

(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
2015年8月6日(06.08.2015)



(10) 国際公開番号
WO 2015/115543 A1

- (51) 国際特許分類:
C30B 29/36 (2006.01) **C30B 15/14** (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2015/052520
- (22) 国際出願日: 2015年1月29日(29.01.2015)
- (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 2014-014102 2014年1月29日(29.01.2014) JP
- (71) 出願人: 京セラ株式会社(KYOCERA CORPORATION) [JP/JP]; 〒6128501 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地 Kyoto (JP).
- (72) 発明者: 堂本 千秋(DOMOTO, Chiaki); 〒6128501 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地 京セラ株式会社内 Kyoto (JP). 久芳 豊(KUBA, Yutaka); 〒6128501 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地 京セラ株式会社内 Kyoto (JP). 正木 克明(MASAKI, Katsuaki); 〒6128501 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地 京セラ株式会社内 Kyoto (JP). 林 雄一郎(HAYASHI, Yuuichiro); 〒6128501 京都府京都市伏見区竹田鳥羽殿町6番地 京セラ株式会社内 Kyoto (JP).

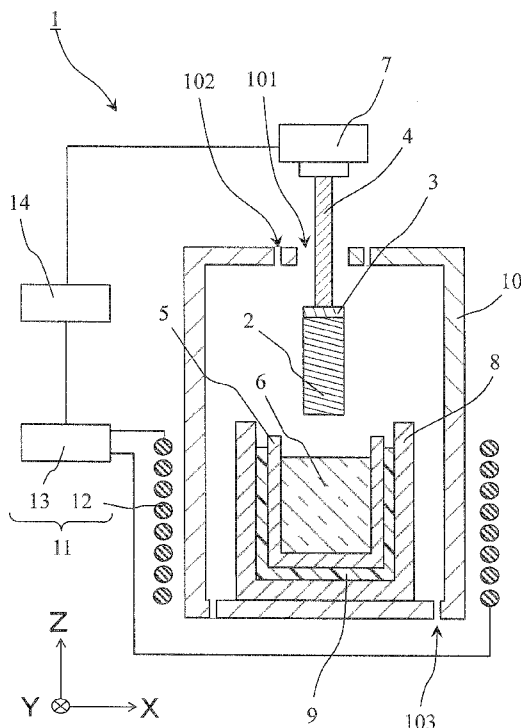
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, 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, ST, 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, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING CRYSTAL

(54) 発明の名称: 結晶の製造方法



(57) Abstract: This method for manufacturing a crystal comprises: a preparation step for preparing a solution (6) obtained by dissolving carbon in a silicon solvent, and preparing a seed crystal (3) made of silicon carbide; a contact step for bringing the lower surface of the seed crystal (3) into contact with the solution (6); a crystal growth commencement step for raising the temperature of the solution (6) to a prescribed first temperature zone (T1) within a temperature range in which the silicon solvent is in liquid form, and for commencing growth of a crystal (2) made of silicon carbide on the lower surface of the seed crystal (3); a first crystal growth step (A) for, following the crystal growth commencement step, growing the crystal (2) made of silicon carbide by raising the seed crystal (3) while lowering the temperature of the solution (6) from the first temperature zone (T1) to a prescribed second temperature zone (T2) within the temperature range in which the silicon solvent is in liquid form; a solution temperature elevating step (C) for raising the temperature of the solution (6) from the second temperature zone (T2) to the first temperature zone (T1); and a second crystal growth step (B) for, following the solution temperature elevating step, continuing to grow the crystal (2) made of silicon carbide by raising the seed crystal (3) while lowering the temperature of the solution (6) from the first temperature zone (T1) to the second temperature zone (T2).

(57) 要約:

[続葉有]



本発明の結晶の製造方法は、珪素溶媒に炭素を溶解した溶液 6 および炭化珪素の種結晶 3 を準備する準備工程と、種結晶 3 の下面を溶液 6 に接触させる接触工程と、珪素溶媒が液状である温度範囲内において溶液 6 の温度を所定の第 1 温度域 T 1 まで上げて、種結晶 3 の下面に炭化珪素の結晶 2 の成長を開始する結晶成長開始工程と、結晶成長開始工程の後に、珪素溶媒が液状である温度範囲内において溶液 6 の温度を第 1 温度域 T 1 から所定の第 2 温度域 T 2 まで下げながら、種結晶 3 を引き上げることによって炭化珪素の結晶 2 を成長させる第 1 結晶成長工程 A と、溶液 6 の温度を第 2 温度域 T 2 から第 1 温度域 T 1 まで上げる溶液昇温工程 C と、溶液昇温工程の後に、溶液 6 の温度を第 1 温度域 T 1 から第 2 温度域 T 2 まで下げながら、種結晶 3 を引き上げることによって炭化珪素の結晶 2 を引き続き成長させる第 2 結晶成長工程 B とを備える。

明 細 書

発明の名称：結晶の製造方法

技術分野

[0001] 本発明は、炭化珪素の結晶の製造方法に関する。

背景技術

[0002] 従来から、炭素（C）および珪素（Si）を含む溶液を使用した溶液法によって、炭化珪素の種結晶の下面に炭化珪素（SiC）の結晶を成長させることが知られている。例えば特開2010-184849号公報には、溶液法に使用される融液を、結晶を成長させる間に一定温度に維持することが記載されている。

[0003] このような製造方法では、炭化珪素の結晶の成長時において融液が一定温度に維持されていることから、炭化珪素の結晶の成長速度を向上させにくいという問題点があった。

[0004] 本発明は、このような問題点を克服しようとして案出されたものであり、溶液法による炭化珪素の結晶の成長速度を向上させ、炭化珪素の結晶の生産効率を向上させることを目的とする。

発明の概要

[0005] 本発明の一実施形態に係る結晶の製造方法は、炭化珪素の種結晶の下面に溶液法によって炭化珪素の結晶を成長させる結晶の製造方法であって、珪素溶媒に炭素を溶解した溶液および炭化珪素の種結晶を準備する準備工程と、前記種結晶の下面を前記溶液に接触させる接触工程と、前記珪素溶媒が液状である温度範囲内において前記溶液の温度を所定の第1温度域まで上げて、前記種結晶の下面に炭化珪素の結晶の成長を開始する結晶成長開始工程と、該結晶成長開始工程の後に、前記珪素溶媒が液状である温度範囲内において前記溶液の温度を前記第1温度域から所定の第2温度域まで下げながら、前記種結晶を引き上げることによって炭化珪素の結晶を成長させる第1結晶成長工程と、前記溶液の温度を前記第2温度域から前記第1温度域まで上げる

溶液昇温工程と、該溶液昇温工程の後に、前記溶液の温度を前記第 1 温度域から前記第 2 温度域まで下げながら、前記種結晶を引き上げることによって炭化珪素の結晶を引き続き成長させる第 2 結晶成長工程とを備える。

[0006] 本発明の一実施形態に係る結晶の製造方法によれば、第 1 結晶成長工程および第 2 結晶成長工程において、溶液の温度を下げながら結晶を成長させるため、溶液の過飽和度を大きくして結晶の成長速度を向上させることができる。したがって、結晶の生産効率を向上させることができる。

図面の簡単な説明

[0007] [図1]本発明の一実施形態に係る結晶の製造方法に使用する結晶製造装置の一例の概略を模式的に示す断面図である。

[図2]本発明の一実施形態に係る結晶の製造方法における経過時間と溶液の温度との関係の概略を示すグラフである。

発明を実施するための形態

[0008] <結晶製造装置>

以下に、本発明の一実施形態に係る結晶の製造方法に使用する結晶製造装置の一例について図 1 を参照しつつ、本実施形態を説明する。図 1 は、結晶製造装置の一例の概略を示している。なお、本発明は本実施形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において種々の変更、改良等が可能である。

[0009] 結晶製造装置 1 は、半導体部品等に使用される炭化珪素の結晶 2 を製造する装置である。結晶製造装置 1 は、種結晶 3 の下面に結晶 2 を成長させることによって結晶 2 を製造する。結晶製造装置 1 は、図 1 に示すように、主に保持部材 4 および坩堝 5 を含んでおり、保持部材 4 には種結晶 3 が固定され、坩堝 5 内には溶液 6 が収容される。結晶製造装置 1 は、種結晶 3 の下面を溶液 6 に接触させて、種結晶 3 の下面に結晶 2 を成長させる。

[0010] 結晶 2 は、製造された後に加工されて例えばウェハになり、このウェハは半導体部品製造プロセスを経て半導体部品の一部となる。結晶 2 は、種結晶 3 の下面に成長した炭化珪素の結晶の塊である。結晶 2 は、断面で見たとき

に例えば円形状または多角形状の平面形状を有する、板状または柱状に形成される。結晶2は、好ましくは炭化珪素の単結晶からなる。成長させる結晶2の直径または幅は、例えば25mm以上200mm以下に設定され、高さは、例えば30mm以上300mm以下に設定される。

[0011] 種結晶3は、結晶製造装置1で成長させる結晶2の種となる。種結晶3は、例えば円形状または多角形状の平面形状を有する平板状に形成されている。種結晶3は、結晶2と同じ材料からなる結晶である。すなわち、本実施形態では、炭化珪素の結晶2を製造するため、炭化珪素の結晶からなる種結晶3を用いる。種結晶3は、単結晶または多結晶からなる。本実施形態では、種結晶3は単結晶からなる。

[0012] 種結晶3は、保持部材4の下面に固定されている。種結晶3は、例えば炭素を含んだ接着材（図示せず）によって、保持部材4に固定されている。また、種結晶3は、保持部材4によって、上下方向に移動可能となっている。

[0013] 保持部材4は、種結晶3を保持して、溶液6に対して種結晶3の搬入出を行なう。搬入出とは、具体的には、保持部材4が、種結晶3を溶液6に接触させたり、溶液6から結晶2を遠ざけたりする機能を有することをいう。保持部材4は、図1に示すように、移動装置7の移動機構（図示せず）に固定されている。移動装置7は、移動装置7に固定されている保持部材4を、例えばモータを利用して上下方向に移動させる移動機構を有している。その結果、移動装置7によって保持部材4は上下方向に移動し、種結晶3は保持部材4の移動に伴って上下方向に移動する。

[0014] 保持部材4は、例えば柱状に形成されている。保持部材4は、例えば炭素の多結晶体または炭素を焼成した焼成体からなる。保持部材4は、保持部材4の平面形状の中心部を貫通して上下方向に伸びた軸の周囲に回転可能な状態で、移動装置7に固定されていてもよい。すなわち、保持部材4は、自転可能であってもよい。

[0015] 溶液6は、坩堝5の内部に溜められて（収容されて）おり、結晶2を成長させるために結晶2の原料を種結晶3に供給する機能を有する。溶液6は、

結晶 2 と同じ材料を含む。すなわち、結晶 2 は炭化珪素の結晶であるから、溶液 6 は炭素と珪素とを含む。本実施形態において、溶液 6 は、珪素溶媒に炭素を溶質として溶解させたものである。なお、溶液 6 は、炭素の溶解度を向上させる等の理由から、例えばネオジム（N d）、アルミニウム（A l）、タンタル（T a）、スカンジウム（S c）、クロム（C r）、ジルコニウム（Z r）、ニッケル（N i）またはイットリウム（Y）等の金属材料を添加材として 1 種類または 2 種類以上含んでもよい。

[0016] 坩堝 5 は、溶液 6 を収容するものである。また、坩堝 5 は、結晶 2 の原料を内部で融解させる容器としての機能を担っている。坩堝 5 は、炭素を含有した材料で形成されている。具体的には、坩堝 5 は、例えば黒鉛で形成されている。本実施形態では、坩堝 5 の中で珪素を融解させて、融解した珪素に坩堝 5 の一部（炭素）を溶解させることによって、溶液 6 としている。坩堝 5 は、溶液 6 を貯留するために、例えば上面に開口を有する凹状に形成されている。

[0017] 本実施形態では、炭化珪素の結晶 2 を成長させる方法として溶液法を用いている。溶液法では、溶液 6 を、種結晶 3 の下面において準安定状態（熱力学的に結晶の析出と溶出とが平衡している安定状態に極めて近い状態）に保ちつつ、種結晶 3 の温度を下げることで等によって結晶 2 の析出が溶出よりも僅かに進行する条件に制御し、種結晶 3 の下面に結晶 2 を成長させている。すなわち、溶液 6 では、珪素（溶媒）に炭素（溶質）を溶解させており、炭素の溶解度は、溶媒の温度が高くなるほど大きくなる。ここで、加熱して高温になった溶液 6 が種結晶 3 への接触で冷えると、溶解した炭素が過飽和状態となって、溶液 6 が種結晶 3 の近傍において局所的に準安定状態となる。そして、その溶液 6 が安定状態（熱力学的に平衡状態）に移行しようとして、種結晶 3 の下面に炭化珪素の結晶 2 として析出する。その結果、種結晶 3 の下面に結晶 2 が成長していく。

[0018] 坩堝 5 は、坩堝容器 8 の内部に配されている。坩堝容器 8 は、坩堝 5 を保持する機能を担っている。この坩堝容器 8 と坩堝 5 との間には、保温材 9 が

配されている。この保温材 9 は、坩堝 5 の周囲を囲んでいる。保温材 9 は、坩堝 5 からの放熱を抑制し、坩堝 5 内の温度分布を均一に近付ける。坩堝 5 は、坩堝 5 の底面の中心部を貫通して上下方向に伸びた軸の周囲に回転可能な状態で坩堝容器 8 の内部に配されていてもよい。すなわち、坩堝 5 は、自転可能であってもよい。

[0019] 坩堝容器 8 は、チャンバー 10 の内部に配されている。チャンバー 10 は、結晶 2 の成長を行なう空間と外部の雰囲気とを分離するものである。チャンバー 10 を有することによって、結晶 2 に余分な不純物が混じることを低減することができる。チャンバー 10 の内部の雰囲気中は、不活性ガスで満たされている。これによって、チャンバー 10 の内部を外部から遮断することができる。なお、坩堝容器 8 は、チャンバー 10 の底面に支持されていてもよいが、坩堝容器 8 の底面が、この底面からチャンバー 10 の底部を貫通して下方に伸びる支持軸（図示せず）によって支持されていてもよい。

[0020] チャンバー 10 は、保持部材 4 の通過する通過孔 101 と、チャンバー 10 内にガスを供給するための給気孔 102 と、チャンバー 10 内からガスを排出する排気孔 103 とを有している。そして、結晶製造装置 1 は、チャンバー 10 の内部にガスを供給するガス供給手段（不図示）を有しており、ガス供給手段を介して給気孔 102 からチャンバー 10 内にガスが供給され、排気孔 103 から排出される。

[0021] チャンバー 10 は、例えば円筒状に形成される。チャンバー 10 は、例えば 150 mm 以上 1000 mm 以下の直径を有する円を底面とし、例えば 500 mm 以上 2000 mm 以下の高さに設定される。チャンバー 10 は、例えばステンレスまたは絶縁性の石英等の材料で形成される。チャンバー 10 内に供給される不活性ガスとしては、例えばアルゴン（Ar）またはヘリウム（He）等が挙げられる。

[0022] 坩堝 5 には、加熱装置 11 によって、熱が加えられる。本実施形態の加熱装置 11 は、コイル 12 および交流電源 13 を含んでおり、例えば電磁波を利用した誘導加熱方式によって坩堝 5 の加熱を行なう。なお、加熱装置 11

は、例えば、カーボン等の発熱抵抗体で生じた熱を伝熱する方式等の他の方式を採用することができる。この伝熱方式の加熱装置を採用する場合は、（坩堝 5 と保温材 9 との間に）発熱抵抗体が配されることになる。

[0023] コイル 12 は、導体によって形成され、坩堝 5 の周囲を囲んでいる。具体的には、コイル 12 は、坩堝 5 を円筒状に囲むように、チャンバー 10 の周囲に配されている。コイル 12 を有する加熱装置 11 は、コイル 12 による円筒状の加熱領域を有している。なお、本実施形態では、チャンバー 10 の周囲にコイル 12 を配置しているが、コイル 12 はチャンバー 10 の内側に位置していてもよい。

[0024] 交流電源 13 は、コイル 12 に交流電流を流すためのものである。コイル 12 に電流が流れて電場が発生することによって、電場内に位置した坩堝容器 8 に誘導電流が発生する。この誘導電流のジュール熱によって坩堝容器 8 が加熱される。そして、坩堝容器 8 の熱が保温材 9 を介して坩堝 5 へ伝達されることで、坩堝 5 が加熱される。交流電流の周波数を坩堝容器 8 に誘導電流が流れやすいように調整することで、坩堝 5 内の設定温度までの加熱時間を短縮したり、電力効率を向上させたりすることができる。

[0025] 本実施形態では、交流電源 13 および移動装置 7 が制御装置 14 に接続されて制御されている。つまり、結晶製造装置 1 は、制御装置 14 によって、溶液 6 の加熱および温度制御と、種結晶 3 の搬入出とが連動して制御されている。制御装置 14 は、中央演算処理装置およびメモリ等の記憶装置を含んでおり、例えば公知のコンピュータからなる。

[0026] <結晶の製造方法>

以下、本発明の実施形態に係る結晶の製造方法について、図 2 を参照しつつ説明する。なお、図 2 は、本実施形態に係る結晶の製造方法を説明する図であり、具体的には経過時間を横軸にし、温度を縦軸にした場合の結晶製造時の溶液 6 の温度変化の概略を示すグラフである。

[0027] 結晶の製造方法は、主に、準備工程、接触工程、結晶成長開始工程、第 1 結晶成長工程、溶液昇温工程、第 2 結晶成長工程および引き離し工程を有す

る。なお、本発明は本実施形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において種々の変更、改良等が可能である。

[0028] (準備工程)

種結晶3を準備する。種結晶3としては、例えば昇華法または溶液法等によって製造された炭化珪素の結晶の塊を平板状に形成したものをを用いる。本実施形態では、同一の製造工程を経て成長させた結晶2を種結晶3として使用している。その結果、種結晶3と種結晶3の表面に成長する結晶2との組成を近付けることができ、結晶2における組成の違いに起因した転移の発生等を低減することができる。なお、平板状への加工は、例えば機械加工によって炭化珪素の塊を切断することによって行なえばよい。

[0029] 種結晶3とともに保持部材4を準備し、保持部材4の下面に種結晶3を固定する。具体的には、保持部材4を準備した後、保持部材4の下面に炭素を含有する接着材を塗布する。次いで、接着材を挟んで保持部材4の下面上に種結晶3を配して、保持部材4の下面に種結晶3を固定する。なお、本実施形態では、種結晶3を保持部材4に固定した後、保持部材4の上端を移動装置7に固定する。移動装置7へは、上述した通り、保持部材4の中心部分を貫通して上下方向に伸びた軸の周囲を保持部材4が回転可能となるように固定する。

[0030] 坩堝5と、坩堝5内に収容された、珪素溶媒に炭素を溶解した溶液6とを準備する。具体的には、まず、坩堝5を準備する。次いで、坩堝5内に、珪素の原料となる珪素粒子を入れて、坩堝5を珪素の融点(1420℃)以上に加熱する。このとき、融解して液化した珪素(溶媒)内に、坩堝5を形成している炭素(溶質)が溶解する。その結果、珪素溶媒に炭素を溶解した溶液6を坩堝5内に準備することができる。なお、溶液6に炭素を含ませるには、予め原料として炭素粒子を加えることによって、珪素粒子を融解させると同時に炭素を溶解させてもよい。

[0031] 次に、坩堝5をチャンバー10内に収容する。本実施形態では、坩堝5は、加熱装置11のコイル12に囲まれたチャンバー10内に、坩堝容器8内

に保温材 9 を介して配されて收容される。なお、溶液 6 の準備は、坩堝 5 をチャンバー 10 に收容して、加熱装置 11 によって坩堝 5 を加熱することで行なってもよい。また、予め坩堝 5 を結晶製造装置 1 の外で加熱して溶液 6 を形成した後に、坩堝 5 をチャンバー 10 内に收容してもよい。また、溶液 6 を坩堝 5 以外の他の容器等で形成した後、チャンバー 10 内に設置された坩堝 5 に溶液 6 を注ぎ込んでもよい。

[0032] (接触工程)

種結晶 3 の下面を溶液 6 に接触させる。種結晶 3 は、保持部材 4 を下方に移動させることで、溶液 6 に下面を接触させる。なお、本実施形態では、種結晶 3 を下方へ移動させることで種結晶 3 を溶液 6 に接触させているが、坩堝 5 を上方へ移動させることで種結晶 3 の下面を溶液 6 に接触させてもよい。

[0033] 種結晶 3 は、種結晶 3 の少なくとも下面が溶液 6 の液面に接触していればよい。それゆえ、種結晶 3 を溶液 6 内に配して、下面とともに種結晶 3 の側面または上面を溶液 6 に接触させてもよい。

[0034] (結晶成長開始工程)

溶液 6 の温度を所定の第 1 温度域 T1 まで上げて、種結晶 3 の下面に炭化珪素の結晶 2 の成長を開始する。第 1 温度域 T1 は、珪素溶媒が液状である温度範囲に設定される。第 1 温度域 T1 の温度範囲は、例えば 1700℃以上 2100℃以下に設定される。

[0035] 溶液 6 の温度を測定する方法としては、例えば熱電対で直接的に測定する方法または放射温度計を用いて間接的に測定する方法を用いることができる。溶液 6 の温度が変動する場合には、溶液 6 の温度として、例えば一定時間において複数回測定した温度を平均して求めた温度を用いることができる。

[0036] 種結晶 3 の溶液 6 への接触は、溶液 6 の温度を第 1 温度域 T1 まで上げた後に接触させてもよい。溶液 6 の温度を上昇させてから種結晶 3 を接触させることによって、第 1 結晶成長工程の前に種結晶 3 の溶解を低減することができ、結晶 2 の生産効率を向上させることができる。

[0037] 一方で、溶液6の温度を第1温度域T1まで上げる前に、溶液6に種結晶3を接触させてもよい。これによれば、例えば種結晶3の表面を溶液6によって溶解させることができ、種結晶3の表面に付着するゴミ等を除去することができる。その結果、種結晶3の表面に成長する結晶2の品質を向上させることができる。

[0038] (第1結晶成長工程)

溶液6に接触した種結晶3の下面に、溶液6から結晶2を成長させる。結晶2の成長は、まず、種結晶3の下面と種結晶3の下面近傍の溶液6との間に温度差ができる。そして、種結晶3と溶液6との温度差によって、溶液6中に溶解している炭素が過飽和状態になれば、溶液6中の炭素および珪素が炭化珪素の結晶2として種結晶3の下面に析出し、結晶2は成長する。なお、結晶2は、少なくとも種結晶3の下面に成長していればよいが、種結晶3の下面および側面から成長させてもよい。

[0039] 種結晶3を引き上げることによって、結晶2を板状または柱状に成長させることができる。このとき、結晶2の平面方向および下方への成長速度を調整しながら種結晶3を上方向に少しずつ引き上げることによって、一定の幅または径を保った状態で結晶2を成長させることができる。種結晶3の引上げの速度は、例えば $50\mu\text{m}/\text{h}$ 以上 $2000\mu\text{m}/\text{h}$ 以下に設定することができる。なお、第1結晶成長工程において、結晶2の成長時間は、例えば10時間以上150時間以下に設定される。

[0040] 種結晶3の引上げは、図2に示すように、溶液6の温度を第1温度域T1から所定の第2温度域T2まで下げながら行なう。ここで、例えば結晶2の成長時において溶液6が一定温度に維持されている場合は、溶液6中の炭素の過飽和度が大きくなりやすく、結晶2の成長速度を向上させにくいという問題点があった。これに対して、本発明では、溶液6の温度を下げることによって、溶液6中の炭素の過飽和度を大きくすることができる。その結果、溶液6から結晶2を析出しやすくすることができるため、結晶2の成長速度を向上させることができる。したがって、結晶2の生産効率を向上させるこ

とができる。なお、図2においては、第1結晶成長工程を「A」とし、第2結晶成長工程を「B」とし、溶液昇温工程を「C」として示している。

[0041] 第2温度域T2は、第1温度域T1よりも低い。また、第2温度域T2は、珪素溶媒が液状である温度範囲に設定される。第2温度域T2の温度範囲は、例えば1500℃以上2070℃以下に設定される。また、第1温度域T1から第2温度域T2への溶液6の降温幅は、例えば30℃以上200℃以下に設定される。溶液6の降温幅を30℃以上にするによって、結晶2の成長速度を効果的に向上させることができる。一方で、溶液6の降温幅を200℃以下にするによって、結晶2の成長条件が大きく変わって結晶2の品質が低下することを低減することができる。

[0042] 溶液6の降温時間は、例えば10時間以上150時間以下に設定される。溶液6の降温時間を10時間以上にするによって、溶液6の温度を制御しやすくなる。一方で、溶液6の降温時間を150時間以下にするによって、溶液6の炭素の過飽和度が小さくなり過ぎることを低減することができ、結晶2の成長速度の低下を低減することができる。なお、溶液6の温度を低下させるには、例えば坩堝5を加熱している加熱装置11の出力を低下させればよい。

[0043] 溶液6の温度変化の傾きは、経過時間に対して一定であってもよい。言い換えれば、溶液6の温度を単調に低下させてもよい。溶液6の温度を単調に低下させることによって、溶液6の温度を制御しやすくなり、作業効率を向上させることができる。この場合、溶液6の温度変化の速度は、例えば1℃/h以上15℃/h以下に設定される。溶液6の温度変化の速度を1℃/h以上にするによって、結晶2を成長しやすくなる。また、溶液6の温度変化の速度を15℃/h以下にするによって、結晶2の表面での2次元核の発生を低減することができ、結晶2の品質を維持しやすくなる。

[0044] 一方で、溶液6の温度は、経過時間に対して段階的に低下させてもよい。すなわち、第1結晶成長工程中に、温度を一定に保つ工程を少なくとも1回は行なうとよい。これによって、例えば結晶2に取り込まれる不純物の量を

温度の変化に合わせて変化させることができる。その結果、例えば、結晶 2 内に導電層を形成して後の半導体部品の製造効率を向上させたり、または結晶 2 のウェハへの加工時に切断箇所を目印を形成したりすることができる。

[0045] 溶液 6 の温度は、溶液 6 の炭素の過飽和度が一定になるように低下させてもよい。その結果、結晶 2 の品質を保ちやすく、結晶 2 の品質低下を低減することができる。このとき、温度が高いほど溶液 6 の炭素の飽和濃度は大きくなり、炭素の過飽和度は小さくなりやすい。また、温度が低いほど溶液 6 の炭素の飽和濃度は小さくなり、炭素の過飽和度は大きくなりやすい。したがって、溶液 6 の炭素の過飽和度が一定になるようにするためには、溶液 6 の降温幅は、第 1 温度域 T 1 の近くで大きくなり、第 2 温度域 T 2 に向かうにつれて小さくなる。

[0046] なお、具体的には、無添加の珪素溶媒に炭素を飽和させた溶液 6 について、例えば 2000℃の溶液 6 から 1℃低下した際の珪素溶媒に対する炭素の過飽和度は、熱力学的計算から 0.00623 となる。また、例えば 1940℃の溶液 6 について、過飽和度を 0.00623 とするには 0.97℃の温度低下が必要になる。すなわち、過飽和度を一定にするには、第 1 温度域 T 1 の近くでの溶液 6 の降温幅は、第 2 温度域 T 2 の近くでの溶液 6 の降温幅よりも大きくすることが必要になる。

[0047] 溶液 6 の温度は、溶液 6 の炭素の過飽和量が一定になるように低下させてもよい。その結果、結晶 2 の成長速度を一定に保ちやすく、生産性を維持しやすくなる。このとき、温度が高いほど溶液 6 の炭素の飽和濃度は大きくなり、溶液 6 に溶解している炭素の量が大きくなるため、炭素の過飽和量は大きくなりやすい。また、温度が低いほど溶液 6 の炭素の飽和濃度は小さくなり、溶液 6 に溶解している炭素の量が小さくなるため、炭素の過飽和量は小さくなりやすい。したがって、溶液 6 の炭素の過飽和量が一定になるようにするには、溶液 6 の降温幅は、第 1 温度域 T 1 の近くで小さくし、第 2 温度域 T 2 に向かうにつれて大きくすることが必要になる。なお、具体的には、無添加の珪素溶媒に炭素を飽和させた溶液 6 について、例えば 2000℃の

溶液 6 から 1℃ 低下した際の珪素溶媒に対する炭素の過飽和量は、熱力学的計算から 0.001951 となる。また、例えば 1940℃ の溶液 6 について、過飽和度を 0.001951 とするには 1.42℃ の温度低下が必要になる。すなわち、過飽和量を一定にするには、第 1 温度域 T1 の近くでの溶液 6 の降温幅は、第 2 温度域 T2 の近くでの溶液 6 の降温幅よりも小さくすることが必要になる。

[0048] 第 1 結晶成長工程において、種結晶 3 または成長する結晶 2 の半分以上は、溶液 6 の外に位置していてもよい。これにより、種結晶 3 等の溶液 6 の外に位置している部分から種結晶 3 等を放熱させることができ、種結晶 3 等と溶液 6 との温度差を大きく確保することができる。その結果、結晶 2 の成長速度を向上させることができる。

[0049] 第 1 結晶成長工程において、種結晶 3 の下面または成長する結晶 2 の下面と溶液 6 の液面とが接している状態を維持しつつ結晶 2 を成長させてもよい。これにより、種結晶 3 または結晶 2 と溶液 6 との温度差を大きく確保しやすくすることができる。

[0050] 一方で、第 1 結晶成長工程において、種結晶 3 の下面または結晶 2 の下面を溶液 6 中に沈めた状態を維持しつつ結晶 2 を溶液 6 中で成長させてもよい。前述の通り結晶 2 を溶液 6 中で成長させる場合には、結晶 2 と溶液 6 との温度差が大きくなり過ぎることを低減し、結晶 2 が急成長することによる結晶 2 の品質低下を低減することができる。

[0051] 溶液 6 の降温は、溶液 6 の下部の温度が溶液 6 の上部の温度よりも小さくなるように行なってもよい。すなわち、例えば、溶液 6 の降温を、坩堝 5 の底部の温度を坩堝 5 の壁部の温度よりも下げるようにして行なってもよい。これによって、種結晶 3 と溶液 6 との接触部における温度差を大きくすることができ、結晶 2 の成長速度を向上させることができる。

[0052] なお、坩堝 5 を加熱装置 11 のコイル 12 に対して下方に位置させることによって、坩堝 5 の底部の温度を坩堝 5 の壁部の温度よりも小さくすることができる。また、坩堝 5 と坩堝容器 8 との間に配された保温部材 9 の位置を

移動させることによって、坩堝5の底部の温度を坩堝5の壁部の温度よりも小さくすることができる。また、保持部材4を冷却して種結晶3から保持部材4へ移動する熱量を増加させることによって、溶液6の上部の温度を低減してもよい。また、溶液6よりも温度の低い冷却部材を溶液6に入れることによって溶液6を降温させてもよい。

[0053] 一方で、溶液6の降温は、溶液6の上部の温度が溶液6の下部の温度よりも小さくなるように行なってもよい。このようにして溶液6の温度を下げることで、結晶2の成長によって消費される炭素を坩堝5の底部から溶液6に供給しやすくなる。その結果、坩堝5の側部から炭素が供給されることによって坩堝5の開口幅が拡大して溶液6内の対流等の条件が変化することを低減することができる。

[0054] 溶液6の降温は、溶液6内の温度が均一になるように行なってもよい。その結果、溶液6内の熱勾配を小さくすることができるため、溶液6の過飽和度を均一にしやすく、結晶2が平坦に成長しやすくなる。なお、溶液6内の温度が均一とは、本実施形態においては、例えば溶液6内の最大温度と最小温度との差が10℃未満の状態をいう。また、坩堝5における上方への熱の移動量と下方への熱の移動量を調整することによって、溶液6内の温度分布を均一にしやすくすることができる。なお、例えば保持部材4および支持軸（図示せず）の温度を調整することによって、坩堝5における上方および下方への熱の移動量を調整することができる。

[0055] 溶液6の降温は、溶液6内の温度が均一になるように一定時間行なった後、溶液6の下部の温度が溶液6の上部の温度よりも小さくなるように行なってもよい。この場合には、坩堝5の底部が冷えていることから、例えば坩堝5の底部に溶液6中に発生する雑晶を固着させやすくなる。その結果、結晶2に雑晶が取り込まれることを低減することができ、結晶2の品質を向上させることができる。

[0056] また、第1結晶成長工程において結晶2を回転させてもよい。結晶2を回転させることによって、溶液6中に発生する雑晶の結晶2への付着を防止す

ることができる。その結果、結晶2の品質を向上させることができる。結晶2の回転は、例えば50rpm以上1000rpm以下に設定するとよい。なお、結晶2は保持部材4を回転させることによって回転させることができる。

[0057] また、第1結晶成長工程において坩堝5を回転させてもよい。坩堝5を回転させることによって、坩堝5内に溶液6に流れを発生させることができ、溶液6内の温度分布を小さくすることができる。

[0058] (溶液昇温工程)

溶液6の温度を、図2に示すように、第2温度域T2から第1温度域T1まで上げる。これによって、後述する第2結晶成長工程を行なうことが可能になり、結晶2を長尺化することができる。

[0059] 本実施形態では、溶液6の温度の昇温は、例えば加熱装置11の出力を第1結晶成長工程の終了時と比較して増加させることによって行なう。また、溶液6の昇温時間は、例えば0.5時間以上3時間以下に設定される。溶液昇温工程において溶液6の温度変化の速度は、例えば10℃/h以上600℃/h以下に設定される。

[0060] 溶液昇温工程は、第1結晶成長工程および後述する第2結晶成長工程よりも短時間で行なってもよい。すなわち、溶液昇温工程において溶液6の温度を第2温度域T2から第1温度域T1まで上げる時間を、第1結晶成長工程および第2結晶成長工程において溶液6の温度を第1温度域T1から第2温度域T2まで下げる時間よりも短くしてもよい。その結果、結晶2の全体の製造時間を短縮することができ、生産効率を向上させることができる。

[0061] 第1結晶成長工程と溶液昇温工程との間において結晶2を溶液6から引き離し、後述する第2結晶成長工程の前に結晶2を溶液6に接触させてもよい。このように結晶2を溶液6から一旦引き離して溶液6の温度を上げることによって、成長した結晶2の溶液6への溶解を低減することができ、結晶2の生産効率を向上させることができる。

[0062] 結晶2を溶液6から引き離すのは、溶液昇温工程の開始後、第2結晶成長

工程の開始前であってもよい。ここで、第1結晶成長工程において、溶液6の温度を下げながら結晶2を成長させることによって、結晶2の成長速度が向上する。このとき、結晶2の表面のうち成長しやすい部分が大きく成長して、結晶2の表面が粗くなりやすい傾向がある。このような状態で結晶2の成長を継続すると、成長した結晶2に溝が形成される等の不具合が生じやすくなる。これに対して、結晶2を溶液昇温工程の後に溶液6から引き離すことによって、結晶2の表面を溶液6に溶解させることができ、結晶2の表面を平坦に近付けることができる。その結果、後の結晶成長において、第1結晶成長工程で成長した結晶の表面状態の影響を小さくすることができ、成長した結晶2に溝が形成される等の不具合の発生を低減することができる。したがって、結晶2の品質を向上させることができる。

[0063] 結晶2の溶液6への溶解は、成長した結晶2の下面を溶液6内に沈めた状態で行なってもよい。結晶2の下面が溶液6内に沈んでいる場合には、結晶2の平面方向における放熱を均一にしやすい、結晶2の下面を平坦に近付けることができる。

[0064] 一方で、結晶2の溶液6への溶解は、成長した結晶2の下面と溶液6の液面とが接している状態で行なってもよい。この場合は、結晶2の下面に比較して結晶2の側面が冷えやすくなるため、結晶2の下面の中央部が僅かに凹むように結晶2を溶解させることができる。したがって、例えば結晶2の下面の中央部に溶液6の流れを当てながら結晶2を成長させることによって、中央部の凹みを埋めるように結晶2を平面方向に成長させることができ、結晶2の品質を向上させることができる。

[0065] 結晶2を引き離す場合に、結晶2を種結晶3とともに保持部材4で回転させながら、結晶2を溶液6から離してもよい。これによって、結晶2の表面に溶液6が付着することを低減することができる。その結果、例えば、溶液6が固化することによって結晶2にひびが発生することを低減することができる。

[0066] 結晶2を溶液6から引き離した場合に、溶液昇温工程の間に結晶2を溶液

6に接触させてもよい。この場合は、結晶2の表面を溶液6に溶解させることができ、結晶2の表面を平坦に近付けることができる。また、溶液昇温工程の間に結晶2を溶液6に接触させることで、例えば結晶2の表面の溶解量を調整することができる。

[0067] 結晶2を溶液6から引き離した場合に、結晶2の下面が溶液6の液面近傍に位置するように結晶2を保持してもよい。その結果、結晶2の下面を溶液6からの輻射熱で温めることが可能になり、結晶2を溶液6から引き離す際に下面に付着する溶液6が固化することを低減することができる。

[0068] 溶液昇温工程は、結晶2が溶液6に接触した状態のままで行なってもよい。この場合は、例えば表面状態が著しく悪いときでも溶液6によって結晶2を十分に溶解することができ、結晶2の下面を平坦に近付けることができる。また、例えば結晶2を回転させることによって、溶液6を昇温中も攪拌できるため、溶液6内の温度分布を小さくすることができ、結晶2の下面を平坦に近付けることができる。

[0069] 溶液昇温工程において第1温度域T1における溶液6の温度を、結晶成長開始工程時または第1結晶成長工程の第1温度域T1における溶液6の温度以上に上げてよい。ここで、例えば結晶2の成長を長時間行なうと、溶液6中の珪素溶媒の量が少なくなって溶解している炭素量が少なくなり、溶液昇温工程の後の結晶2の成長速度が遅くなりやすい。これに対して、本発明によれば、溶液6の温度を第1結晶成長工程の第1温度域T1における溶液6の温度以上に上げることによって炭素の濃度を上げて、溶液昇温工程の後の結晶2の成長速度を向上させることができる。

[0070] 溶液昇温工程において溶液6に珪素原料を追加してもよい。これにより、結晶成長または蒸発等によって消費された珪素を補給することができ、溶液6の組成を所望の組成に維持しやすくなる。その結果、結晶2の品質を向上させることができる。

[0071] 溶液6に追加する珪素原料は、粉末状であってもよい。粉末状の珪素原料を溶液6に追加することによって、珪素原料が溶けやすくなるため、溶液6

の昇温の効率を向上させることができる。

[0072] 溶液6に追加する珪素原料は、塊状であってもよい。この場合は、例えば粉末状の珪素に比較して質量が大きいことから、チャンバー10内のガス対流等で舞い上がることを低減することができる。その結果、原料追加の作業を効率的に行なうことができる。

[0073] 溶液6に珪素原料を追加する場合には、珪素原料を追加した後に溶液6の昇温を開始してもよい。これによって、成長開始までに十分な時間を確保することができ、溶液6中の組成を安定させることができる。したがって、後に成長させる結晶2の品質を維持しやすくすることができる。

[0074] 一方で、溶液6に珪素原料を追加する場合に、溶液6を昇温した後に珪素原料を追加してもよい。この場合には、溶液6の温度を下げやすくなり、第2結晶成長工程を開始しやすくなり、結晶2の生産効率を向上させることができる。

[0075] 溶液昇温工程において結晶2または坩堝5、あるいは結晶2および坩堝5を回転させてもよい。これにより、溶液6が坩堝5内で循環することになることから、結晶2と溶液6との接触部近傍の溶液6も循環することになり、常に温度の高い溶液6を結晶2に供給することができる。したがって、結晶2が温まりやすくなり、結晶2を容易に溶液6に溶解させることができる。

[0076] 一方で、溶液昇温工程において、坩堝5を回転させなくてもよい。この場合は、例えば結晶2を回転させる場合とは異なる溶液6の流れを坩堝5内で発生させることができる。その結果、例えば第1結晶成長工程とは異なる溶液6の流れを発生させて、坩堝5内で溶液6を攪拌することができる。

[0077] 溶液6の温度変化の傾きは、経過時間に対して一定であってもよい。言い換えれば、溶液6の温度を単調に上昇させてもよい。溶液6の温度を単調に上昇させることによって、溶液6の温度を制御しやすくなり、作業効率を向上させることができる。この場合の溶液6の温度変化の速度は、例えば50℃/h以上500℃/h以下に設定される。

[0078] 溶液昇温工程において、経過時間に対して溶液6の温度を段階的に上昇さ

せてもよい。すなわち、溶液昇温工程中に温度を一定に保つ工程を少なくとも1回は行なうとよい。また、溶液昇温工程中に結晶2を溶液6から一度引き離す場合には、溶液6の温度を段階的に上昇させた後、溶液6の温度を一定に保ちながら結晶2を溶液6に再度接触させてもよい。これによって、溶液6内の組成を安定させることができるため、結晶2を溶液6に接触させたときの結晶2の溶解量を調整しやすくすることができる。

[0079] 溶液6の昇温は、溶液6の上部の温度が溶液6の下部の温度よりも高くなるように行なってもよい。すなわち、溶液6の昇温を、例えば坩堝5の壁部が坩堝5の底部よりも温度が高くなるようにして行なってもよい。これによって、例えば坩堝5の底部に雑晶を固着させた場合に、坩堝5が溶液6内に溶け出すことによって坩堝5の底部から雑晶が離れて結晶2に取り込まれることを低減することができる。

[0080] (第2結晶成長工程)

溶液昇温工程の後、図2に示すように、溶液6の温度を第1温度域T1から第2温度域T2まで下げながら、種結晶3を引き上げることによって、結晶2を引き続き成長させる。これによって、結晶2を長尺化することができる。

[0081] 第2結晶成長工程において、種結晶3の引上げの速度は、例えば $50\mu\text{m}/\text{h}$ 以上 $2000\mu\text{m}/\text{h}$ 以下に設定することができる。結晶2の成長は、例えば10時間以上150時間以下行なう。溶液6の温度は、例えば 150°C 以上 2100°C 以下となるように設定される。

[0082] (引き離し工程)

第2結晶成長工程の後、成長させた結晶2を溶液6から引き離し、結晶成長を終了する。

[0083] 本発明は上述の形態に限定されるものではなく、本発明の要旨を逸脱しない範囲において種々の変更、改良等が可能である。

[0084] 本発明においては、溶液昇温工程および第2結晶成長工程をそれぞれ複数回繰り返してもよい。ここで、例えば結晶2を長時間させると溶液6の炭素

濃度が小さくなるために、成長速度が遅くなりやすい。これに対して、溶液昇温工程および第2結晶成長工程を繰り返すことによって、溶液昇温工程によって溶液6の炭素の過飽和度を上げることで第2結晶成長工程における結晶2の成長速度を維持しやすくすることができる。なお、溶液昇温工程と第2結晶成長工程とは、例えば40回以上100回以下の回数で繰り返される。

[0085] 第2結晶成長工程の時間は、工程を繰り返すにつれて短くしてもよい。例えば結晶2を長時間成長させると、結晶2の厚膜化または長尺化によって結晶2の下面からの放熱が低下して成長速度が遅くなりやすい。これに対して、第2結晶成長工程の時間を次第に短くすることによって、溶液6中の炭素の過飽和度を上げて、結晶2の成長速度を維持しやすくすることができる。

[0086] 繰り返して行なう第2結晶成長工程において、溶液6の降温を坩堝5を降温させて行なう場合には、前の第2結晶成長工程とは坩堝5の異なる部分を降温させてもよい。この場合は、第2結晶成長工程において雑晶が発生するときには雑晶は坩堝5の温度が小さい部分に固着しやすいが、坩堝5の降温部分を変化させることによって、坩堝5の一部分に雑晶が堆積することを抑制することができる。

[0087] 第1結晶成長工程および第2結晶成長工程の後、溶液昇温工程の前に、結晶2を溶液6から引き離して溶液6の温度をさらに低下させてもよい。この場合は、溶液6の不純物濃度を制御することができる。すなわち、例えば不純物として窒素を考慮した場合には、溶液6の温度が低いほど窒素の飽和濃度は高くなり、例えば雰囲気的气体中から溶液6に窒素が溶けやすくなる。そして、溶液6に溶けた窒素は結晶2に取り込まれることになる。それにより、取り込まれた窒素がドーパントとなり、結晶2をn型の半導体にすることができる。

[0088] 溶液昇温工程における溶液6の温度は、工程を繰り返すにつれて高くしてもよい。例えば結晶2を長時間成長させると、結晶2の厚膜化または長尺化によって結晶2の下面からの放熱が低下して成長速度が遅くなりやすい。こ

れに対して、溶液昇温工程における溶液 6 の温度を次第に高くすることで、溶液 6 の炭素の飽和濃度を上げて、結晶 2 の成長速度を維持しやすくすることができる。

[0089] 結晶成長開始工程の前に、溶液 6 の温度を第 1 温度域 T 1 に所定の時間維持する溶液温度維持工程をさらに備えてもよい。その結果、第 1 結晶成長工程を始める前に、溶液 6 内の組成を安定させやすくなり、結晶 2 の品質を向上させることができる。

[0090] また、溶液昇温工程と第 2 結晶成長工程との間に、溶液温度維持工程を備えてもよい。その結果、第 2 結晶成長工程を始める前に、溶液 6 内の組成を安定させやすくなり、結晶 2 の品質を向上させることができる。

[0091] 溶液昇温工程において、結晶 2 の成長雰囲気へのガス供給量を増加させてもよい。これによって、結晶製造装置 1 内に内在する不純物をガスで除去しやすくなり、結晶 2 内に不純物を取り込まれることを低減することができる。

[0092] 溶液昇温工程において、ガス供給量を増加させた場合は、第 2 結晶成長工程の開始前にガス供給量を低下させた方がよい。これにより、結晶 2 の成長中の雰囲気の条件が一定になるため、結晶 2 の品質を維持しやすくなることができる。

[0093] 第 1 結晶成長工程および第 2 結晶成長工程において、結晶 2 の成長中の雰囲気にガスを一定の供給量で供給してもよい。これにより、結晶 2 の成長中の雰囲気の温度条件等を制御しやすくなる。

符号の説明

- [0094] 1 結晶製造装置
2 結晶
3 種結晶
4 保持部材
5 坩堝
6 溶液

- 7 移動装置
- 8 坩堝容器
- 9 保温材
- 10 チャンバー
- 101 通過孔
- 102 給気孔
- 103 排気孔
- 11 加熱装置
- 12 コイル
- 13 交流電源
- 14 制御装置
- T1 第1温度域
- T2 第2温度域
- A 第1結晶成長工程
- B 第2結晶成長工程
- C 溶液昇温工程

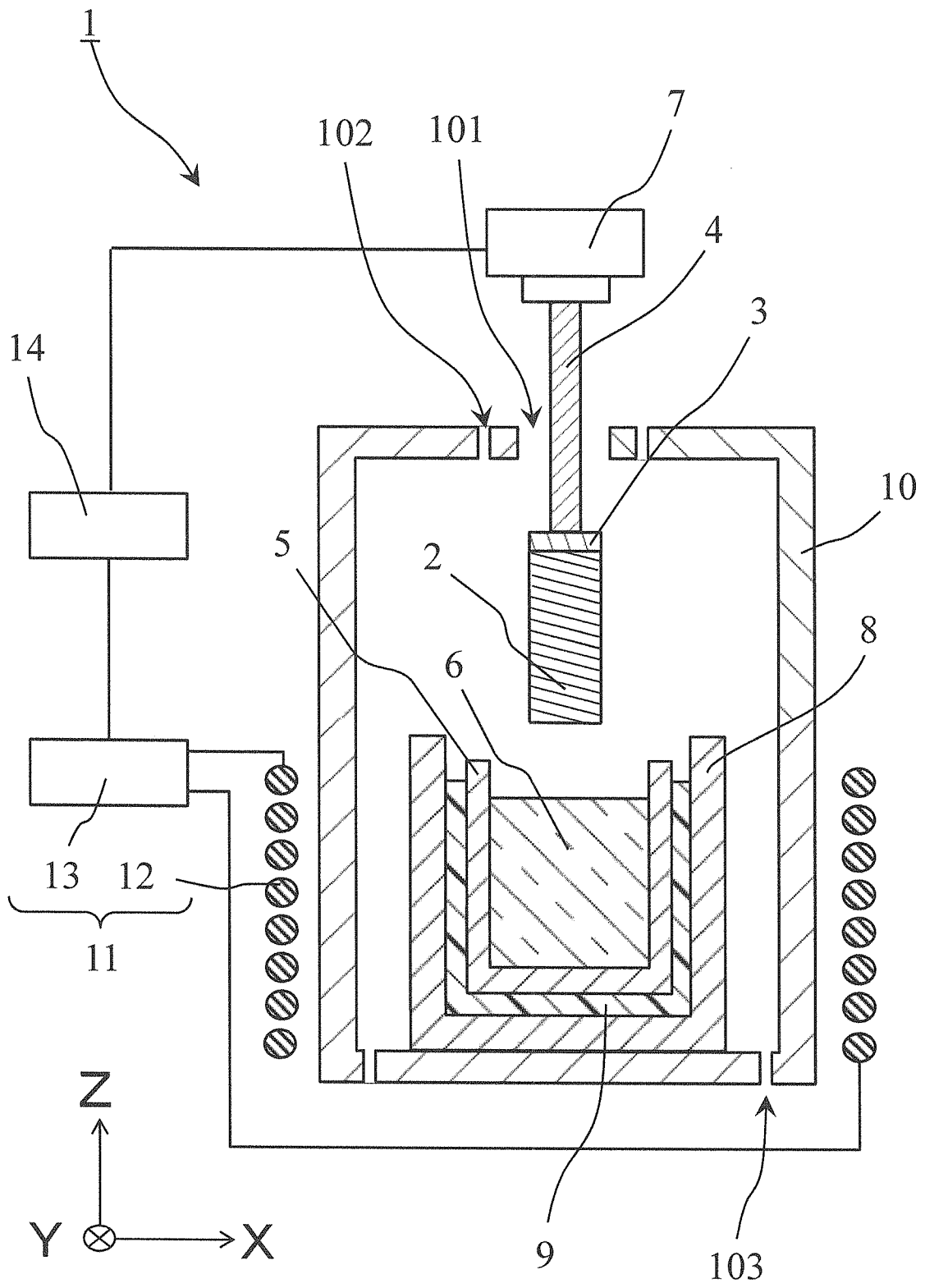
請求の範囲

- [請求項1] 炭化珪素の種結晶の下面に溶液法によって炭化珪素の結晶を成長させる結晶の製造方法であって、
珪素溶媒に炭素を溶解した溶液および炭化珪素の種結晶を準備する準備工程と、
前記種結晶の下面を前記溶液に接触させる接触工程と、
前記珪素溶媒が液状である温度範囲内において前記溶液の温度を所定の第1温度域まで上げて、前記種結晶の下面に炭化珪素の結晶の成長を開始する結晶成長開始工程と、
該結晶成長開始工程の後に、前記珪素溶媒が液状である温度範囲内において前記溶液の温度を前記第1温度域から所定の第2温度域まで下げながら、前記種結晶を引き上げることによって炭化珪素の結晶を成長させる第1結晶成長工程と、
前記溶液の温度を前記第2温度域から前記第1温度域まで上げる溶液昇温工程と、
該溶液昇温工程の後に、前記溶液の温度を前記第1温度域から前記第2温度域まで下げながら、前記種結晶を引き上げることによって炭化珪素の結晶を引き続き成長させる第2結晶成長工程とを備える結晶の製造方法。
- [請求項2] 前記溶液昇温工程および第2結晶成長工程をそれぞれ複数回繰り返す請求項1に記載の結晶の製造方法。
- [請求項3] 前記溶液昇温工程の前記第1温度域における前記溶液の温度を、前記第1結晶成長工程の前記第1温度域における前記溶液の温度以上にする請求項1または2に記載の結晶の製造方法。
- [請求項4] 前記溶液昇温工程において前記溶液の温度を前記第2温度域から前記第1温度域まで上げる時間を、前記第1結晶成長工程および前記第2結晶成長工程において前記溶液の温度を前記第1温度域から前記第2温度域まで下げる時間よりも短くする請求項1～3のいずれかに記

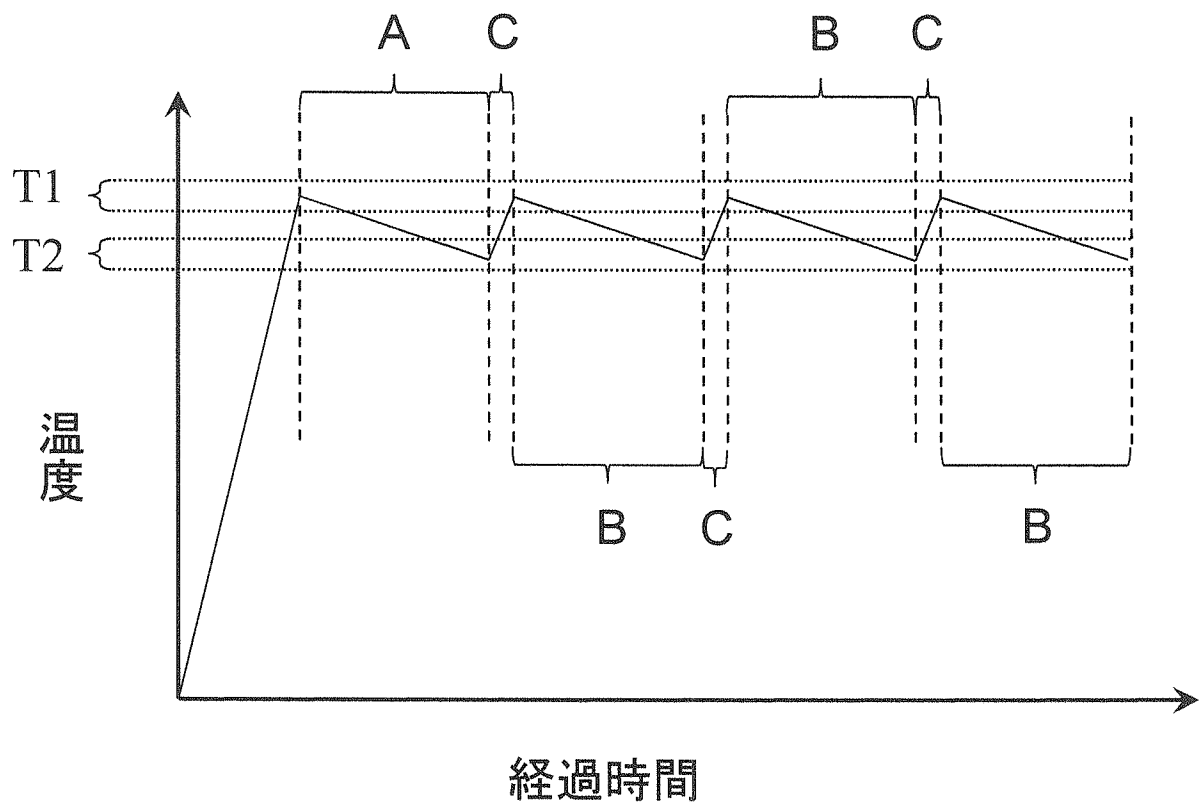
載の結晶の製造方法。

- [請求項5] 前記結晶成長開始工程において前記溶液の温度を前記第 1 温度域まで上げる前に、前記接触工程を行なう請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の結晶の製造方法。
- [請求項6] 前記第 1 結晶成長工程と前記溶液昇温工程との間に前記結晶を前記溶液から離し、前記第 2 結晶成長工程の前に前記結晶を前記溶液に接触させる請求項 1 ～ 5 のいずれかに記載の結晶の製造方法。
- [請求項7] 前記結晶を前記種結晶とともに回転させながら、前記結晶を前記溶液から離す請求項 6 に記載の結晶の製造方法。
- [請求項8] 前記溶液昇温工程の間に前記結晶を前記溶液に接触させる請求項 6 または 7 に記載の結晶の製造方法。
- [請求項9] 前記溶液昇温工程において、前記溶液に珪素原料を追加してから前記溶液を前記第 1 温度域まで上げる請求項 1 または 2 に記載の結晶の製造方法。
- [請求項10] 前記準備工程以降において、炭素を含有する坩堝に前記溶液を収容する請求項 9 に記載の結晶の製造方法。
- [請求項11] 前記結晶成長開始工程以降に、前記溶液の温度を前記第 1 温度域に所定の時間維持する溶液温度維持工程をさらに備える請求項 1 ～ 10 のいずれかに記載の結晶の製造方法。
- [請求項12] 前記溶液昇温工程と前記第 2 結晶成長工程との間に前記溶液温度維持工程を備える請求項 1 ～ 11 のいずれかに記載の結晶の製造方法。
- [請求項13] 前記溶液昇温工程の間に、前記溶液の温度を所定の時間一定に維持しながら前記結晶の下面を前記溶液に再び接触させる請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の結晶の製造方法。

[図1]



[図2]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/052520

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C30B29/36(2006.01) i, C30B15/14(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)

C30B29/36, C30B15/14

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	1996-2015
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2015	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2015

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

JSTPlus/JMEDPlus/JST7580(JDreamIII), Thomson Innovation, Scopus

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	WO 2013/062130 A1 (Kyocera Corp.), 02 May 2013 (02.05.2013), claim 1; paragraphs [0011], [0083] to [0086]; fig. 17 & JP 5318300 B1 & JP 2014-28750 A & US 2014/0299046 A1 (column 1; paragraphs [0110] to [0114]; fig. 17)	1-2, 4 1, 2, 4-12 3, 13
X Y A	JP 2004-2173 A (Sumitomo Metal Industries, Ltd.), 08 January 2004 (08.01.2004), claim 5; paragraphs [0019] to [0021], [0033] to [0039] & US 2005/0183657 A1 (column 5; paragraphs [0020] to [0022], [0038] to [0044]) & EP 1498518 A1 & WO 2003/087440 A1	1-2, 6, 11-12 1, 2, 4-12 3, 13



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

19 March 2015 (19.03.15)

Date of mailing of the international search report

31 March 2015 (31.03.15)

Name and mailing address of the ISA/

Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2015/052520

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y A	JP 2009-91222 A (Sumitomo Metal Industries, Ltd.), 30 April 2009 (30.04.2009), claim 3; paragraphs [0021], [0023] (Family: none)	1-2, 4-12 3, 13
Y A	JP 7-172998 A (Toshiba Corp.), 11 July 1995 (11.07.1995), paragraph [0016] (Family: none)	5, 8 1-4, 6-7, 9-13
Y A	JP 2012-162439 A (Toyota Motor Corp.), 30 August 2012 (30.08.2012), paragraph [0018] (Family: none)	7 1-6, 8-13
Y A	JP 2013-540094 A (SK Innovation Co., Ltd.), 31 October 2013 (31.10.2013), claim 1; paragraphs [0007] to [0009] & US 2013/0305982 A1 & WO 2012/053782 A & KR 10-2012-0041549 A & CN 103180493 A	9-10 1-8, 11-13

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C）） Int.Cl. C30B29/36(2006.01)i, C30B15/14(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. C30B29/36, C30B15/14		
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 1971-2015年 日本国実用新案登録公報 1996-2015年 日本国登録実用新案公報 1994-2015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/JMEDPlus/JST7580(JDreamIII), Thomson Innovation, Scopus		
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	WO 2013/062130 A1（京セラ株式会社）2013.05.02, 請求項 1, 段落 0011, 0083-0086, 図 17, & JP 5318300 B1 & JP 2014-28750 A & US 2014/0299046 A1 (cl. 1, para. 0110-0114, fig. 17)	1-2, 4 1, 2, 4-12 3, 13
X Y A	JP 2004-2173 A（住友金属工業株式会社）2004.01.08, 請求項 5, 段落 0019-0021, 0033-0039, & US 2005/0183657 A1 (cl. 5, para. 0020-0022, 0038-0044) & EP 1498518 A1 & WO 2003/087440 A1	1-2, 6, 11-12 1, 2, 4-12 3, 13
☒ 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 19.03.2015	国際調査報告の発送日 31.03.2015	
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） 村岡 一磨 電話番号 03-3581-1101 内線 3416	4G 5795

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 A	JP 2009-91222 A (住友金属工業株式会社) 2009.04.30, 請求項 3, 段落 0021, 0023, (ファミリーなし)	1-2, 4-12 3, 13
Y A	JP 7-172998 A (株式会社東芝) 1995.07.11, 段落 0016, (ファミリーなし)	5, 8 1-4, 6-7, 9-13
Y A	JP 2012-162439 A (トヨタ自動車株式会社) 2012.08.30, 段落 0018, (ファミリーなし)	7 1-6, 8-13
Y A	JP 2013-540094 A (エスケー イノベーション カンパニー リミ テッド) 2013.10.31, 請求項 1, 段落 0007-0009, & US 2013/0305982 A1 & WO 2012/053782 A & KR 10-2012-0041549 A & CN 103180493 A	9-10 1-8, 11-13