツボ内の仮想固化面との距離 H : 150 mm、300 mm、350 mm

[0045] 原料の落下の様子の結果を表 1 に示す。表 1 に示すように、距離 H が 150 mm の場合は、原料投入終盤で円錐バルブが投入された原料の上に乗ってしまい、リチャージ管は破損しなかったものの、原料が最後まで完全に出ずに原料投入が完了しなかった。また、距離 H が 300 mm 及び 350 mm の場合は、原料が空中散布をした時のように遠くへ飛んでしまい、石英ルツボに勢いよく衝突してしまった。このように石英ルツボに与えるダメージが大きい場合には最悪湯漏れに至るケースも有るため好ましくない。

[0046] また、距離を 300 mm とした以外、実施例 1 と同様に、原料 225 kg を 3 回に分割して (1 回 75 kg) 原料充填し、分割した各原料の投入開始から終了までの時間を測定した。これを繰り返し行い (データ数 93 回) 平均値及び最大値と最小値の差を評価した。その結果、図 5 (A) (B) に示すように、工程時間のばらつき及び石英ルツボの高さ位置 (CP) のばらつきが共に実施例 1 と比べて悪化していた。

[0047] (比較例 2)

原料の投入時の条件は以下のようにした以外、実施例 2 と同じ条件で原料を投入し、実施例 2 と同様に評価した。

CL / SL : 1.0、1.15、1.60、1.75、1.90

[0048] CL / SL が 1.0 の場合、原料投入終盤で原料と円錐バルブの干渉が見られ、また、原料を均一に投入できなかった。CL / SL が 1.6 以上の場合、原料は均一に投入できたが、原料と石英ルツボの衝突が増加してしまった。これは、投入開始時にリチャージ管と石英ルツボを適切な距離に配置したとしても、次第に石英ルツボと円錐バルブ間の距離が増加し、結局空中散布のような投入になってしまったためである。

[0049] [表1]

		比較例1	実施例1		比較例1	
固化面位置	H (mm)	150	200	250	300	350
A (融液少)	落下状態	△	○	○	△	×
	Δh (mm)	150	110	115	140	130
B (融液中)	落下状態	△	○	○	△	×
	Δh (mm)	120	100	130	150	130
C (融液多)	落下状態	△	○	○	△	×
	Δh (mm)	150	100	120	150	130

[0050] [表2]

		比較例2		実施例2		比較例2		
SL (mm/min)	CL/SL	1.00	1.15	1.30	1.45	1.60	1.75	1.90
125	落下状態	×	△	○	○	△	△	×
	Δh (mm)	190	180	120	110	165	150	150
250	落下状態	△	△	○	○	△	△	×
	Δh (mm)	175	160	120	100	110	120	115
375	落下状態	△	△	○	○	△	△	×
	Δh (mm)	180	165	100	110	110	115	120

[0051] なお、本発明は、上記実施形態に限定されるものではない。上記実施形態は例示であり、本発明の特許請求の範囲に記載された技術的思想と実質的に同一な構成を有し、同様な作用効果を奏するものは、いかなるものであっても本発明の技術的範囲に包含される。

請求の範囲

[請求項1] 石英ルツボ内に原料を充填する工程と、前記石英ルツボ内で前記原料を溶融して融液とする工程と、該融液から単結晶を引き上げる工程とを有する単結晶の製造における、前記石英ルツボ内に原料を充填する工程において、前記原料を収容する石英製の円筒部材と、該円筒部材の下端の開口部を開閉するための円錐バルブとを有するリチャージ管に前記原料を収容し、該原料を収容したリチャージ管をチャンバー内にセットし、前記円錐バルブを下降させて前記円筒部材の下端の開口部を開けることで前記石英ルツボ内に前記リチャージ管内に収容した原料を投入する原料充填方法であって、

前記原料の投入開始時に前記リチャージ管の下端と前記石英ルツボ内の原料又は融液との距離が200mm以上、250mm以下となるように、前記リチャージ管及び前記石英ルツボを配置し、その後、前記石英ルツボの下降速度（CL）と前記リチャージ管の円錐バルブの下降速度（SL）の比（CL／SL）が1.3以上、1.45以下となるように、前記石英ルツボと前記リチャージ管の円錐バルブとを同時に下降させながら前記原料を投入することを特徴とする原料充填方法。

[請求項2] 前記リチャージ管の円錐バルブの下降速度（SL）を250mm／min以上、375mm／min以下とすることを特徴とする請求項1に記載の原料充填方法。

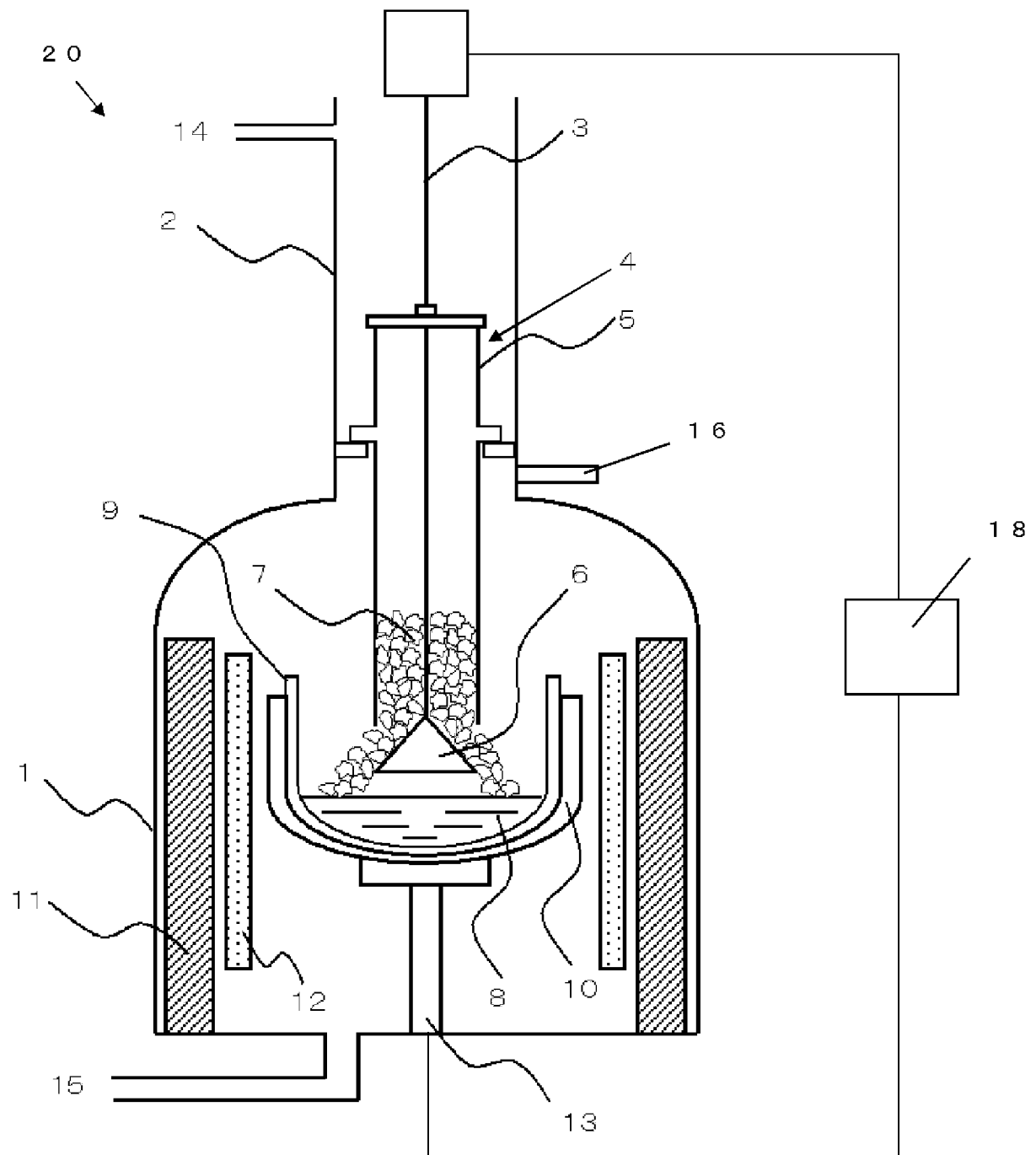
[請求項3] 前記石英ルツボ内に原料を充填する工程と、前記石英ルツボ内で前記原料を溶融して融液とする工程と、該融液から単結晶を引き上げる工程とを繰り返し、同一の石英ルツボを用いて複数の単結晶を製造する方法であって、

前記原料を充填する工程において、請求項1又は請求項2に記載の原料充填方法により前記原料を充填することを特徴とする単結晶の製造方法。

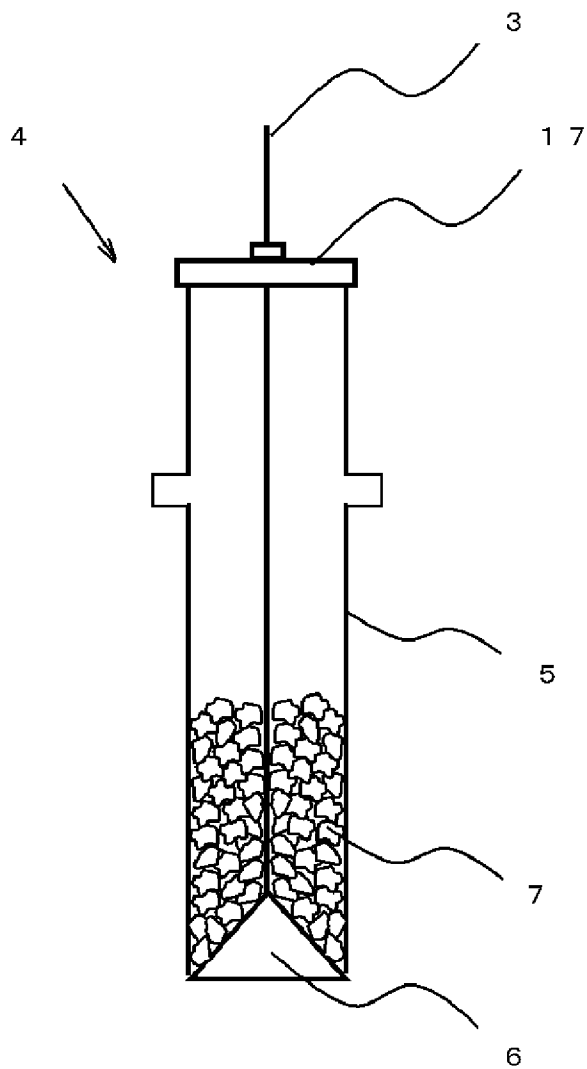
[請求項4] 原料を収容する石英ルツボと、該原料を溶融して融液にするヒータを格納するチャンバーと、該チャンバー内にセットされ、前記原料を収容する石英製の円筒部材と、該円筒部材の下端の開口部を開閉するための円錐バルブとを有するリチャージ管とを具備する単結晶製造装置であって、

請求項1又は請求項2に記載の原料充填方法における前記石英ルツボ内に原料を充填する工程において、前記原料の投入開始時の前記リチャージ管及び前記石英ルツボの配置と、前記原料の投入中の前記石英ルツボと前記リチャージ管の円錐バルブの下降を自動で制御する制御装置を更に具備するものであることを特徴とする単結晶製造装置。

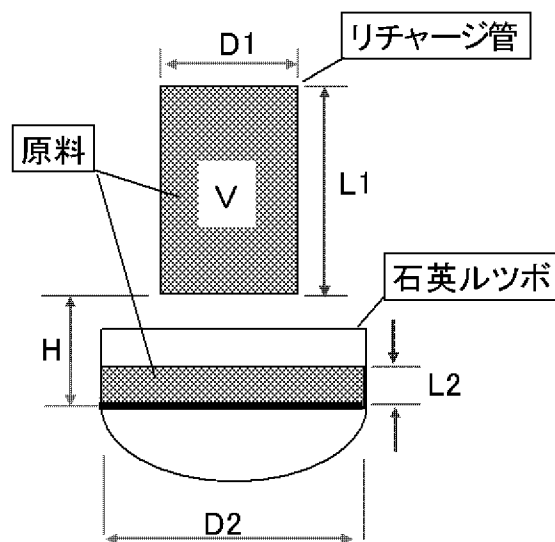
[図1]



[図2]



[図3]



D1:リチャージ管内径[mm]

L1:リチャージ管長さ[mm]

V:原料容積[m³]

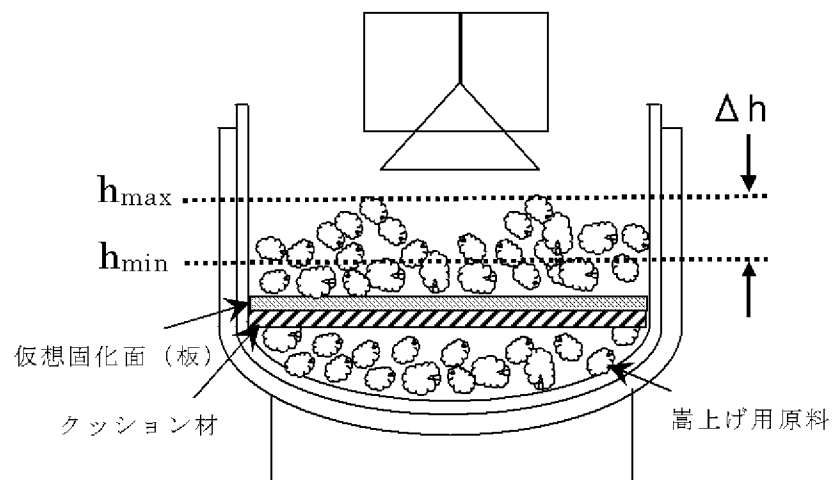
D2:石英ルツボ内径[mm]

L2:投入後の原料の推定高さ[mm]

H:リチャージ管—融液間距離[mm]

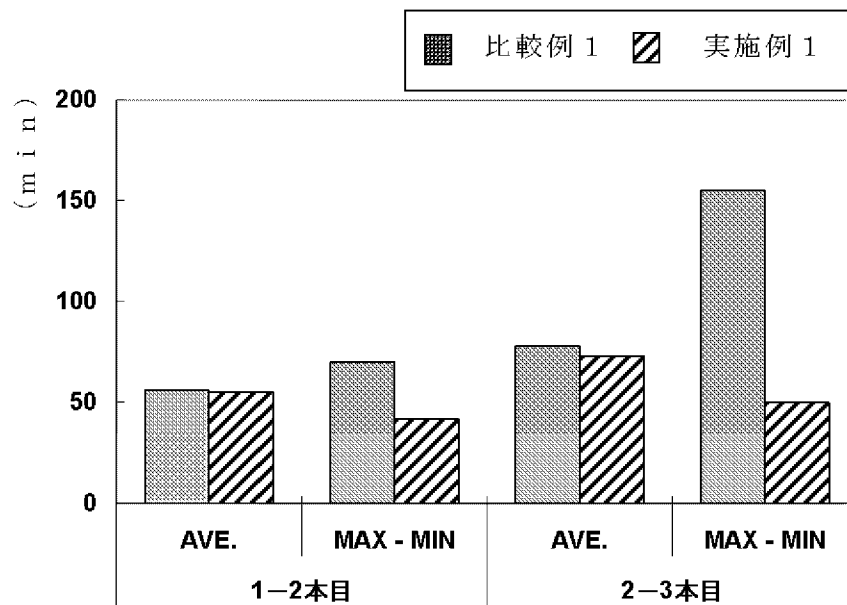
$H = k \times L2$

[図4]



[図5]

(A)



(B)

リチャージ投入本数 CP (mm)		リチャージ投入本数		
		1本目	2本目	3本目
比較例 1	AVE	258	374	437
	MAX - MIN	171	190	183
実施例 1	AVE	190	287	349
	MAX - MIN	14	44	54

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/006344

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C30B15/02(2006.01) i, C30B29/06(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)

C30B15/02, C30B29/06

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.
X A	JP 2008-285351 A (SUMCO Corp.), 27 November 2008 (27.11.2008), claims 1 to 6; Best Mode for carrying out the Invention; drawings (Family: none)	4 1-3
A	JP 2010-83685 A (Kyocera Corp.), 15 April 2010 (15.04.2010), claims 1 to 6; paragraph [0009]; Mode for carrying out the Invention; drawings (Family: none)	1-4
A	JP 2005-1977 A (Sumitomo Mitsubishi Silicon Corp.), 06 January 2005 (06.01.2005), claims 1 to 9; examples; drawings & US 2004/0226504 A1	1-4

☒ 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
10 January, 2014 (10.01.14)

Date of mailing of the international search report
21 January, 2014 (21.01.14)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/006344

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 2008-63205 A (Covalent Materials Corp.), 21 March 2008 (21.03.2008), claims 1 to 6; examples; drawings (Family: none)	1-4

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C30B15/02 (2006.01) i, C30B29/06 (2006.01) i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（I P C））

Int.Cl. C30B15/02, C30B29/06

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 4 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 4 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 4 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
X A	JP 2008-285351 A（株式会社 S U M C O）2008. 11. 27, 請求項 1-6、 発明を実施するための最良の形態の項及び図面（ファミリーなし）	4 1-3
A	JP 2010-83685 A（京セラ株式会社）2010. 04. 15, 請求項 1-6、【0009】、 発明を実施するための形態の項及び図面（ファミリーなし）	1-4
A	JP 2005-1977 A（三菱住友シリコン株式会社）2005. 01. 06, 請求項 1-9、実施例及び図面 & US 2004/0226504 A1	1-4

☒ 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

1 0 . 0 1 . 2 0 1 4

国際調査報告の発送日

2 1 . 0 1 . 2 0 1 4

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁（I S A / J P）

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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）

植前 充司

4 G

9 4 4 5

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 1 6

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 2008-63205 A (コバレントマテリアル株式会社) 2008. 03. 21, 請求項 1-6、実施例及び図面 (ファミリーなし)	1-4