

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第6015397号
(P6015397)

(45) 発行日 平成28年10月26日 (2016.10.26)

(24) 登録日 平成28年10月7日 (2016.10.7)

(51) Int. Cl.	F 1
C 3 O B 29/36 (2006.01)	C 3 O B 29/36 A
C 3 O B 23/02 (2006.01)	C 3 O B 23/02

請求項の数 4 (全 13 頁)

(21) 出願番号	特願2012-265156 (P2012-265156)	(73) 特許権者	000006655
(22) 出願日	平成24年12月4日 (2012.12.4)		新日鐵住金株式会社
(65) 公開番号	特開2014-108915 (P2014-108915A)		東京都千代田区丸の内二丁目6番1号
(43) 公開日	平成26年6月12日 (2014.6.12)	(74) 代理人	100132230
審査請求日	平成27年8月5日 (2015.8.5)		弁理士 佐々木 一也
		(74) 代理人	100082739
			弁理士 成瀬 勝夫
		(74) 代理人	100087343
			弁理士 中村 智廣
		(72) 発明者	柘植 弘志
			東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 新
			日鐵住金株式会社内
		(72) 発明者	藤本 辰雄
			東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 新
			日鐵住金株式会社内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 炭化珪素単結晶の製造方法及びその製造装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

炭化珪素単結晶インゴットを製造する反応容器である黒鉛坩堝を高周波誘導加熱して昇華再結晶法により炭化珪素単結晶を成長させる方法において、結晶成長中に1回以上高周波誘導加熱電流の周波数を変化させることを特徴とする炭化珪素単結晶の製造方法。

【請求項 2】

高周波誘導加熱電流の周波数から求められる黒鉛坩堝の表皮厚さDが誘電加熱する黒鉛坩堝の側壁部の最も薄い部分の厚さTの0.5倍以上4倍以下の範囲で1回以上周波数を変化させて高周波誘導加熱を行うことを特徴とする請求項1記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

【請求項 3】

前記結晶成長中に周波数を低い方向に変化させることを特徴とする請求項1又は2記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

【請求項 4】

炭化珪素単結晶インゴットを製造する反応容器である黒鉛坩堝を高周波誘導加熱して結晶成長を行う昇華再結晶法用の炭化珪素単結晶製造装置において、高周波誘導加熱コイルに接続させる電源が半導体スイッチを有して、高周波誘導加熱電流の周波数を連続的に変化させることができることを特徴とする炭化珪素単結晶製造装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

この発明は、電子材料の基板に利用される炭化珪素単結晶基板を作製するのに好適な炭化珪素単結晶の製造方法及びその製造装置に関する。

【背景技術】

【0002】

高熱伝導率を持ち、バンドギャップの大きい炭化珪素単結晶は、高温で用いられる電子材料や、高耐圧の求められる電子材料の基板として有用な材料である。

【0003】

炭化珪素単結晶の作製法の一つに昇華再結晶法(レーリー法)がある。昇華再結晶法は、高温部において2000℃を超える高温で炭化珪素粉末を昇華させ、その昇華ガスを低温部において再結晶化させることにより、炭化珪素結晶を製造する方法である。また、炭化珪素単結晶からなる種結晶を用いて、昇華再結晶法により炭化珪素単結晶を製造する方法は、特に改良レーリー法と呼ばれ(非特許文献1参照)、バルク状の炭化珪素単結晶の製造に利用されている。この改良レーリー法では、種結晶を用いているために結晶の核形成過程を制御することができ、また、不活性ガスによる雰囲気圧力を10Pa～15kPa程度に制御することにより、結晶の成長速度等を再現性良くコントロールすることができる。一般に、原料と結晶の温度差を適切に制御して、炭化珪素単結晶の成長が行われている。そして、得られた炭化珪素単結晶については、基板としての規格の形状にするために、研削、切断、研磨といった加工が施され、電子材料の基板として利用されている。

図1を用いて、改良レーリー法の原理を説明する。

【0004】

原料2となる炭化珪素結晶粉末〔通常、アチソン(Acheson)法で作製された炭化珪素結晶粉末を洗浄・前処理したものが使用される。〕と種結晶3となる炭化珪素単結晶が、黒鉛坩堝1の中に収納される。黒鉛坩堝1内では、前記炭化珪素原料粉末の原料2は黒鉛坩堝1の容器部内に収容され、また、前記炭化珪素単結晶の種結晶3は黒鉛坩堝1の蓋部に支持(装着)される。アルゴン等の不活性ガス雰囲気中(10Pa～15kPa)で原料2を昇華させるために、原料2は2400℃以上に加熱される。この際、黒鉛坩堝1内には、原料2側に比べて種結晶3側がやや低温になるように、温度勾配が設定される。原料2は、加熱されて昇華した後、濃度勾配(温度勾配により形成される)により種結晶3方向へ拡散し、輸送される。単結晶成長は、種結晶3に到着した原料ガスがこの種結晶3上で再結晶化し、単結晶4となることにより実現される。

【0005】

また、黒鉛坩堝を加熱する方法としては、高周波誘導加熱を用いて黒鉛坩堝を発熱させて黒鉛坩堝を加熱し、前記のような温度勾配を形成する方法が一般に用いられている。

【0006】

ところで、炭化珪素単結晶基板の口径は電子デバイスを作製するための基板として用いる際に大口径化が求められている。前記のように結晶成長を行う際に、原料を黒鉛坩堝の中に装填して加熱する方法を用いているため、原料を結晶成長の途中で追加することが困難である。そこで、大口径かつ長尺の炭化珪素単結晶インゴットを作製するためには、小口径の結晶成長に比べて原料部分に原料粉末を多量に装填する必要がある。原料の量を増大させるためには、原料装填部の深さを深くすること、又は黒鉛坩堝1の径を大きくすること、によって行うことができる。このようにして装填した原料を結晶成長に利用するために昇華させることが必要である。

【0007】

一般に、高周波誘導加熱では誘導される高周波電流が高周波の浸透深さに依存しているため、黒鉛坩堝の形状によって規定された発熱分布を持ち、黒鉛坩堝側面の表面近傍で強い発熱が生じる。この熱は熱伝導もしくは熱輻射により原料部分に伝達され、原料部分が加熱される。原料内部の高温部から昇華ガスが発生し、結晶成長が生じる。しかし、原料内部に温度分布があるために、原料内部の高温部で昇華した原料ガスの一部は原料内部の低温部で再結晶を起こし、結晶成長に寄与しない。この低温部の温度を高温化しその部分

にある原料を昇華させるためには、誘導電流の電流値を大きくして黒鉛坩堝側壁部分の温度をより高温にする必要がある。一方、黒鉛坩堝側壁部分の温度が高温になると、結晶成長している種結晶部分の温度も高温になり、温度勾配に基づいた結晶成長の駆動力が小さくなり、結晶成長が途中で止まるという問題がある。

【0008】

そこで、原料内部の温度分布を変化させるために、結晶成長中に高周波誘導加熱コイルと黒鉛坩堝の相対的な位置を制御することで原料の供給を途絶させない方法が開示されている（特許文献1参照）。この方法では、コイルと黒鉛坩堝の相対位置を変化させることで、原料装填部の深さ方向に関しての発熱分布を変化させることで、原料を昇華させる。

【0009】

上述したように、高周波誘導加熱では黒鉛坩堝側面の表面近傍で強い発熱が生じるため、大口径炭化珪素単結晶を作製するために黒鉛坩堝の径を大きくした際には、高周波誘導加熱により発熱している黒鉛坩堝側壁部分と黒鉛坩堝中心軸近傍の原料迄の距離は、小口径の結晶を成長させる場合に比べて増大し、黒鉛坩堝中心軸近傍の原料を効率良く加熱することが難しい。中心軸近傍の原料を昇華温度に加熱するためには小口径の場合に比べて、黒鉛坩堝側壁部分の温度をより高温にする必要があり、黒鉛坩堝側壁部分の温度を高温にすると、結晶成長している部分の温度も高温になり、温度勾配に基づいた結晶成長の駆動力が小さくなり結晶成長が途中で止まるという問題が、大口径の炭化珪素単結晶成長の際には、より顕著となる。このように、大口径化のために黒鉛坩堝口径を増大させた場合には、中心軸近傍の原料を効率的に加熱する方法及び装置が無いという問題がある。

【0010】

このため、大口径で、かつ長尺の結晶を得るために、黒鉛坩堝の口径を増大させ、その原料装填部の口径が大きくなった場合、装填した原料を効率良く昇華させて、結晶成長に利用することは困難であるという問題があった。なお、昇華法における炭化珪素（SiC）単結晶の製造において、種基板領域とSiC粉末原料領域とそれらの中間領域とにそれぞれ誘導加熱コイルを配して、それぞれの温度を独立に制御できるSiC単結晶の製造装置が知られている（特許文献2参照）。このSiC単結晶製造装置では、各誘導加熱コイルの周波数を同期できるようにしているが、これは隣接する誘導加熱コイル間での相互誘導により電流が発生して安定した電流制御ができなくなるため、各電流の位相を調整するためのものである。つまり、本発明における誘導加熱周波数を変化させて坩堝内部の温度分布を制御することを狙った技術とは異なる。

【先行技術文献】

【特許文献】

【0011】

【特許文献1】特開2010-275190号公報

【特許文献2】特開2004-224666号公報

【非特許文献】

【0012】

【非特許文献1】Yu. M. Tairov and V. F. Tsvetkov, Journal of Crystal Growth, 52 (1981) pp.146

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0013】

本発明は、結晶成長中に黒鉛坩堝を加熱する高周波誘導加熱電流の周波数を変化させることにより、高周波誘導加熱のための高周波電流の浸透深さを変化させ、結晶成長装置の黒鉛坩堝における発熱分布を変化させることで、装填した原料を効率よく昇華させる製造方法及び製造装置を提供し、大口径かつ長尺の炭化珪素単結晶（インゴット）を得ることを目的とする。

【課題を解決するための手段】

【0014】

本発明者らは、高周波誘導加熱を用いた場合の黒鉛坩堝における発熱分布を変化させる方法について鋭意検討した結果、結晶成長装置における黒鉛坩堝を加熱するための高周波誘導加熱電流の周波数を適切に制御することで、高周波誘導加熱電流による発熱分布を変化させることができ、装填した原料を効率よく昇華させ、大口径かつ長尺の炭化珪素単結晶インゴットを得ることができることを見出し、本発明を完成した。即ち、本発明の要旨は次の通りである。

【0015】

〔1〕 炭化珪素単結晶インゴットを製造する反応容器である黒鉛坩堝を高周波誘導加熱して昇華再結晶法により炭化珪素単結晶を成長させる方法において、結晶成長中に1回以上高周波誘導加熱電流の周波数を変化させることを特徴とする炭化珪素単結晶の製造方法。

10

〔2〕 高周波誘導加熱電流の周波数から求められる黒鉛坩堝の表皮厚さDが誘電加熱する黒鉛坩堝の側壁部の最も薄い部分の厚さTの0.5倍以上4倍以下の範囲で1回以上周波数を変化させて高周波誘導加熱を行うことを特徴とする〔1〕記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

〔3〕 前記結晶成長中に周波数を低い方向に変化させることを特徴とする〔1〕又は〔2〕記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

〔4〕 炭化珪素単結晶インゴットを製造する反応容器である黒鉛坩堝を高周波誘導加熱して結晶成長を行う昇華再結晶法用の炭化珪素単結晶製造装置において、高周波誘導加熱コイルに接続させる電源が半導体スイッチを有して、高周波誘導加熱電流の周波数を連続的に変化させることができることを特徴とする炭化珪素単結晶製造装置。

20

【0016】

以下、モデル計算を用いて、本発明の原理を説明する。

一般に、高周波を導体に流した場合、磁場との相互作用により、電流密度は導体表面が高く、内側に入るに従って低下する。表面の電流密度の1/eの電流密度に減衰する厚さは表皮厚さと呼ばれ、次式のDで記述される。

$$D = (2 / \sigma \omega \mu)^{1/2}$$

σ : 導体の導電率

ω : 電流の角速度 = $2\pi f$ (f : 電流の周波数)

μ : 導体の透磁率

30

【0017】

つまり、高周波電流の周波数が高くなるに従って表皮厚さは薄くなり、高周波電流が表面に集中することになる。黒鉛坩堝の高周波誘導加熱を行う場合、誘導電流によりジュール熱を発生させ加熱を行っているため、電流密度の分布と発熱分布は密接な関係を持つ。そこで、高周波電流の周波数を変化させて、高周波電流の浸透深さを変えることで、被加熱物内部での電流分布を変化させることができ、この電流分布の変化に応じて黒鉛坩堝内の発熱分布を制御することができる。

【0018】

そこで、高周波誘導加熱電流を変化させた場合の黒鉛坩堝内の発熱分布の変化を図2に示すモデルを使い計算を行うことで求めた。

40

図3は図2のモデルに対して高周波誘導加熱を行った場合の黒鉛坩堝内の発熱分布の等高線図である。このうち、図3aは原料部分2に対応する黒鉛坩堝側壁部の最も薄い部分の厚さTが高周波誘導加熱電流の周波数fから求められる表皮厚さDの1/4倍の場合 ($T = (1/4) \times D$)、図3bは表皮厚さと黒鉛坩堝側壁が等しい場合 ($T = D$)、図3cは黒鉛坩堝側壁の厚さが表皮厚さの2倍 ($T = 2 \times D$) の場合について計算を行ったものである。

【0019】

図3から黒鉛坩堝側壁部の厚さが表皮厚さに比べて小さい場合には(図3a)、発熱分布は側壁部の高さ方向に関して比較的一様に発熱している。一方で、黒鉛坩堝側壁部の厚さが表皮厚さに比べて大きい場合には(図3c)、黒鉛坩堝側壁部の外側表面近傍に発熱が集

50

中し、さらには黒鉛坩堝上部の周辺部、及び下部の周辺部で強い発熱があることが分かる。このことから、高周波誘導加熱電流の周波数を変化させることで、単結晶成長装置の黒鉛坩堝における発熱分布を変えることができることが分かる。

【0020】

本発明者らは、結晶成長中に高周波誘導加熱電流の周波数を変化させ、黒鉛坩堝内の発熱分布を制御することで、装填した原料を効率よく昇華させることができ、大口径かつ長尺の炭化珪素単結晶インゴットの製造が可能な方法を見出し、本発明を完成した。

【発明の効果】

【0021】

本発明の、炭化珪素単結晶（炭化珪素単結晶インゴット）の製造方法及びその製造装置によれば、大口径かつ長尺の炭化珪素単結晶インゴットを成長させる際に、結晶化率 $[(成長した炭化珪素単結晶インゴットの重量)/(装填した原料の重量)]$ を高くすることが可能であり、装填した原料を有効に結晶成長に利用することが可能になる。また、このようにして得られた炭化珪素単結晶インゴットを加工して得られる炭化珪素単結晶基板を電子材料基板に用いれば、原料に対して歩留まりが高いため、炭化珪素単結晶基板のコストの低減を行うことができる。

【図面の簡単な説明】

【0022】

【図1】図1は、改良レーリー法の原理を説明するための説明図である。

【図2】図2は、本発明の原理を説明するために用いた計算モデルの被加熱物要部の概略を示す説明図である。

【図3a】図3aは、本発明の原理を説明するために行った、高周波誘導加熱電流を変化させた場合の被加熱物要部の発熱分布の等高線を示す図である（ $T=(1/4) \times D$ の場合）。

【図3b】図3bは、本発明の原理を説明するために行った、高周波誘導加熱電流を変化させた場合の被加熱物要部の発熱分布の等高線を示す図である（ $T=D$ の場合）。

【図3c】図3cは、本発明の原理を説明するために行った、高周波誘導加熱電流を変化させた場合の被加熱物要部の発熱分布の等高線を示す図である（ $T=2 \times D$ の場合）。

【図4】図4は、本発明の実施例に係る炭化珪素単結晶インゴットの製造方法に用いる炭化珪素単結晶インゴット製造装置全体を示す説明図である。

【発明を実施するための形態】

【0023】

以下、本発明の炭化珪素単結晶インゴットの製造装置を用いて本発明を実施するための形態を示す。

図4に基づいて、炭化珪素単結晶インゴットの製造装置の全体を説明する。この製造装置は、黒鉛製の坩堝1と、この黒鉛坩堝1を取り囲むように覆う断熱材5と、更にこれら黒鉛坩堝1及び断熱材5を収容する二重石英管9と、更にこの二重石英管9の外側に前記黒鉛坩堝1を発熱させる高周波誘導加熱用のためのワークコイル8が設置されている。このうち、黒鉛坩堝1には、炭化珪素結晶粉末からなる原料2が収容されている。また、前記黒鉛坩堝1の内部上方〔蓋部（黒鉛坩堝蓋）1a〕には、炭化珪素単結晶からなる種結晶3が取り付けられている。更に、前記ワークコイル8に高周波電流を流すための高周波電源6が取り付けられている。従来は、電源を構成するコイル等によって決められる共振周波数を持つ高周波で加熱を行うため、周波数を変化させることは難しかった。しかし、電源技術の進歩に伴い、例えば、特許文献2に開示されたように、半導体スイッチを電源に組み込むことで、高周波誘導加熱電流の周波数を制御できる電源が開発されている。本発明では電源6として電流を流しながら周波数を変化させることが可能な機構を用いた電源を用いている。

【0024】

この製造装置において、二重石英管9内部は、真空排気装置10により高真空排気（ 10^{-3} Pa以下）することができ、かつArガス配管11とArガス用マスフローコントローラ12を

10

20

30

40

50

用いて、内部雰囲気をArガスにより圧力制御することができるようになっている。そして、黒鉛坩堝1の温度の計測は、黒鉛坩堝1上下部を覆う黒鉛製の断熱材5の中央部にそれぞれ光路を設け、黒鉛坩堝1の上部（蓋部1a）及び下部（底部1c）からの光を取り出して、二色温度計を用いて行い、黒鉛坩堝下部（底部1c）の温度を原料温度とし、黒鉛坩堝上部（蓋部1a）の温度から種結晶の温度を判断する。

【0025】

結晶成長は、前記製造装置において、黒鉛坩堝1を高周波誘導加熱を用いて加熱し、原料2及び種結晶3を所望の温度に加熱する。原料2を昇華させ、種結晶3として用いた炭化珪素単結晶上で再結晶化させることにより行われる。

【0026】

本発明では、結晶成長中に少なくとも1回以上高周波誘導加熱電流の周波数を変化させ、好適には周波数を連続的に変化させることで、発熱体である黒鉛坩堝内部での発熱分布を結晶成長に伴い変化させて、大口径かつ長尺の結晶の成長が可能であることを見出した。

【0027】

誘導加熱電流の周波数を非連続的に変化させた場合には、急激な発熱分布の変化が発生するために、黒鉛坩堝内部の温度分布が短時間で変化し成長速度等の急激な変化が生じる場合がある。例えば、高周波誘導加熱電流の周波数を20%変化させた場合の表皮厚さの変化は10%程度である。1時間で表皮深さが10%程度変化する場合には、発熱分布の変化に黒鉛坩堝内部の温度分布は十分に追従することができ、温度分布の変化は時間に対して連続的であると考えられる。そこで、周波数を連続的に、すなわち20%/時間より小さい変化率で変化させることで、急激な発熱分布の変化を避けた加熱が行え、良質の結晶成長が得られる点で好ましい。

【0028】

先の図3に示した模式図では、結晶成長容器である黒鉛坩堝1を軸対称な円筒状の形状で示しているが、良好な結晶成長に必要な温度分布を得るために、黒鉛坩堝の形状は円筒形状以外の形状をとることを本発明は妨げない。また、黒鉛坩堝の側壁部(1b)の厚さが一様でない場合も、高周波誘導加熱電流の周波数を変化させることにより、高周波電流の浸透深さが変化し、発熱分布の変化を引き起こすことができることから、本発明に含まれる。

【0029】

装填した原料2を効率良く加熱するために、高周波誘導加熱電流の周波数を結晶成長中に変化させると同時に、黒鉛坩堝1を上下方向に移動して黒鉛坩堝内部の温度分布を最適化することも有効であり、ワークコイル8と黒鉛坩堝1との相対位置を結晶成長中に変化させることを本発明は妨げない。結晶成長中に黒鉛坩堝1をコイル8に対して相対的に移動させる場合には、原料部分に装填した原料2の上部から下部まで全体にわたって昇華させるために、その移動距離は装填した原料の高さ程度が望ましい。さらに、装填した原料を制御性良く昇華させるためには原料2の上面から下面へと昇華位置を移動させることが望ましく、黒鉛坩堝1をコイル8に対して上方へ移動させることも有効である。

【0030】

図3で調べたように、黒鉛坩堝の側壁部の厚さを変化させることで誘導加熱による高周波電流の浸透深さを変化させ、発熱分布を変化させることが可能である。本発明者らは、黒鉛坩堝における側壁部の最も薄い部分の厚さ(T)と周波数を変化させた場合の表皮厚さ(D)の関係を調べ、TがDの1/4より小さい場合、もしくはTがDの2倍超の場合には、周波数を変化させたことによる発熱分布に大きな変化が見られないことを見出し、

$$(1/4) \times D \leq T \leq 2 \times D$$

を満たすようなT及びDを用いることが望ましいことを見出した。

【0031】

一般に、高周波誘導加熱の場合には黒鉛坩堝側面から加熱を行うため、黒鉛坩堝の側壁部に近い部分の温度が高温となる。このため、黒鉛坩堝1に装填した炭化珪素粉末原料も黒鉛坩堝の側壁部に近い部分から昇華が始まり、黒鉛坩堝中心軸に近い部分の原料を黒鉛

10

20

30

40

50

坩堝の側壁部から昇華に必要な温度まで加熱することが難しい。本発明者らは、図3cでは黒鉛坩堝における側壁部の上方部分と下方部分とで強い発熱分布を持つが、図3aでは黒鉛坩堝の側壁部で一様な発熱分布を持ち、さらに表皮深さが大きいために、黒鉛坩堝下部(1c)においても発熱が見られることを見出した。原料の昇華が進み、黒鉛坩堝の側壁部に近い原料が昇華した後に、黒鉛坩堝下部(1c)を加熱するように高周波電流の周波数を調整すること、すなわち、表皮厚さが厚くなるように高周波誘導加熱電流の周波数を低下させることで、結晶成長の後期に黒鉛坩堝1に装填した原料をより効率良く加熱できる。この効果を用いるためには、DがTの0.5倍以上4倍以下である範囲の中で結晶成長中に周波数を連続的に減少させて高周波誘導加熱を行うことが有効であることを見出した。

【0032】

すなわち、本発明においては、黒鉛坩堝の側壁部のうち、最も厚みが薄い部分での厚さをTとした場合に、高周波誘導加熱電流の周波数から求められる黒鉛坩堝の側壁部での表皮厚さDが下記関係式を満たすようにしながら、結晶成長中に高周波誘導加熱電流の周波数を連続的に増加又は減少させて炭化珪素単結晶を得るようにするのが好ましい。

$$(1/4) \times D \leq T \leq 2 \times D$$

ここで、 $D = (2 / \sigma \omega \mu)^{1/2}$ であり、略号の意味は次のとおりである。

σ ：黒鉛坩堝の導電率

ω ：電流の角速度 $=2\pi f$ (f：電流の周波数)

μ ：黒鉛坩堝の透磁率

【0033】

本発明に係る炭化珪素単結晶インゴットの製造方法を用いて単結晶インゴットを作製することにより、インゴット口径が75mm以上200mm以下でかつ、中心部高さ25mm以上200mm以下のインゴットを再現性良く生産することが可能となる。この方法を用いて作成した25mm以上200mm以下のインゴットから研削、切断、研磨により作製される炭化珪素単結晶基板は、電子材料用基板として有用である。

【0034】

従来、炭化珪素単結晶製造用の高周波誘導加熱装置では、電源を構成するコイル等によって決められる共振周波数を持つ高周波で加熱を行うため、高周波誘導加熱電流の周波数を固定し、電流値しか変えられなかった。したがって、坩堝部分での発熱分布は電流値を変える程度の変化しか行えなかった。本発明は、炭化珪素単結晶インゴットを製造する反応容器である黒鉛坩堝を高周波誘導加熱する際に、高周波誘導加熱電流の周波数を変化させる機能を有する装置とし、坩堝部分の深さ方向の発熱分布を制御できることが特徴である。高周波誘導電流の周波数を変化させる機構としては、例えば、電源に半導体スイッチを組み込む技術を用いることで、高周波誘導加熱電流の周波数を制御し、誘導電流の表皮深さが変化することを利用して、坩堝における発熱分布の制御変数を増大させることができ、発熱分布の制御性を向上させることができ、有用である。

【実施例】

【0035】

以下に、本発明の炭化珪素単結晶インゴットの製造装置を用いて、単結晶インゴットを作製する場合の実施例について説明する。

【0036】

先ず、図4に基づいて、以下の実施例で用いる炭化珪素単結晶インゴットの製造装置の全体を簡単に説明する。この製造装置は、黒鉛製の坩堝1と、この黒鉛坩堝1を取り囲むように覆う断熱材5と、更にこれら黒鉛坩堝1及び断熱材5を収容する二重石英管9と、更にこの二重石英管9の外側に前記黒鉛坩堝1を発熱させる高周波誘導加熱用のためのワークコイル8が設置されている。このうち、黒鉛坩堝1には、炭化珪素結晶粉末からなる原料2が収容されている。また、前記黒鉛坩堝1の内部上方〔蓋部(黒鉛坩堝蓋)1a〕には、炭化珪素単結晶からなる種結晶3が取り付けられている。そして、前記ワークコイル8に高周波電流を流すことにより、黒鉛坩堝1を加熱し、原料2及び種結晶3を所望の温度に加熱する。

10

20

30

40

50

【0037】

この製造装置において、二重石英管9内部は、真空排気装置10により高真空排気 (10^{-3} Pa以下) することができ、かつArガス配管11とArガス用マスフローコントローラ12を用いて、内部雰囲気はArガスにより圧力制御することができるようになっている。そして、黒鉛坩堝1の温度の計測は、黒鉛坩堝1上下部を覆う黒鉛製の断熱材5の中央部にそれぞれ光路を設け、黒鉛坩堝1の上部及び下部からの光を取り出して、二色温度計を用いて行い、黒鉛坩堝下部(底部1c)の温度を原料温度とし、黒鉛坩堝上部(蓋部1a)の温度から種結晶の温度を判断する。

【0038】

結晶成長は、前記製造装置において、原料2を昇華させ、種結晶3として用いた炭化珪素単結晶上で再結晶化させることにより行われ、その手順は以下の通りである。

まず、種結晶3が取り付けられ、また、原料2を収容した黒鉛坩堝1が、二重石英管9の内部において、黒鉛坩堝支持部材8の上に設置される。この黒鉛坩堝1の周囲には、熱シールドのための断熱材5が設置され、その一部が断熱材支持部8の上に設置される。

【0039】

次に、このようにして黒鉛坩堝1及び断熱材5が配置された後に、二重石英管9の内部を真空排気し、ワークコイル8に所定の周波数を持つ高周波電流を流し、原料温度を2000℃まで上昇させる。その後、雰囲気ガスとしてArガスを流入させ、二重石英管9内の圧力を約80kPaに保ちながら、原料温度を目標温度である2400℃まで上昇させ、その後、30分かけて成長圧力である1.3kPaまで減圧する。その後、結晶成長に要する所定時間の間、原料温度を目標温度に保持すると同時に、高周波誘導加熱電流の周波数を所定の値に連続的に変化させる制御を行いながら、単結晶の成長を行う。結晶成長後、6時間かけてワークコイル8に流す電流の値を徐々に0までにし、単結晶インゴットの製造を終了する。

【0040】

[実施例1]

実施例1においては、図4に示す製造装置において、黒鉛坩堝1の容器部内にアチソン法により作製された炭化珪素結晶粉末からなる原料2を3.5kg装填した。また、黒鉛坩堝1の蓋部1aには、種結晶3として、口径105mmの(0001)面を有する4Hポリタイプの炭化珪素単結晶ウェハを配置した。

【0041】

このようにして準備された黒鉛坩堝1、及び断熱材5を前述のように二重石英管9の内部に設置し、前記手順で炭化珪素単結晶の結晶成長を行った。黒鉛坩堝側面部の最も薄い部分の厚さをTとし、高周波誘導加熱電流の周波数から求められる表皮厚さをDとして、 $D = 1/2 \times T$ を満たす45kHzの周波数を用いて、原料温度を目標温度である2400℃まで上昇させた後に、二重石英管9内のArの圧力を成長圧力1.3kPaまで30分かけて減圧し、成長を開始した。

【0042】

高周波誘導加熱電流の電流値を調整して原料温度を目標温度に制御しながら、高周波誘導加熱電流の周波数を、 $D = 2 \times T$ を満たす11kHzの周波数まで80時間かけて変化させて結晶成長を行った。

【0043】

その結果、成長速度は約0.5mm/時であって、結晶の口径が105mm程度であり、かつ、高さが60mm程度の単結晶インゴットが得られた。黒鉛坩堝内の原料の残渣を観察したところ、中心軸近傍の原料の昇華が観察され、高周波誘導加熱の周波数を変化させたことにより中心軸近傍の原料の加熱が行えていた。また、得られた単結晶インゴットの重量は1.7kg程度であり、結晶化率は49%であった。

【0044】

得られた炭化珪素単結晶インゴットについて、X線回折及びラマン散乱により分析したところ、4Hの単一ポリタイプからなるインゴットであり、また、マイクロパイプ等の結

10

20

30

40

50

晶欠陥が少ない極めて高品質であることが確認された。

このインゴットから切り出された炭化珪素単結晶基板は、電子デバイスを作製するための基板として有用である。

【0045】

[実施例2]

実施例2においては、図4に示す製造装置において、黒鉛坩堝1の容器部内にアチソン法により作製された炭化珪素結晶粉末からなる原料2を7kg装填した。また、黒鉛坩堝1の蓋部1aには、種結晶3として、口径155mmの(0001)面を有する4Hポリタイプの炭化珪素単結晶ウェハを配置した。

【0046】

このようにして準備された黒鉛坩堝1、及び断熱材5を前述のように二重石英管9の内部に設置し、前記手順で炭化珪素単結晶の結晶成長を行った。黒鉛坩堝側面部の最も薄い部分の厚さをTとし、高周波誘導加熱電流の周波数から求められる表皮厚さをDとして、 $D = 4 \times T$ を満たす1.5kHz周波数を用いて、原料温度を目標温度である2400℃まで上昇させた後に、二重石英管9内のArの圧力を成長圧力1.3kPaまで30分かけて減圧し、成長を開始した。

【0047】

高周波誘導加熱電流の電流値を調整して原料温度を目標温度に制御しながら、高周波誘導加熱電流の周波数を、 $D = 2 \times T$ を満たす6.5kHzの周波数まで120時間かけて変化させて結晶成長を行った。

【0048】

その結果、成長速度は約0.5mm/時であって、結晶の口径が155mm程度であり、かつ、高さが60mm程度の単結晶インゴットが得られた。黒鉛坩堝内の原料の残渣を観察したところ、中心軸近傍の原料の昇華が観察され、高周波誘導加熱の周波数を変化させたことにより中心軸近傍の原料の加熱が行えていた。また、得られた単結晶インゴットの重量は3.7kgであり、結晶化率は53%であった。

【0049】

得られた炭化珪素単結晶インゴットについて、X線回折及びラマン散乱により分析したところ、4Hの単一ポリタイプからなるインゴットであり、また、マイクロパイプ等の結晶欠陥が少ない高品質であることが確認された。

このインゴットから切り出された炭化珪素単結晶基板は、電子デバイスを作製するための基板として有用である。

[実施例3]

【0050】

実施例2においては、図4に示す製造装置において、黒鉛坩堝1の容器部内にアチソン法により作製された炭化珪素結晶粉末からなる原料2を15kg装填した。この時、原料の装填深さは120mmであった。また、黒鉛坩堝1の蓋部には、種結晶3として、口径105mmの(0001)面を有する4Hポリタイプの炭化珪素単結晶ウェハを配置した。

【0051】

このようにして準備された黒鉛坩堝1、及び断熱材5を前述のように二重石英管9の内部に設置し、前記手順で炭化珪素単結晶の結晶成長を行った。黒鉛坩堝側面部の最も薄い部分の厚さをTとし、高周波誘導加熱電流の周波数から求められる表皮厚さをDとして、 $D = 2 \times T$ を満たす1.6kHz周波数を用いて、原料温度を目標温度である2400℃まで上昇させた後に、二重石英管9内のArの圧力を成長圧力1.3kPaまで30分かけて減圧し、成長を開始した。

【0052】

高周波誘導加熱電流の電流値を調整して原料温度を目標温度に制御しながら、高周波誘導加熱電流の周波数を、 $D = 3/4 \times T$ を満たす11kHz周波数まで240時間かけて変化させて結晶成長を行った。この時同時に、コイルに対して黒鉛坩堝を240時間かけて120mm上方に0.5mm/hの速度で移動させながら、結晶成長させた。

【0053】

その結果、成長速度は約0.5mm/時であって、結晶の口径が155mm程度であり、かつ、高さが100mm程度の単結晶インゴットが得られた。黒鉛坩堝内の原料の残渣を観察したところ、中心軸近傍の原料の昇華が観察され、高周波誘導加熱の周波数を変化させたことにより中心軸近傍の原料の加熱が行えていた。単結晶インゴットの重量は8.7kg程度であり、結晶化率は58%と高い値を示した。

【0054】

得られた炭化珪素単結晶インゴットについて、X線回折及びラマン散乱により分析したところ、4Hの単一ポリタイプからなるインゴットであり、また、マイクロパイプ等の結晶欠陥が少ない高品質であることが確認された。

10

このインゴットから切り出された炭化珪素単結晶基板は、電子デバイスを作製するための基板として有用であった。

【0055】

[比較例1]

実施例1と比較するために、減圧開始して結晶成長を開始してから、結晶成長が終了する80時間後まで、高周波誘導加熱電流の周波数を変化させずに一定の周波数で加熱を行うこと以外は、前記実施例1と同様にして、炭化珪素単結晶インゴットの製造を行った。

【0056】

その結果、結晶の口径が105mm程度であり、かつ、高さが20mm程度のインゴットが得られた。黒鉛坩堝内の原料の残渣を観察したところ、中心軸近傍で原料の再結晶が観察された。中心軸近傍の原料が有効に加熱されないため、原料の周辺部で昇華した原料ガスが結晶成長に利用されずに、原料の中心軸近傍で再結晶したものと考えられる。この原料中心軸近傍での昇華ガスの再結晶のため、結晶成長の途中で原料ガスの供給が途絶え、成長した結晶の成長面が昇華し、成長面が炭化した。そのため、インゴットの結晶化率は17%と低い値であった。

20

【0057】

得られた炭化珪素単結晶インゴットはインゴット高さが低いため、電子デバイスを作製するための基板切り出す際の歩留まりが低くなるという問題があった。また、装填した原料に対してインゴットの重量が小さく、原料を有効に利用できないという問題があった。

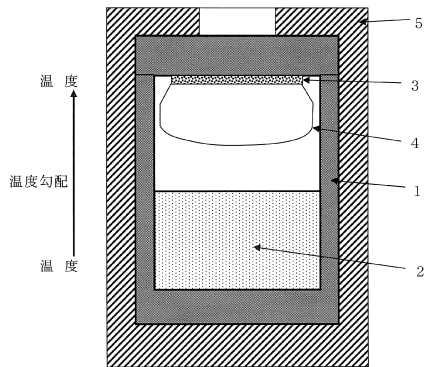
【符号の説明】

30

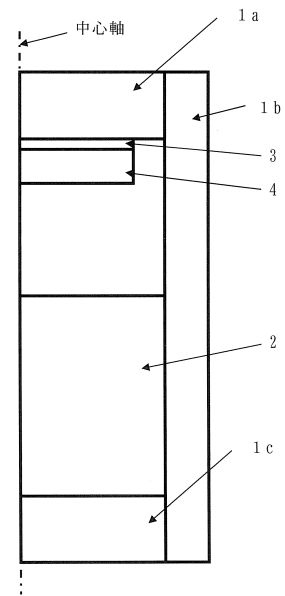
【0058】

1…黒鉛坩堝、1a…黒鉛坩堝蓋部、1b…黒鉛坩堝側壁部、1c…黒鉛坩堝底部、2…原料、3…種結晶、4…単結晶、5…断熱材、6…高周波加熱電源、7…黒鉛坩堝支持部材、7a…黒鉛坩堝支持部材昇降・回転機構、8…ワークコイル、9…二重石英管、10…真空排気装置、11…Arガス配管、12…Arガス用マスフローコントローラ。

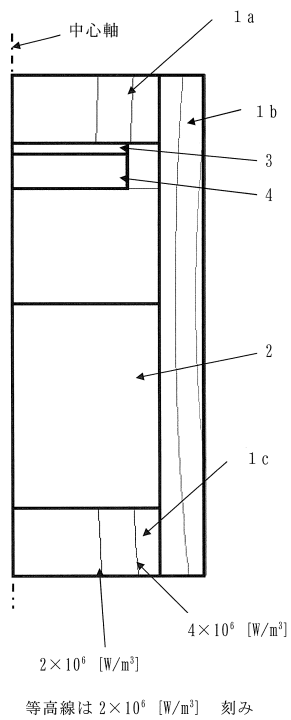
【図 1】



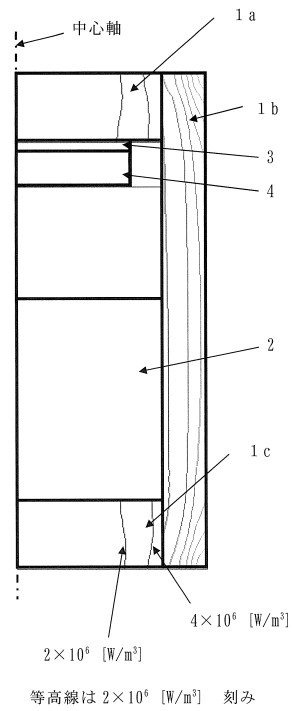
【図 2】



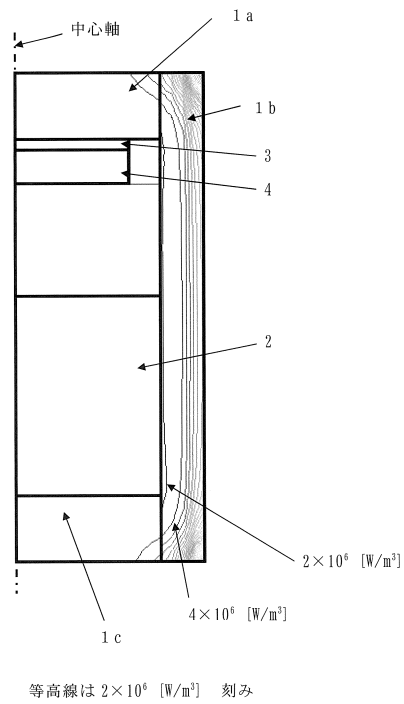
【図 3 a】



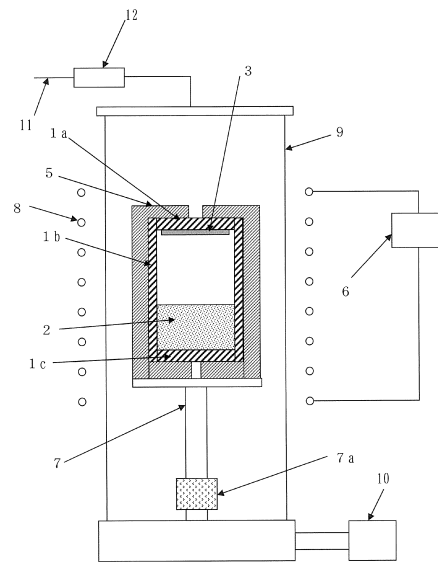
【図 3 b】



【図 3 c】



【図 4】



フロントページの続き

- (72)発明者 勝野 正和
東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 新日鐵住金株式会社内
(72)発明者 佐藤 信也
東京都千代田区丸の内二丁目6番1号 新日鐵住金株式会社内

審査官 村岡 一磨

- (56)参考文献 特開2006-096578 (JP, A)
特開2001-026495 (JP, A)

- (58)調査した分野(Int.Cl., DB名)
C30B 1/00-35/00