

(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
2020年6月11日(11.06.2020)



(10) 国際公開番号

WO 2020/116458 A1

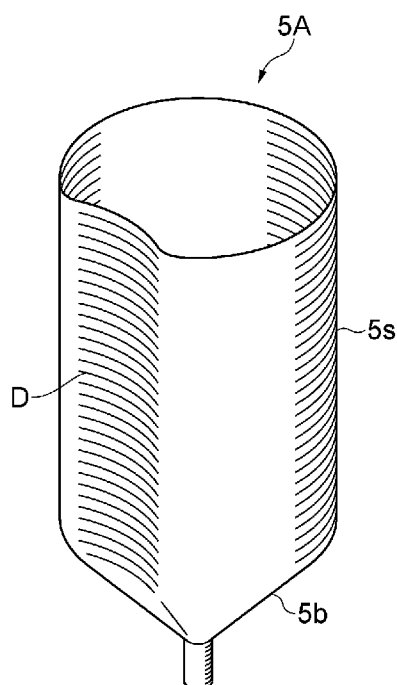
- (51) 国際特許分類:
C30B 11/00 (2006.01) *C30B 29/16* (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2019/047260
- (22) 国際出願日: 2019年12月3日(03.12.2019)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願 2018-227084 2018年12月4日(04.12.2018) JP
- (71) 出願人: T D K株式会社(TDK CORPORATION)
[JP/JP]; 〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目5番1号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者: 川崎 克己 (KAWASAKI Katsumi);
〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目5番

1号 T D K株式会社内 Tokyo (JP). 平林潤(HIRABAYASHI Jun); 〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目5番1号 T D K株式会社内 Tokyo (JP). 藤田 実(FUJITA Minoru); 〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目5番1号 T D K株式会社内 Tokyo (JP). 井ノ口 大輔(INOKUCHI Daisuke); 〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目5番1号 T D K株式会社内 Tokyo (JP). 有馬 潤(ARIMA Jun); 〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目5番1号 T D K株式会社内 Tokyo (JP). 近藤 牧雄(KONDO Makio); 〒1036128 東京都中央区日本橋二丁目5番1号 T D K株式会社内 Tokyo (JP).

(74) 代理人: 長谷川 芳樹, 外(HASEGAWA Yoshiki et al.); 〒1000005 東京都千代田区丸の内二丁目1番1号丸の内 M Y P L A Z A

(54) Title: SINGLE-CRYSTAL GROWING CRUCIBLE, SINGLE-CRYSTAL PRODUCTION METHOD AND SINGLE CRYSTAL

(54) 発明の名称: 単結晶育成用ルツボ、単結晶製造方法及び単結晶



(57) Abstract: Provided is a single-crystal growing crucible 5A for accommodating a raw material melt 8 for growing a single crystal, and in which the raw material melt 8 is solidified. The single-crystal growing crucible 5A includes a side wall section 5s that encloses the raw material melt 8, and a bottom section 5b that is continuous with the side wall section 5s and that supports the raw material melt 8, said side wall section 5s having a circumferential redundancy on the inner side in a cross-sectional view. The side wall section 5s has, among portions thereof, a portion where the circumference is redundant on the inner side in the cross-sectional view, and when the single-crystal growing crucible 5A is cooled in a cooling step subsequent to the single crystal growth, the portion where the circumference is redundant on the inner side in the cross-sectional view extends to the outside of the single-crystal growing crucible 5A.

(57) 要約: 単結晶育成用の原料融液 8 が収容されつつ固化する単結晶育成用ルツボ 5 A であって、原料融液 8 を囲繞する側壁部 5 s と、側壁部 5 s と連続しつつ原料融液 8 を支持する底部 5 b とを備え、側壁部 5 s は横断面視で内側に周長冗長性を有する。側壁部 5 s は横断面視でいずれかの部位に内側に周長が冗長な部位を有することになり、単結晶育成後の冷却工程で単結晶育成用ルツボ 5 A が冷却されると、横断面視で内側に周長が冗長な部位が単結晶育成用ルツボ 5 A の外側に展張する。

(明治安田生命ビル) 9階 創英国際特
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, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH,
CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO,
DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT,
HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JO, KE, KG, KH,
KN, KP, KR, KW, 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:

一 国際調査報告(条約第21条(3))

明 細 書

発明の名称：単結晶育成用ルツボ、単結晶製造方法及び単結晶技術分野

[0001] 本発明は、単結晶育成用ルツボ、単結晶製造方法及び単結晶に関する。

背景技術

[0002] 酸化ガリウム (Ga_2O_3) は、ワイドギャップ半導体として知られるシリコンカーバイド (SiC : バンドギャップ=約 3.3 eV) や、窒化ガリウム (GaN : バンドギャップ=約 3.4 eV) よりも、更に大きなバンドギャップ (約 4.8 eV) を有する半導体である。酸化ガリウムは、電子デバイスに適用した場合、高耐圧、高出力及び低損失などの優れたデバイス特性が期待できる。

[0003] 酸化ガリウムは α (アルファ) から ε (イプシロン) までの 5 種類の結晶多型が確認されている。これらの結晶多型のうち、単斜晶系の β (ベータ) 相は、室温から融点 (約 1800°C) まで安定であり、酸化ガリウム融液から β 相の酸化ガリウム (以下、 β 相の酸化ガリウムを $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ と記す。) の単結晶を育成することが可能である。

[0004] 大型で高品質な $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 単結晶の育成方法として、EFG (Edge-defined Film-fed Growth) 法が、知られている (特許文献 1 参照)。EFG 法で結晶育成を行う場合、原料融液を保持するためのルツボおよび結晶形状を規定するためのダイが必要となる。 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の融点の約 1800°C を上回る高融点を有し、1800°C 前後の高温下で $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ から酸素を奪うほどの大きな還元力を持たない材料が、ルツボおよびダイとして望ましい。

[0005] これらの条件を満たす材料は限られており、同用途で利用される材料は実質的に Ir (イリジウム) のみである。Ir も 1800°C 前後の温度では、数% を越える酸素分圧下で酸化する。一方、 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ は 1800°C 前後の温度で、10% 以下の酸素分圧下で酸素を失う分解反応が生じる。即ち、Ir をルツボやダイとして使用する EFG 法において、Ir の酸化を抑制す

る為に、酸素分圧を数%以下に下げて結晶育成を行った場合、成長した β - Ga_2O_3 結晶中には、酸素不足下で成長した酸化物結晶に多発する高密度の酸素欠損が存在する。酸素欠損はn型不純物として作用し、高濃度のドナーを生成することから、ドナー濃度の精密な制御を困難にしている。

[0006] こうした問題を克服する手段として、Pt-Rh系合金をルツボに用いた垂直ブリッジマン（VB）法による β - Ga_2O_3 単結晶の育成が提案されている（特許文献2及び非特許文献1参照）。垂直ブリッジマン（VB）法や垂直グラディエントフリーズ（VGF）法は、予めルツボ内に原料を充填し、ルツボ上部が高温、ルツボ下部が低温となるように形成された温度勾配下で、ルツボ底部またはルツボ底部に設置した種結晶を起点として原料融液を凝固させることで単結晶を得る方法である。

[0007] VB法やVGF法では、結晶形状がルツボ形状で規定され、結晶育成中の形状制御が不要である。このため、低温度勾配下での育成が可能で、高品質の結晶を得ることが可能となる。図13に、VB法で一般的に用いられる単結晶育成用ルツボ50の形状を示す。単結晶育成用ルツボ50は、側壁部5sと底部5bとを備える。単結晶育成用ルツボ50内で成長した結晶は、育成直後の高温状態から、底面および側面を単結晶育成用ルツボ50と接触した状態で室温まで冷却され、回収される。

[0008] 300Kから1300Kまでの β - Ga_2O_3 の線熱膨張率は、a軸方向で $1.9 \times 10^{-6}/\text{K}$ 、b軸およびc軸方向で $5.9 \times 10^{-6}/\text{K}$ である（非特許文献2及び非特許文献3参照）。一方、Pt-30%Rh合金の0℃から1500℃までの線熱膨張率は約 $11 \times 10^{-6}/\text{K}$ （非特許文献4参照）である。図14に、非特許文献2～4に記載の、Pt-Rh系合金と β - Ga_2O_3 の高温における線熱膨張率を示す。

先行技術文献

特許文献

[0009] 特許文献1：特許3679097号公報

特許文献2：特開2017-193466号公報

非特許文献

[0010] 非特許文献1: K. 干川 (Hoshikawa)、他5名、「雰囲気中での垂直ブリッジマン法を用いた β -Ga₂O₃単結晶の育成」(Growth of β -Ga₂O₃ single crystals using vertical Bridgman method in ambient air)、ジャーナル・オブ・クリスタル・グロース (Journal of Crystal Growth)、エルゼビア (Elsevier)、2016年8月、Vol.447、p.36-41

非特許文献2: エンカーナシオン G. ヴィローラ (Encarnacion G. Villora)、他4名、「高輝度白色LED、LD用 β -Ga₂O₃と単結晶蛍光体及び次世代電力素子用 β -Ga₂O₃ポテンシャル」(β -Ga₂O₃ and single-crystal phosphors for high-brightness white LEDs & LDs, and β -Ga₂O₃ potential for next generation of power devices)、プロシーディング・オブ・エスピーアイイー (Proceedings of SPIE)、(エスピーアイイー) SPIE、2014年4月8日、Vol.8987:「酸化物系材料及び素子5」(Oxide-based Materials and Devices V)

非特許文献3: ファブリオ オルランディ (Fabio Orlandi)、他4名、「 β -Ga₂O₃単結晶の熱膨張係数」(Thermal expansion coefficients of β -Ga₂O₃ single crystals)、アプライド・フィジクス・エクスプレス (Applied Physics Express)、ザ・ジャパン・ソサエティ・オブ・アプライド・フィジクス (The Japan Society of Applied Physics)、2015年11月、Volume 8、Number 11、111101

非特許文献4: B. バーター (Barter)、他2名、「白金-ロジウム合金の熱膨張」(Thermal Expansion of Rhodium-Platinum Alloys)、プラチナ・メタルズ・レビュー (Platinum Metals Review)、ジョンソン・マシリー・ピーエルシー (Johnson Matthey Plc)、1960年10月、volume 4、Issue 4、p.138-140

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0011] ところで、Pt-30%Rh製ルツボで β -Ga₂O₃の単結晶の育成を行

なった場合、ルツボの熱膨張率が単結晶の熱膨張率の約2～6倍であることから、冷却工程でのルツボの収縮率は単結晶の収縮率よりも大きい。ルツボ内部に存在する単結晶は、冷却中にルツボの収縮による圧力を受け続ける。単結晶に加わるルツボの収縮による応力は、単結晶に生じるクラック及び単結晶の結晶性の低下の原因となる。

[0012] 上記の非特許文献1による、Pt-Rh合金ルツボを用いてVB法により育成した $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 単結晶の表面は平滑であり、光沢が見られる。非特許文献1には、育成後の結晶とルツボが付着していない点が記載されている。付着現象が無い場合、単結晶とルツボとの間に応力が作用していなければ、単結晶はルツボから容易に離脱する。

[0013] しかしながら、結晶育成後の冷却工程でルツボからのルツボの収縮による応力が加わった状態では、単結晶は強く締め付けられており、摩擦によりルツボから取り出すことは困難である。単結晶をルツボから回収するには、ルツボを破らざるを得ないことがあり、結晶育成ごとに高価な貴金属製のルツボを壊してしまうことがあるため、単結晶の育成コストが大幅に増加する。

[0014] 本発明は、上述する課題を解決すべくなされたものであり、冷却されたルツボが収縮する応力が育成された単結晶に加わることを低減することが可能な単結晶育成用ルツボ、単結晶製造方法及び当該単結晶製造方法で製造された単結晶を提供することを目的とするものである。

課題を解決するための手段

[0015] 本発明の一側面は、単結晶育成用の原料融液が収容されつつ固化する単結晶育成用ルツボであって、原料融液を囲繞する側壁部と、側壁部と連続しつつ原料融液を支持する底部とを備え、側壁部は、横断面視で内側に周長冗長性を有する単結晶育成用ルツボである。

[0016] この構成によれば、単結晶育成用の原料融液が収容されつつ固化する単結晶育成用ルツボであって、原料融液を囲繞する側壁部と、側壁部と連続しつつ原料融液を支持する底部とを備え、側壁部は横断面視で内側に周長冗長性を有するため、側壁部は横断面視でいずれかの部位に内側に周長が冗長な部

位を有することになり、単結晶育成後の冷却工程で単結晶育成用ルツボが冷却されると、横断面視で周長が冗長な部位が単結晶育成用ルツボの外側に展張するため、冷却された単結晶育成用ルツボが収縮する応力が育成された単結晶に加わることを低減できる。

[0017] また、本発明の他の側面は、単結晶育成用の原料融液が収容されつつ固化する単結晶育成用ルツボであって、原料融液を囲繞する側壁部と、側壁部と連続しつつ原料融液を支持する底部とを備え、側壁部は、横断面視で変曲点を有する単結晶育成用ルツボである。

[0018] この構成によれば、単結晶育成用の原料融液が収容されつつ固化する単結晶育成用ルツボであって、原料融液を囲繞する側壁部と、側壁部と連続しつつ原料融液を支持する底部とを備え、側壁部は水平面による断面視で変曲点を有するため、側壁部は横断面視でいずれかの部位に内側から外側に曲がる部位を有することになり、単結晶育成後の冷却工程で単結晶育成用ルツボが冷却されると、横断面視で単結晶育成用ルツボの内側から外側に曲がる部位が単結晶育成用ルツボの外側に展張するため、冷却された単結晶育成用ルツボが収縮する応力が育成された単結晶に加わることを低減できる。

[0019] これらの場合、側壁部は、横断面視で凹部を有していてもよい。

[0020] この構成によれば、側壁部は横断面視で凹部を有するため、単結晶育成後の冷却工程で単結晶育成用ルツボが冷却されると凹部が単結晶育成用ルツボの外側に展張するため、冷却された単結晶育成用ルツボが収縮する応力が育成された単結晶に加わることを低減できる。

[0021] また、側壁部は、横断面視で滑らかな閉曲線により構成されていてもよい。

[0022] この構成によれば、側壁部は横断面視で滑らかな閉曲線により構成されているため、単結晶育成用ルツボの内部に存在する単結晶の側面に対して単結晶育成用ルツボの側壁部が周方向に移動するときに、単結晶育成用ルツボの側壁部の形状が移動の障害とならず、円滑な移動が可能となる。そのため、単結晶育成用ルツボの側壁部と単結晶の側面との間に部分的に生じた応力を

全体に伝えて応力を緩和できる可能性が向上する。

[0023] また、側壁部は、底部から上方にむけて広がるテーパ形状を有していてもよい。

[0024] この構成によれば、側壁部は底部から上方にむけて広がるテーパ形状を有するため、育成された単結晶を単結晶育成用ルツボから取り出すことがより容易となる。

[0025] また、側壁部及び底部は、Pt及びPt-Rh系合金のいずれかから構成され、原料融液は、 β -Ga₂O₃系単結晶を育成するためのものとできる。

[0026] この構成によれば、側壁部及び底部はPt及びPt-Rh系合金のいずれかから構成され、原料融液は β -Ga₂O₃系単結晶を育成するためのものであり、単結晶育成用ルツボと単結晶との熱膨張率の相違が大きいときであっても、冷却された単結晶育成用ルツボが収縮する応力が育成された単結晶に加わることを低減できる。

[0027] また、側壁部の厚さが1mm以下であってもよい。

[0028] この構成によれば、側壁部の厚さが1mm以下であるため、単結晶育成後の冷却工程で単結晶育成用ルツボが冷却されると側壁部の一部がルツボの外側に展張し易くなるため、冷却された単結晶育成用ルツボが収縮する応力が育成された単結晶に加わることをより低減できる。

[0029] また、本発明の他の側面は、上記本発明の一の側面及び他の側面の単結晶育成用ルツボを使用して単結晶の育成を行う単結晶製造方法である。

[0030] また、本発明の他の側面は、上記本発明の他の側面の単結晶製造方法により製造された単結晶である。

発明の効果

[0031] 本発明の一の側面及び他の側面の単結晶育成用ルツボ、単結晶製造方法及び単結晶によれば、冷却されたルツボが収縮する応力が育成された単結晶に加わることを低減することができる。

図面の簡単な説明

[0032] [図1]第1実施形態に係る単結晶育成装置の構成例を示す図である。

[図2] (A) は単結晶の育成プロセスにおける高さや温度との関係を示すグラフであり、(B)、(C)、(D)、(E)、(F) 及び (G) は単結晶の育成プロセスを示す図である。

[図3] 第 1 実施形態に係る単結晶育成用ルツボの形状を示す概略斜視図である。

[図4] 単結晶育成用ルツボの側壁部の周長冗長性を説明する概略斜視図である。

[図5] (A)、(B) 及び (C) は単結晶育成用ルツボの側壁部の周長冗長性を説明する平面図である。

[図6] (A) 及び (B) は単結晶育成用ルツボの側壁部滑らかさを説明する図である。

[図7] 導関数の連続性の有無により滑らかさを説明する図である。

[図8] 第 2 実施形態に係る単結晶育成用ルツボの側壁部を示す平面図である。

[図9] 実験例で使用された単結晶育成用ルツボの側壁部を示す平面図である。

[図10] (A) は実験例における単結晶育成中の単結晶育成用ルツボの横断面を示す図であり、(B) は実験例における冷却中の単結晶育成用ルツボの横断面を示す図である。

[図11] (A) は実験例における結晶冷却前での単結晶育成用ルツボの横断面を示す図であり、(B) は実験例における結晶冷却後での単結晶育成用ルツボの横断面を示す図である。

[図12] (A) は実験例及び比較例における単結晶の結晶配向性を示すグラフであり、(B) は実験例及び比較例における単結晶の欠陥密度を示すグラフである。

[図13] 一般的に用いられる単結晶育成用ルツボの形状を示す概略斜視図である。

[図14] Pt—Rh 合金、 β -Ga₂O₃ の高温における熱膨張率を示す図である。

発明を実施するための形態

[0033] 以下、本発明の実施形態について図面を用いて詳細に説明する。本発明者は、VB法やVGF法に用いる単結晶育成用ルツボの形状に、独自の工夫を設けることにより、結晶育成後の冷却による単結晶育成用ルツボの収縮による応力が、単結晶育成用ルツボの内部に存在する結晶に加わらない方法を見出した。この知見をもとに、本発明の実施形態を完成するに至った。

[0034] (育成装置の構成例)

本発明の第1実施形態に係る β -Ga₂O₃結晶の育成装置において、結晶育成に使用する単結晶育成用ルツボの材料には、Pt-Rh系合金材料を使用する。本発明の第1実施形態による単結晶育成用ルツボについては後述する。図1に、第1実施形態に係る β -Ga₂O₃を育成する単結晶育成装置1の構成例を示す。図1は単結晶育成装置1の単結晶育成用ルツボ5Aの中心軸を通る面における断面構成図を示している。この単結晶育成装置1は、酸化雰囲気（大気中）において、VB法（垂直ブリッジマン法）により β -Ga₂O₃結晶を育成する装置となっている。

[0035] 単結晶育成装置1には、チャンバ2の内壁に沿って、断熱材3が設けられている。断熱材3に囲まれた内部空間には、ヒータ4、単結晶育成用ルツボ5A及び単結晶育成用ルツボ5Aを保持するルツボ保持具6が設けられている。ルツボ保持具6は、ルツボ受軸7により底部から支持される。

[0036] 単結晶育成用ルツボ5Aの内部には、種結晶10と、種結晶10の上部に原料9とが積み上げられて収納される。単結晶育成用ルツボ5Aでは、単結晶育成用の原料融液8が収容されつつ固化する。単結晶育成用ルツボ5Aは、原料融液8を囲繞する側壁部5sと、側壁部5sと連続しつつ原料融液8を支持する底部5bとを備える。単結晶育成用ルツボ5Aの周囲には、図示されない熱電対等の測温手段が設けられており、種結晶10近傍の温度、単結晶育成用ルツボ5Aの上部及び下部の温度等が、結晶育成中に計測できる。

[0037] ルツボ受軸7は、図示しない駆動機構により上下に駆動可能であり、単結晶育成中に、ヒータ4に対する単結晶育成用ルツボ5Aの相対的な位置を連

続的に制御することが可能である。ルツボ受軸 7 は、軸線を中心として回転することにより、ヒータ 4 内部で単結晶育成用ルツボ 5 A を回転させてもよい。断熱材 3、ルツボ保持具 6 及びルツボ受軸 7 は、アルミナ製又は 2000℃程度までの耐熱性を有するジルコニア製とするのが望ましい。

[0038] ヒータ 4 により、単結晶育成用ルツボ 5 A が加熱される。単結晶育成用ルツボ 5 A の内部の温度が、 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の融点（約 1800℃）以上の温度に達することが必要であり、抵抗加熱法または高周波加熱法が適用されることが多い。ヒータ 4 は、複数の温度制御システムにより、上下方向の温度分布を制御できることが望ましく、ヒータ 4 および断熱材 3 の配置、形状により、単結晶育成中、単結晶育成用ルツボ 5 A 内は、上方が高温で下方が低温となるような温度分布が形成できる。

[0039] （単結晶育成プロセスの説明）

$\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 単結晶の育成工程、つまり単結晶製造方法を、図 2（A）～（G）を用いて説明する。まず単結晶育成用ルツボ 5 A 内には $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の種結晶 10 が配置され、その上方に原料 9 が充填される（図 2（B））。単結晶育成用ルツボ 5 A は、加熱前に一時的にヒータ 4 に対して十分に下方に下げられており、炉内温度が融点近傍に達するのと前後して上昇させていく。

[0040] 単結晶育成用ルツボ 5 A 近傍に設置されたヒータ 4 により加熱され、 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 融点近傍の約 1800℃に達した単結晶育成用ルツボ 5 A 内の温度分布は、 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の融点を跨いで、上部側が融点以上の温度、下部側が融点以下の温度となる様に制御される（図 2（A））。

[0041] 単結晶育成用ルツボ 5 A が上昇されると、内部に収納された原料 9 の上部から、融点より高温の領域に進入するため、原料 9 の上部から融解が始まり、原料融液 8 となる（図 2（C））。単結晶育成用ルツボ 5 A 内に収納された種結晶 10 の上部が融点領域に達し、種結晶 10 上端が融解した段階で単結晶育成用ルツボ 5 A の上昇が停止される。この時、種結晶 10 上方に位置する原料 9 は、全て融点より高い領域に位置するため、原料 9 は全て原料融

液 8 の状態になっている（図 2（D））。

[0042] 次いで所定の下降速度で単結晶育成用ルツボ 5 A の降下が開始されると、原料融液 8 の下部から徐々に固化していく。この時、原料融液 8 は、種結晶 1 0 又は種結晶 1 0 の結晶方位に沿って単結晶化した部分と常に接した状態で析出していくため、固化部分は種結晶 1 0 の結晶方位に沿った単結晶 1 1 として成長していく（図 2（E））。

[0043] 原料融液 8 の全体が固化するまで単結晶育成用ルツボ 5 A が下降され、単結晶育成が終了した後（図 2（F））、ヒータ 4 の出力を下げ、炉内最高温度が $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 融点を下回る状態にまで温度が下げられる。最終的に炉内温度が室温まで下げられ、育成した単結晶が回収されるが、室温までの冷却に当たって、単結晶育成用ルツボ 5 A の位置を温度勾配の少ない上方の領域にまで移動させ、所要時間アニール処理を実施し、育成中の温度分布に起因する結晶内の残留応力を低下させることが望ましい（図 2（G））。

[0044] （単結晶育成用ルツボの形状について）

（単結晶育成用ルツボの側壁部の周長冗長性について）

図 3、図 4、図 5（A）、図 5（B）及び図 5（C）を用いて、単結晶育成用ルツボ 5 の側面部 s の周長冗長性を説明する。図 3 は第 1 実施形態に係る単結晶育成用ルツボ 5 A の形状を示す概略斜視図であり、図 4 は単結晶育成用ルツボ 5 の水平断面形状を示す斜視図であり、図 5（A）、図 5（B）及び図 5（C）は平面図である。図 3 に示すように、単結晶育成用ルツボ 5 A は、原料融液 8 を囲繞する側壁部 5 s と、側壁部 5 s と連続しつつ原料融液 8 を支持する底部 5 b とを備える。後述するように側壁部 5 s は、横断面視で凹部 D を有する。

[0045] 図 4 に示すように、単結晶 1 1 を横切る水平面 S 上において、水平面 S 上のルツボ断面領域 C を規定する。図 5（A）に示すように、ルツボ断面領域 C を含む水平面 S 上の閉曲線 L の中で、図 5（B）に示すように、閉曲線 L の周長が最も短くなる閉曲線を閉曲線 L_{min} とし、この時の周長を l_{min} とする。図 5（C）に示すように、ルツボ断面領域 C の境界を示す閉曲線

Rの周長を r とする。 r が l_{min} より長い状態であり、閉曲線 L_{min} の内側に閉曲線Rが位置することを、側壁部5sは横断面視で内側に周長冗長性を有すると定義する。

[0046] 本実施形態においては、原料9が融点以上の温度範囲において、側壁部5sは横断面視で内側に周長冗長性を有する。単結晶育成用ルツボ5Aの熱膨張率が、その内部で育成する単結晶11の熱膨張率より大きく、単結晶育成後の冷却工程において、単結晶育成用ルツボ5Aの収縮が単結晶11の収縮を上回る場合においても、内側に周長冗長性を有する状態においては、側壁部5sの周長に外側に展張して収縮する余地があるため、単結晶11への圧縮応力が印加されない。さらに、本実施形態においては、原料9が融点未満の温度範囲においても、冷却中に側壁部5sの周長への展張が生じているが、完全に展張しきっておらず周長冗長性が残存する。

[0047] 従って、単結晶育成後の冷却工程において、応力による単結晶11の結晶性低下を抑制できる。さらに室温において単結晶育成用ルツボ5Aから単結晶11を取り出す際に、単結晶育成用ルツボ5Aと単結晶11の間に収縮に伴う応力が作用していないため摩擦抵抗が少なく、単結晶育成用ルツボ5Aを破壊せずにより容易に単結晶11を回収することが可能となる。

[0048] (単結晶育成用ルツボの側壁部の変曲点について)

図5(C)を用いて、単結晶育成用ルツボ5の側壁部5sの変曲点について説明する。図5(C)に示すように、本実施形態では、閉曲線Rで規定される側壁部5sは、横断面視で変曲点Pを有する。変曲点Pは、水平面S上の閉曲線Rで曲率の正及び負の符号が変化し、曲率が0となる点をいう。側壁部5sは、横断面視で変曲点Pを有する状態においては、横断面視で単結晶育成用ルツボ5Aの内側から外側に曲がる部位が単結晶育成用ルツボ5Aの外側に展張するため、単結晶11への圧縮応力が印加されない。したがって、応力による単結晶11の結晶性低下を抑制でき、単結晶育成用ルツボ5Aを破壊せずにより容易に単結晶11を回収することが可能となる。

[0049] (凹部について)

図5（C）に示すように、側壁部5sを規定する閉曲線R中の2点を結ぶ線分の少なくとも一部が閉曲線Rの外側に位置する場合は、側壁部5sは横断面視で凹部Dを有すると定義する。本実施形態では、単結晶育成用ルツボ5Aの側壁部5sに内側に周長冗長性及び変曲点Pを与える手段として、単結晶育成用ルツボ5Aの側壁部5sと水平面Sとの交点で定まる閉曲線Rに凹部Dを与える。

[0050] 単結晶育成用ルツボ5Aの側壁部5sに凹部Dを設けることで、凹部Dが単結晶育成用ルツボ5Aの外側に展張するため、単結晶11への圧縮応力が印加されない。したがって、応力による単結晶11の結晶性低下を抑制でき、単結晶育成用ルツボ5Aを破壊せずにより容易に単結晶11を回収することが可能となる。また、外側に展張した凹部Dにより、冷却後の側壁部5sの内面と単結晶11の側面との間に空間が生じる。この空間に薄く扁平状の治具を差し入れ、単結晶11の側面に平行に動かすことで、単結晶11と単結晶育成用ルツボ5Aを分離しやすくなる。

[0051] （滑らかさについて）

本実施形態では、単結晶育成用ルツボ5Aの側壁部5sは、横断面視で滑らかな閉曲線Rにより構成されている。図6（A）及び図6（B）を用いて、単結晶育成用ルツボ5Aの側壁部5sの水平方向の断面形状を、閉曲線Rの関数 $r(\theta)$ で表す場合を用いて説明する。ここで、角度 θ は、水平面S上の任意の方向に対する角度を示す。単結晶育成用ルツボの中心から角度 θ をなす方向の半径を r とする。この関数が導関数 $dr/d\theta$ を有し、この導関数が連続である場合、側壁部5sは横断面視で滑らかな閉曲線により構成されていると定義する。

[0052] 図6（A）に、側壁部5sが横断面視で滑らかな閉曲線により構成されている例を示す。図6（B）に、側壁部5sが横断面視で滑らかな閉曲線により構成されていない例を示す。さらに、図6（A）及び図6（B）の双方の形状から求めたそれぞれの導関数を角度に対して表示した例を図7に示す。図7の実線で示される曲線が、図6（A）の滑らかな形状の閉曲線の導関数

を示す。一方、図7の点線で示される曲線は、図6（B）の滑らかでない形状の閉曲線の導関数を示す。

[0053] 図7より明らかなように、実線は連続な線として表示される。一方、点線は θ が $\pm 45^\circ$ の位置で、分離され不連続となる。従って、導関数の連続性を以て、単結晶育成用ルツボ5Aの側壁部5sの水平断面形状が滑らかであるか否かを定義することができる。

[0054] 単結晶育成用ルツボ5Aの側壁部5sが横断面視で滑らかな閉曲線により構成されていれば、単結晶育成用ルツボ5Aの内部に存在する単結晶11の側面に対して単結晶育成用ルツボ5Aの側壁部5sが周方向に移動するときに、単結晶育成用ルツボ5Aの側壁部5sの形状が移動の障害とならず、円滑な移動が可能となる。そのため、単結晶育成用ルツボ5Aの側壁部5sと単結晶11の側面との間に部分的に生じた応力を全体に伝えて応力を緩和できる可能性が向上する。

[0055] （テーパ形状について）

図1及び図3に示すように、本実施形態の単結晶育成用ルツボ5Aの側壁部5sは、底部5bから上方にむけて広がるテーパ形状を有する。側壁部5sは、底部5bから側壁部5sの上端の範囲で $1\sim 3^\circ$ の角度で外側に広がっている。これにより、育成された単結晶11を単結晶育成用ルツボ5Aから取り出すことがより容易となる。

[0056] （単結晶育成用ルツボの材質及び育成される単結晶について）

本実施形態では、単結晶育成用ルツボ5Aは、白金及び白金－ロジウム合金のいずれかから構成され、望ましくはロジウムの重量比が20%以上、より望ましくは30%の組成を有する。一方、原料融液8は、 $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 系の単結晶11を育成するためのものである。本実施形態では、単結晶育成用ルツボ5Aと単結晶11との熱膨張率の相違が大きいときであっても、冷却された単結晶育成用ルツボ5Aが収縮する応力が育成された単結晶11に加わることを低減できる。

[0057] （単結晶育成用ルツボの側壁部の厚さについて）

本実施形態では、単結晶育成用ルツボ 5 A の側壁部 5 s の厚さが 1 mm 以下である。側壁部 5 s の厚さは、望ましくは 0.5 mm 以下、より望ましくは 0.2 mm 以下である。本実施形態では、側壁部 5 s の厚さが 1 mm 以下と薄いため、単結晶育成後の冷却工程で単結晶育成用ルツボ 5 A が冷却されると側壁部 5 s の凹部 D 等が単結晶育成用ルツボ 5 A の外側に展張し易くなるため、冷却された単結晶育成用ルツボ 5 A が収縮する応力が育成された単結晶 1 1 に加わることをより低減できる。

[0058] 本実施形態では、単結晶育成用の原料融液 8 が収容されつつ固化する単結晶育成用ルツボ 5 A であって、原料融液 8 を囲繞する側壁部 5 s と、側壁部 5 s と連続しつつ原料融液 8 を支持する底部 5 b とを備え、側壁部 5 s は横断面視で内側に周長冗長性を有するため、側壁部 5 s は横断面視でいずれかの部位に内側に周長が冗長な部位を有することになり、単結晶育成後の冷却工程で単結晶育成用ルツボ 5 A が冷却されると、横断面視で内側に周長が冗長な部位が単結晶育成用ルツボ 5 A の外側に展張するため、冷却された単結晶育成用ルツボ 5 A が収縮する応力が育成された単結晶 1 1 に加わることを低減できる。

[0059] また、本実施形態では、単結晶育成用の原料融液 8 が収容されつつ固化する単結晶育成用ルツボ 5 A であって、原料融液 8 を囲繞する側壁部 5 s と、側壁部 5 s と連続しつつ原料融液 8 を支持する底部 5 b とを備え、側壁部 5 s は水平面による断面視で変曲点 P を有するため、側壁部 5 s は横断面視でいずれかの部位に内側から外側に曲がる部位を有することになり、単結晶育成後の冷却工程で単結晶育成用ルツボ 5 A が冷却されると、横断面視で内側から外側に曲がる部位が単結晶育成用ルツボ 5 A の外側に展張するため、冷却された単結晶育成用ルツボ 5 A が収縮する応力が育成された単結晶 1 1 に加わることを低減できる。

[0060] また、本実施形態によれば、側壁部 5 s は横断面視で凹部 D を有するため、単結晶育成後の冷却工程で単結晶育成用ルツボ 5 A が冷却されると凹部 D が単結晶育成用ルツボ 5 A の外側に展張するため、冷却された単結晶育成用

ルツボ5 Aが収縮する応力が育成された単結晶1 1に加わることを低減できる。

[0061] また、本実施形態によれば、側壁部5 sは横断面視で滑らかな閉曲線Rにより構成されているため、単結晶育成用ルツボ5 Aの内部に存在する単結晶1 1の側面に対して単結晶育成用ルツボ5 Aの側壁部5 sが周方向に移動するときに、単結晶育成用ルツボの側壁部5 sの形状が移動の障害とならず、円滑な移動が可能となる。そのため、単結晶育成用ルツボ5 Aの側壁部5 sと単結晶1 1の側面との間に部分的に生じた応力を全体に伝えて応力を緩和できる可能性が向上する。

[0062] また、本実施形態によれば、側壁部5 sは底部5 bから上方にむけて広がるテーパ形状を有するため、育成された単結晶1 1を単結晶育成用ルツボ5 Aから取り出すことがより容易となる。

[0063] また、本実施形態によれば、側壁部5 s及び底部5 bは Pt 及び $Pt-Rh$ 系合金のいずれかから構成され、原料融液は $\beta-Ga_2O_3$ 系単結晶を育成するためのものであり、単結晶育成用ルツボ5 Aと単結晶1 1との熱膨張率の相違が大きいときであっても、冷却された単結晶育成用ルツボ5 Aが収縮する応力が育成された単結晶1 1に加わることを低減できる。

[0064] また、本実施形態によれば、側壁部5 sの厚さが1 mm以下であるため、単結晶育成後の冷却工程で単結晶育成用ルツボ5 Aが冷却されると側壁部5 sの一部が単結晶育成用ルツボ5 Aの外側に展張し易くなるため、冷却された単結晶育成用ルツボ5 Aが収縮する応力が育成された単結晶1 1に加わることをより低減できる。

[0065] (変形例)

以下、本発明の第2実施形態について説明する。図8に示すように、本実施形態の単結晶育成用ルツボ5 Bでは、側壁部5 sは、横断面視で複数の凹部Dを有し、複数対の変曲点Pを有する。図8の例では、側壁部5 sは、横断面視で8つの凹部Dを有し、8対の変曲点Pを有する。複数の凹部Dは同じ形状を有する。複数の凹部D及び複数対の変曲点Pは、側壁部5 sに等間

隔で配置されている。本実施形態では、横断面視で、複数の凹部D及び複数対の変曲点Pが側壁部5sに等間隔で配置されているため、冷却された単結晶育成用ルツボ5Bが収縮する応力が育成された単結晶11に加わることを側壁部5sの全周でより均一に低減できる。

[0066] 以上、本発明の実施形態について説明したが、本発明は上記実施形態に限定されることなく様々な形態で実施される。例えば、上記実施形態以外にも、側壁部5sが横断面視で内側に周長冗長性を有する態様、側壁部5sが横断面視で変曲点Pを有する態様、凹部Dの位置及び凹部Dの数量は適宜変更可能である。

[0067] (実験例)

以下に、本発明の実施形態を実施例により説明するが、本発明の実施形態は以下の実施例にのみ限定されるものではない。図1で示される単結晶育成装置1を用いて、VB法により β -Ga₂O₃単結晶が育成された。本実験例では、図9に示すようなRh含有量20wt%のPt-Rh系合金で、厚さ0.5mmの薄板より加工作製した単結晶育成用ルツボ5Aが使用された。単結晶育成用ルツボ5Aの直径は約100mmであり、側壁部5sの上下方向の長さは150mmである。側壁部5sは、底部5bから上方にむけて約2°の角度で拡がるテーパ形状を有する。

[0068] 図9に示すように、1つの凹部Dが、単結晶育成用ルツボ5Aの中心から90°の範囲で側壁部5sに配置されている。凹部Dの中央部は、単結晶育成用ルツボ5Aの中心から56.57mmの位置を中心とした曲率半径が30mmの曲線により構成されている。凹部Dの両端部のそれぞれは、曲率半径が10mmの曲線により構成されている。

[0069] 単結晶育成用ルツボ5Aは育成前に、大気中で約1200℃のアニールによる焼き鈍し処理が施されており、側面に力を加えると容易に変形する状態となっている。単結晶育成用ルツボ5Aの底部5bに、単結晶11の成長核となる種結晶10が設置された。種結晶10は直径5mm、長さは約20mmの円柱形状で、単結晶育成用ルツボ5A内で円柱が直立するように配置さ

れた。円柱上面が、単斜晶系の $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の(100)面、即ちa面となる様に結晶方位が選択された。

[0070] 粉末の酸化ガリウムが金型内に充填され、プレス機を用いて約10kgf/mm²の圧力で圧縮成形がされた。さらに圧縮成形された酸化ガリウム粉末が1450℃、6時間焼成された。得られた焼結体の密度は約4.2となる。直径が約100mmであり、厚さが30mmとなる焼結体が中心角90°の扇型に4分割され、原料9として単結晶育成用ルツボ5Aの内側に積み上げられた。

[0071] 上記の(単結晶育成プロセスの説明)の手順に従って、単結晶11の育成が行われた。本実験例では、図10(A)に示すように、単結晶育成用ルツボ5Aの内部の $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ の原料9が融解して原料融液8の状態にある時は、原料融液8の液圧により、単結晶育成用ルツボ5Aの水平断面形状が変形しない様に、ルツボ外周押さえ治具12が単結晶育成用ルツボ5Aの凹部Dに当接させられた。

[0072] 結晶育成終了後、即ちルツボ05内部の原料融液8が完全に固化した後、冷却工程に進む前に、図10(B)に示す様に、ルツボ外周押さえ治具12を凹部Dから取り除かれた。これにより、単結晶育成用ルツボ5Aに形成された凹部Dの前方に空間が生じ、単結晶育成用ルツボ5Aが凹部Dの位置にて外側に拡がることが可能となる。

[0073] 結晶育成後の、冷却工程に入る前の状態を図11(A)に、冷却工程を終えた後の状態を図11(B)に示す。単結晶育成プロセスを経て、室温まで冷却した単結晶育成装置1から、単結晶育成用ルツボ5Aが回収されると、図11(B)に示すように、単結晶育成用ルツボ5Aの凹部Dにおいて、側壁部5sと単結晶11の間に隙間13が生じていた。

[0074] 冷却工程で生じる単結晶育成用ルツボ5Aの熱収縮が応力として単結晶11を締め付けていない為、隙間13にヘラ状の治具が挿入され、単結晶11の側面に沿って移動させられると、大きな抵抗もなく治具を動かすことが可能で、治具移動に伴い単結晶育成用ルツボ5Aと単結晶11は、固着もなく

容易に剥離した。単結晶育成用ルツボ5 Aの開口部から奥に向けて、冶具が更に深く挿入され、単結晶1 1の側面全体に対して同様の剥離操作が行われた後、単結晶育成用ルツボ5 Aの開口部を下にして、単結晶育成用ルツボ5 Aの全体が注意深く揺らされると、単結晶1 1が自重により単結晶育成用ルツボ5 Aから落下し、単結晶1 1を回収することが出来た。

[0075] 冶具挿入による剥離操作で、単結晶育成用ルツボ5 Aの形状に若干の変形が数か所生じたが、何れも軽微なもので、成型による修復で単結晶1 1の育成前の形状に戻すことが可能であった。亀裂等がなく、容器として漏洩していないことが確認され、単結晶育成用ルツボ5 Aの内部が酸洗浄された後、単結晶育成用ルツボ5 Aが次の単結晶1 1の育成に再利用された。同様にして、計1 0回の単結晶育成が行われたところ、全1 0回とも側面にクラックのない単結晶1 1が得られた。

[0076] (比較例)

実験例と同じ単結晶育成装置1を用いて、VB法により $\beta\text{-Ga}_2\text{O}_3$ 単結晶が育成された。図1 3に示すように、単結晶育成用ルツボ5 0の側壁部5 sの横断面形状が略正円であり、側壁部5 sに凹部Dが設けられていない単結晶育成用ルツボ5 0を用いた点を除けば、その他の点では実験例と同じ条件で単結晶1 1の育成が行われた。側壁部5 sに凹部Dが形成されていない為、単結晶育成用ルツボ5 0の内部に原料融液8が存在する状態で、ルツボ外周押さえ冶具1 2を単結晶育成用ルツボ5 0の側壁部5 sに当てる作業及び冷却工程に進む前にルツボ外周押さえ冶具1 2を単結晶育成用ルツボ5 0の側壁部5 sから取り外す作業は省略された。

[0077] 単結晶育成プロセスを経て、室温まで冷却した単結晶育成装置1から、単結晶育成用ルツボ5 0が回収されると、単結晶育成用ルツボ5 0の側壁部5 sと単結晶1 1の間に隙間1 3が無く密着していた。冷却工程で生じる単結晶育成用ルツボ5 0の熱収縮が応力として単結晶1 1を締め付けている為、へら状の冶具が無理に単結晶1 1と単結晶育成用ルツボ5 0の側壁部5 sとの間にこじ入れられると、単結晶育成用ルツボ5 0の開口部から亀裂が生じ

た。単結晶育成用ルツボ50の開口部が変形して、ヘラ状冶具の先端部が単結晶11と単結晶育成用ルツボ50の側壁部5sとの間に入っても、亀裂を拡げず、単結晶11の側面に沿って動かすことは困難であった。

[0078] 結局、単結晶育成用ルツボ50を破壊することなしに単結晶11と取り出すことは出来ず、単結晶育成用ルツボ50の再利用は不可能であった。また、取り出された単結晶11の側面には、複数のクラックが認められた。

[0079] (結晶性の比較)

上記の実験例及び比較例により育成された単結晶の結晶性が以下のようにして評価された。

[0080] (結晶性の評価)

育成された単結晶11に対する結晶性の評価は、結晶配向性および欠陥密度の測定により行われた。評価に先立ち、評価用の基板を育成した単結晶11から主面が(100)面となるように約1cm角、厚さ約0.4mmの薄片が切り出され、表裏の主面を鏡面研磨した単結晶基板が作製された。両主面は更に、コロイダルシリカを用いたCMP (Chemical Mechanical Polishing) により、加工ダメージ層を除去した状態に仕上げられた。評価用基板は、単結晶11の中央部から4枚、単結晶の外周から約1cm内側の位置から、実験例においては7枚、比較例においては8枚作製され、それぞれの平均値とバラツキが評価値とされた。

[0081] (結晶配向性)

育成された単結晶11の結晶性は、RIGAKU社製SmartLab (商品名) を用いてX線ロックングカーブ (XRC) の半値幅 (FWHM) が測定された。測定には、二結晶のGe (220) をモノクロメータとして用い、単色化したX線 ($\text{Cu K}\alpha 1$: $\lambda = 1.5405 \text{ \AA}$) による(400)面の回折を ω スキャンすることにより、結晶の配向性が評価された。

[0082] (欠陥密度)

熱リン酸 (85wt% H_3PO_4 : 140°C) を用いたケミカルエッチングにより、欠陥密度が測定された。基板表面近傍の欠陥が存在する部分は、

欠陥が存在しない部分と比較して、エッチング速度が大きくなる為、エッチングにより、基板表面に窪み（エッチピット）として出現する。 $[010]$ 方向に伸びた、長さ数 μm ～数百 μm の線状のピットの単位面積当たりの密度が測定され、欠陥密度として評価された。

[0083] （結晶性の評価結果）

図12（A）及び図12（B）に、上記の実験例及び比較例により育成された単結晶の結晶性の評価結果を示す。図12（A）はX線ロックアップカーブの測定結果を示し、図12（B）は熱リン酸エッチングの結果を示す。実験例の結果は黒丸（●）でプロットし、比較例の結果は白丸（○）でプロットし、更に評価用基板を単結晶から切り出した場所より、内側と外側に分類して図示した。

[0084] 図12（A）に示したX線ロックアップカーブの測定結果において、実験例の測定結果では結晶の内側と外側で大差はなく、何れも半値全幅（FWHM）は 100 arcsec を下回る結果となった。一方、比較例で育成された単結晶11は、実験例で育成された単結晶11と比較して、全体的に半値全幅が大きく、外側でその傾向が顕著に表れている。これは、外側でのロックアップカーブにピークがスプリットする現象が観られ、半値全幅の平均値ならびにバラツキを大きくしてしまった結果である。

[0085] 図12（B）に示した熱リン酸エッチング結果において、実験例で育成された単結晶11では、単結晶11の内側と外側での変化は少なく、エッチピット密度の平均値は $1500/\text{cm}^2$ を下回る結果であった。一方、比較例で育成した単結晶11のエッチピット密度は、実験例で育成した単結晶11と比較して、全体的に高く、中でも外側で高密度となる。実験例と比較して比較例では、帯状のピット高密度領域が多く、外側に多く分布していた。

[0086] 以上の様に、X線ロックアップカーブ測定及び熱リン酸エッチングによるエッチピット密度測定結果の双方において、本実験例による単結晶育成方法により、結晶外側での結晶性高品質化の効果が認められた。

産業上の利用可能性

[0087] 本発明の実施形態の単結晶育成用ルツボ、単結晶製造方法及び単結晶によれば、冷却されたルツボが収縮する応力が育成された単結晶に加わることを低減することができる。

符号の説明

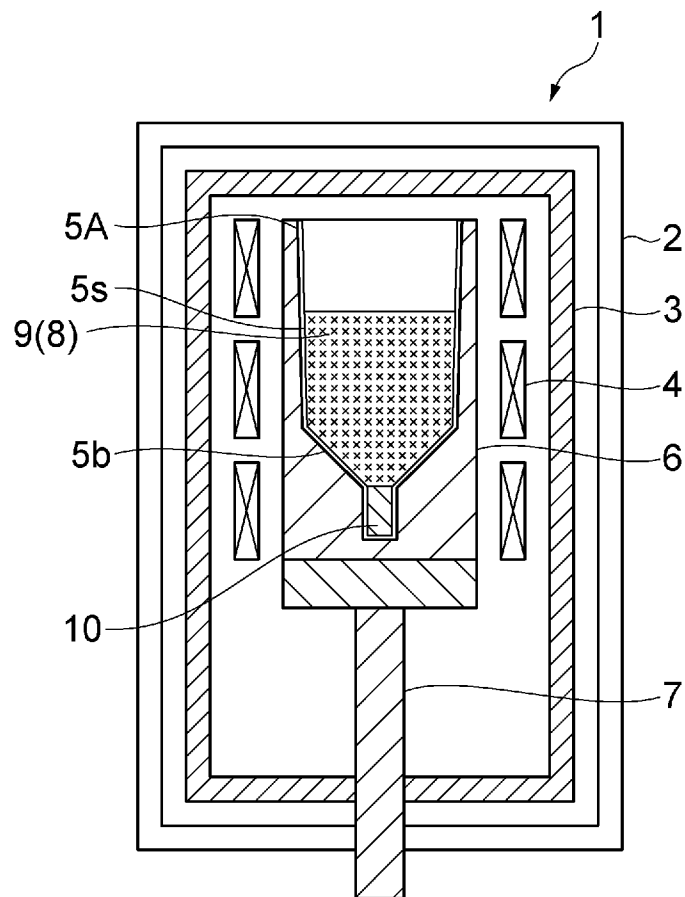
[0088] 1…単結晶育成装置、2…チャンバ、3…断熱材、4…ヒータ、5 A, 5 B…単結晶育成用ルツボ、5 s…側壁部、5 b…底部、6…ルツボ保持具、7…ルツボ受軸、8…原料融液、9…原料、10…種結晶、11…単結晶、12…ルツボ外周押さえ治具、13…隙間、50…単結晶育成用ルツボ、S…水平面、C…ルツボ断面領域、L m i n…閉曲線、R…閉曲線、P…変曲点、D…凹部。

請求の範囲

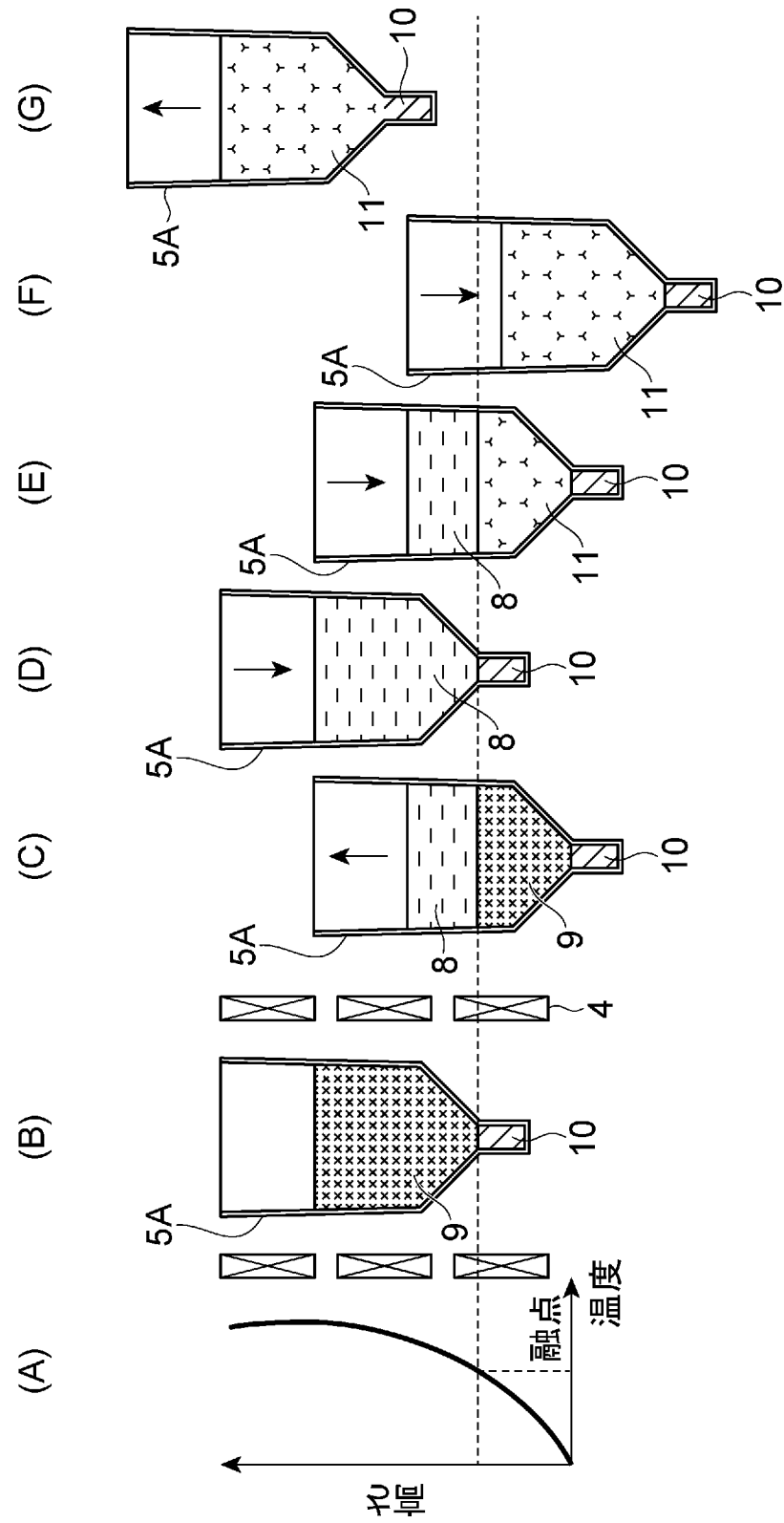
- [請求項1] 単結晶育成用の原料融液が収容されつつ固化する単結晶育成用ルツボであって、
- 前記原料融液を囲繞する側壁部と、
- 前記側壁部と連続しつつ前記原料融液を支持する底部と、
- を備え、
- 前記側壁部は、横断面視で内側に周長冗長性を有する、単結晶育成用ルツボ。
- [請求項2] 単結晶育成用の原料融液が収容されつつ固化する単結晶育成用ルツボであって、
- 前記原料融液を囲繞する側壁部と、
- 前記側壁部と連続しつつ前記原料融液を支持する底部と、
- を備え、
- 前記側壁部は、横断面視で変曲点を有する、単結晶育成用ルツボ。
- [請求項3] 前記側壁部は、横断面視で凹部を有する、請求項1又は2に記載の単結晶育成用ルツボ。
- [請求項4] 前記側壁部は、横断面視で滑らかな閉曲線により構成されている、請求項1～3のいずれか1項に記載の単結晶育成用ルツボ。
- [請求項5] 前記側壁部は、前記底部から上方にむけて広がるテーパ形状を有する、請求項1～4のいずれか1項に記載の単結晶育成用ルツボ。
- [請求項6] 前記側壁部及び前記底部は、 Pt 及び $Pt-Rh$ 系合金のいずれかから構成され、前記原料融液は、 $\beta-Ga_2O_3$ 系単結晶を育成するためのものである、請求項1～5のいずれか1項に記載の単結晶育成用ルツボ。
- [請求項7] 前記側壁部の厚さが1 mm以下である、請求項1～6のいずれか1項に記載の単結晶育成用ルツボ。
- [請求項8] 請求項1～7のいずれか1項に記載の単結晶育成用ルツボを使用して単結晶の育成を行う単結晶製造方法。

[請求項9] 請求項8に記載の単結晶製造方法により製造された単結晶。

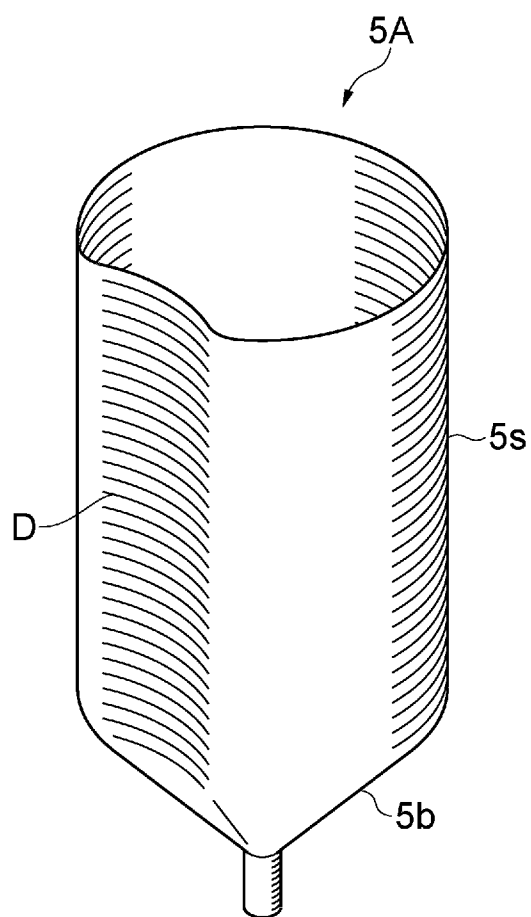
[図1]



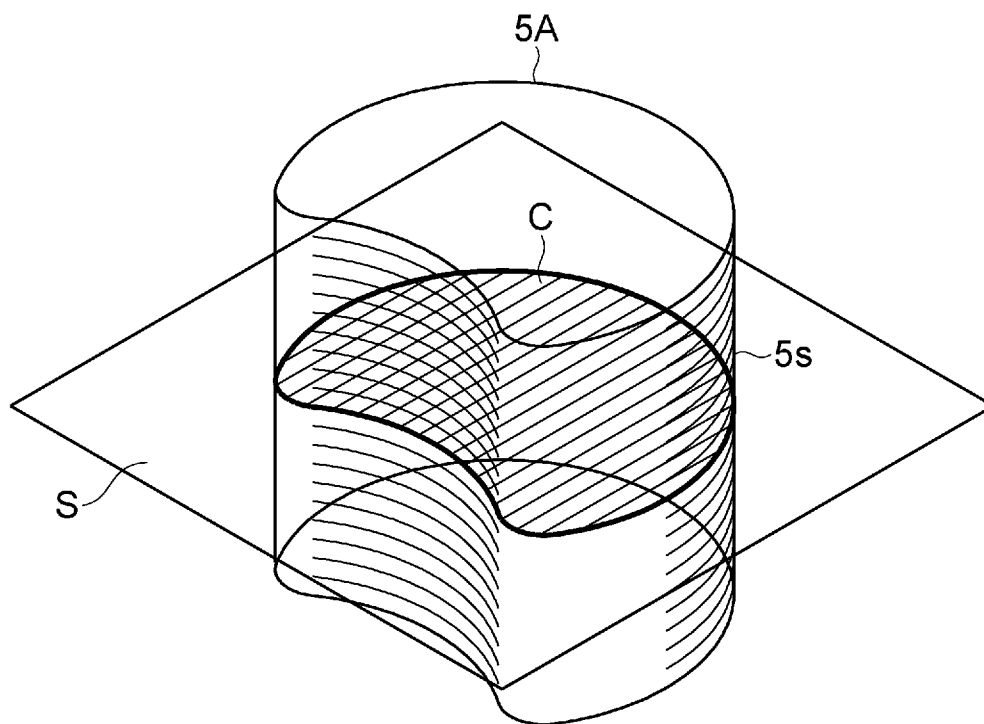
[図2]



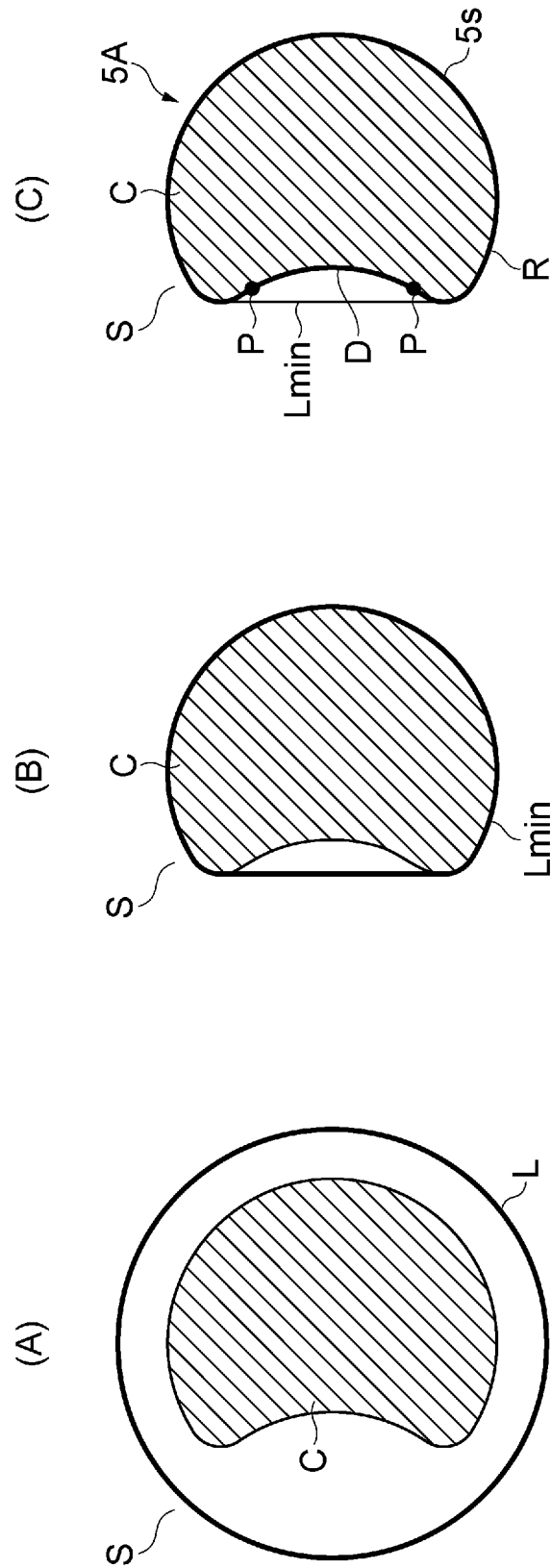
[図3]



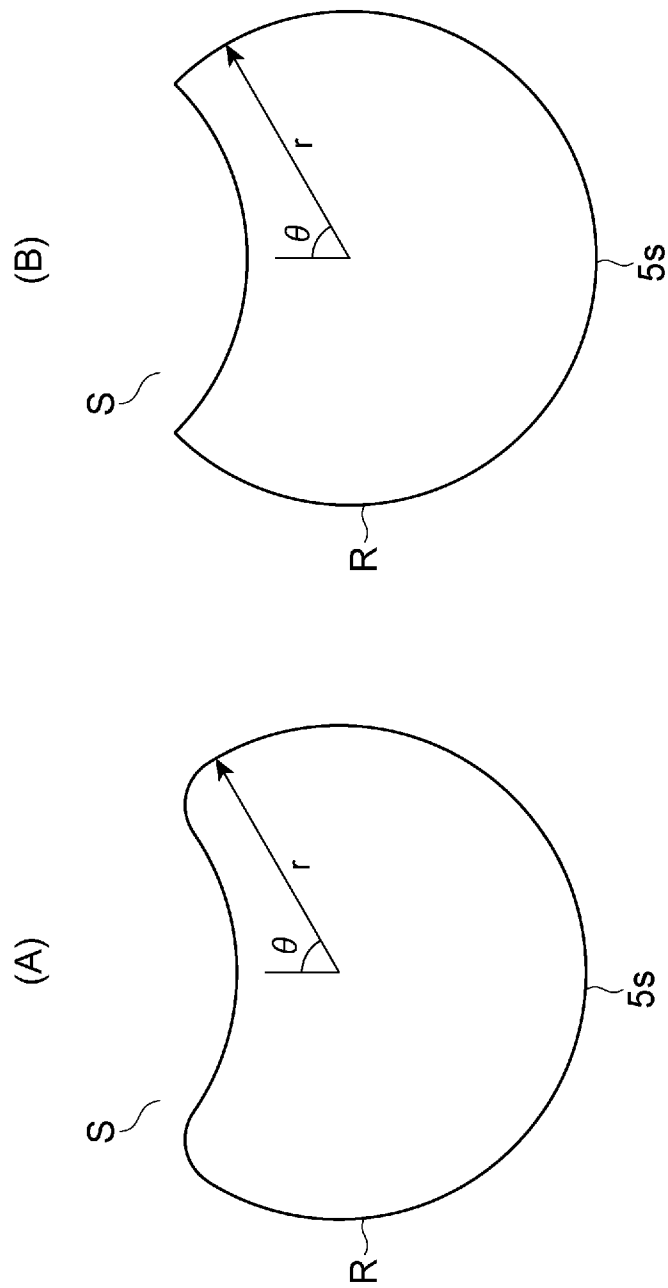
[図4]



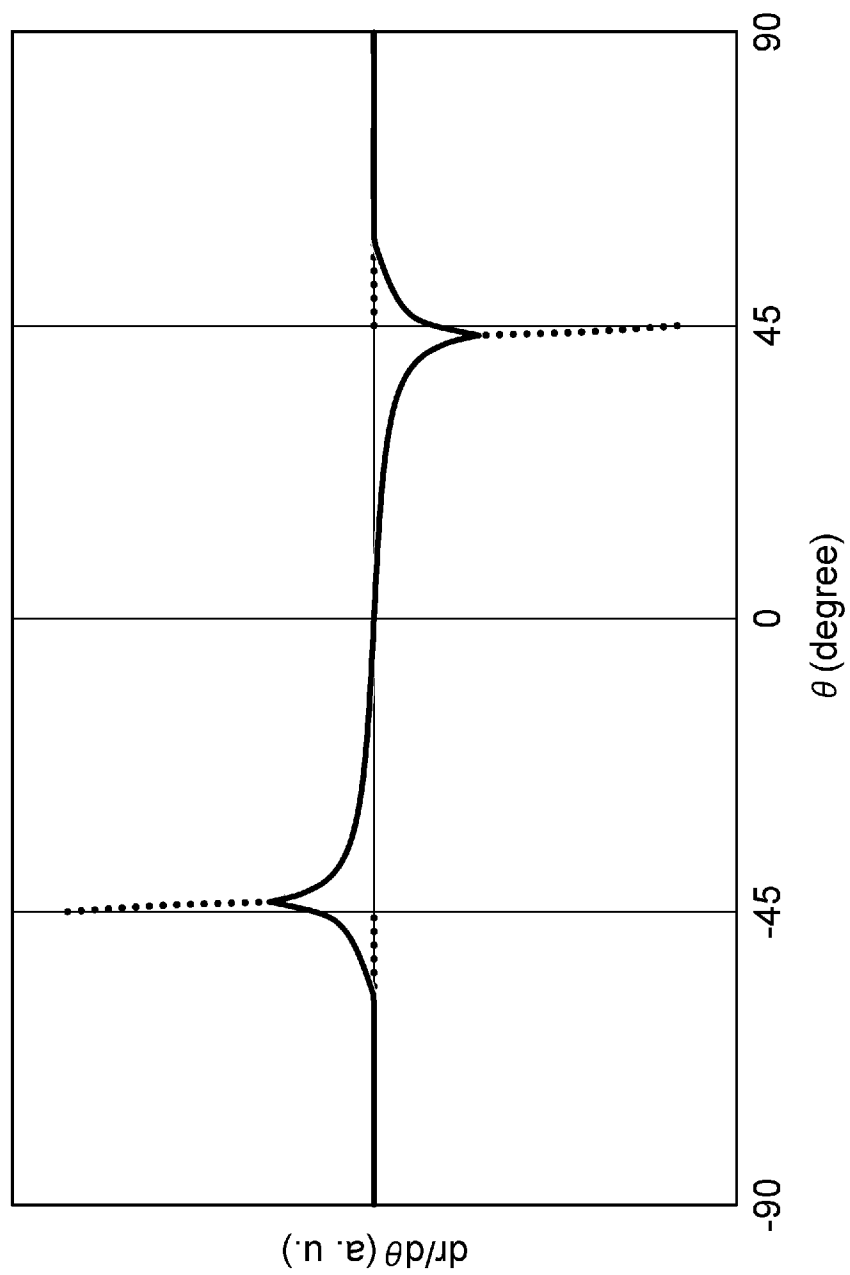
[図5]



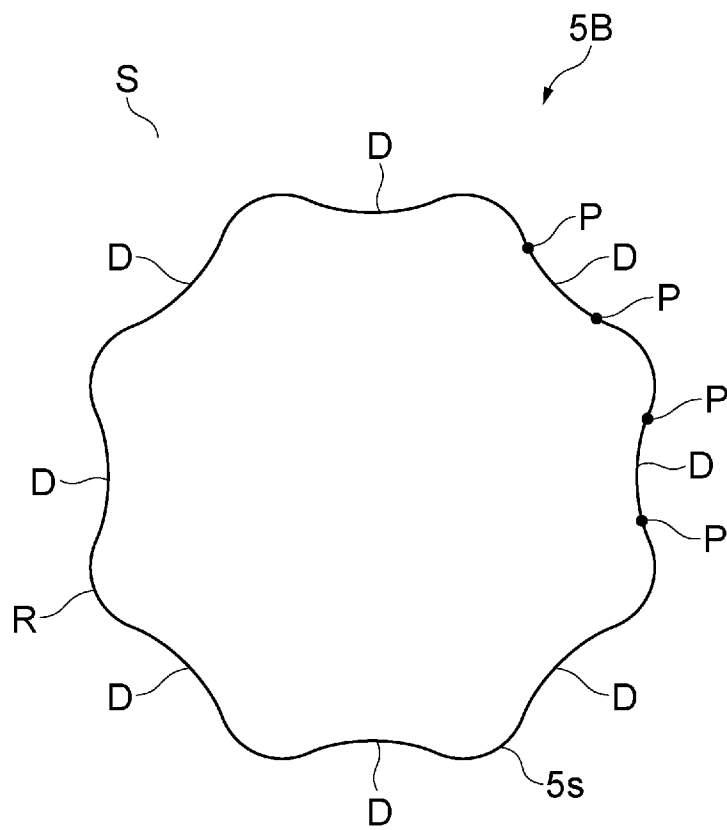
[図6]



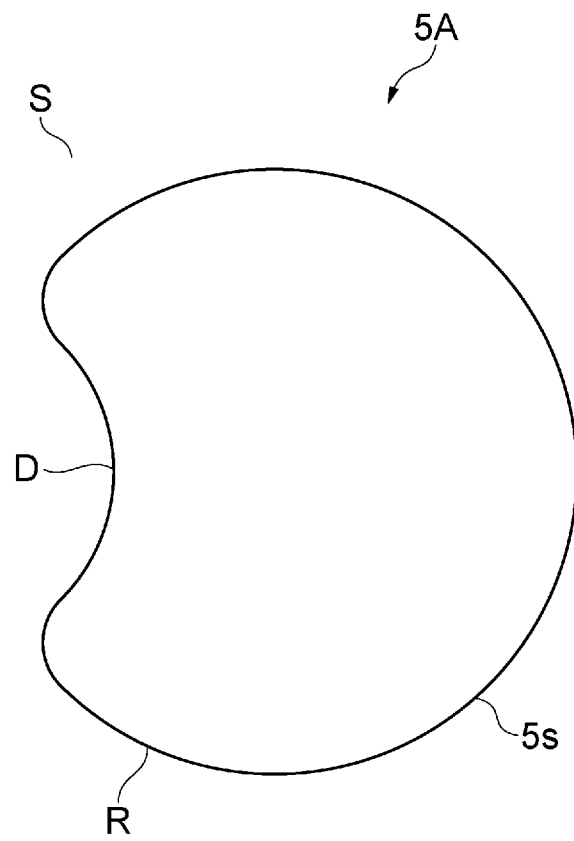
[図7]



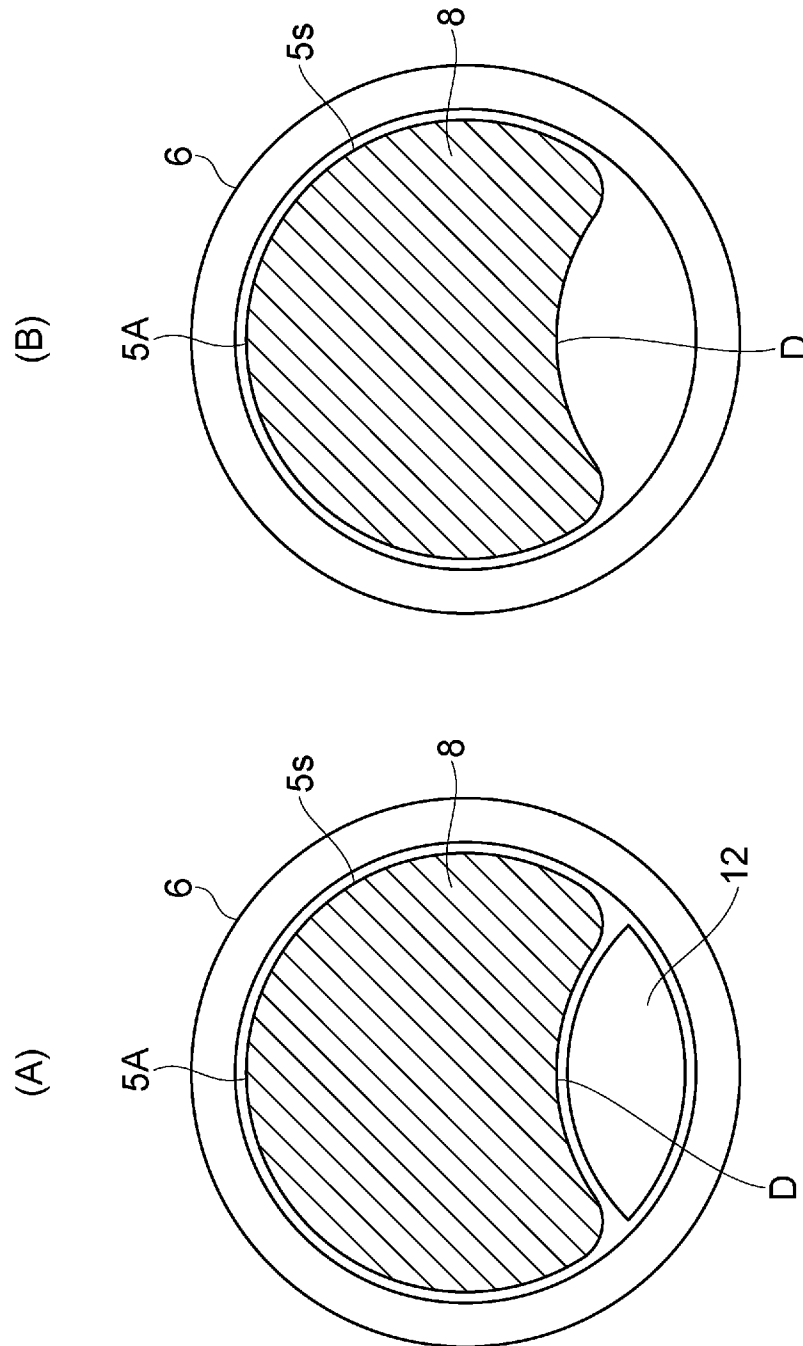
[図8]



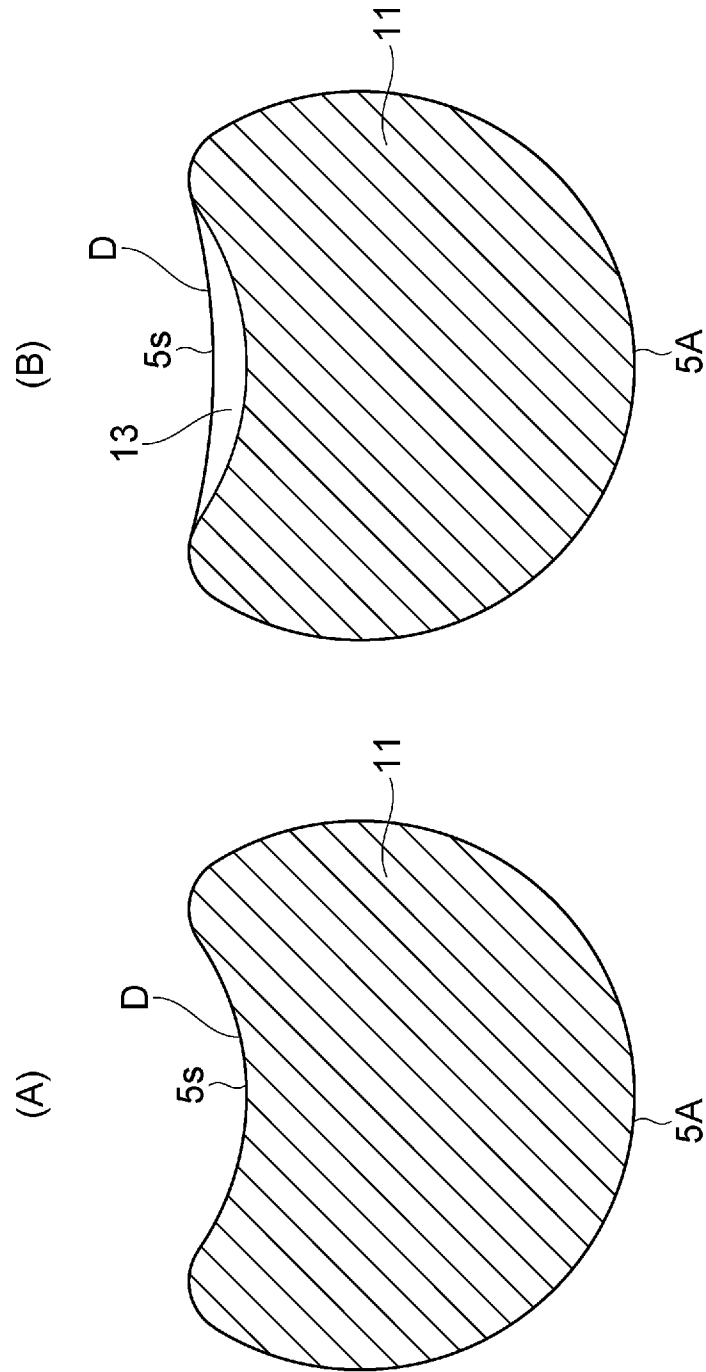
[図9]



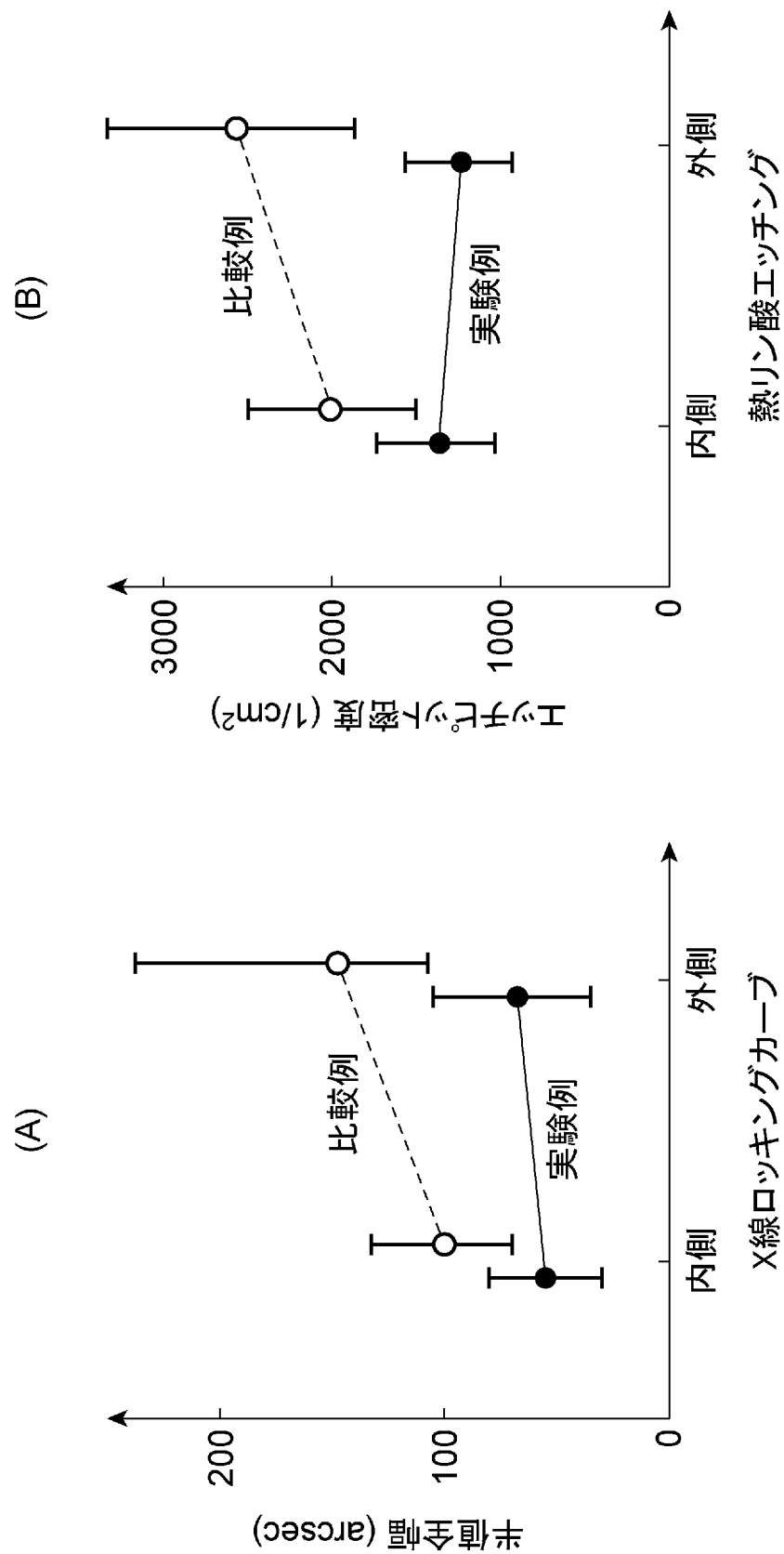
[図10]



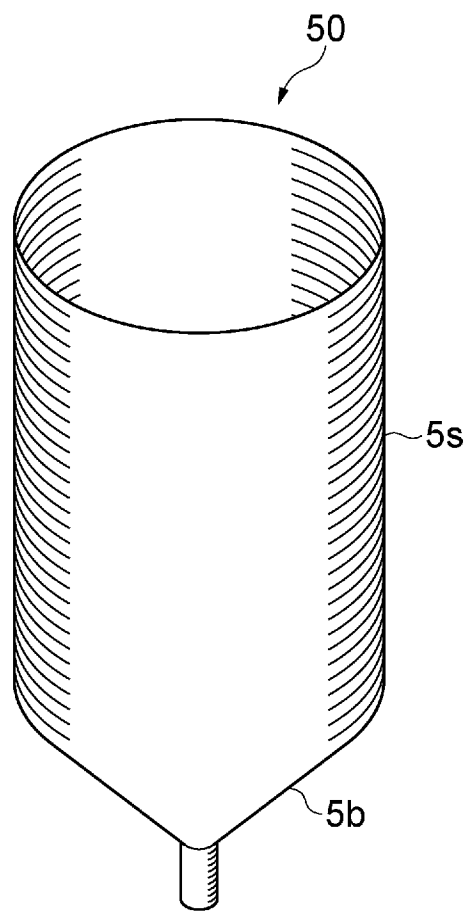
[図11]



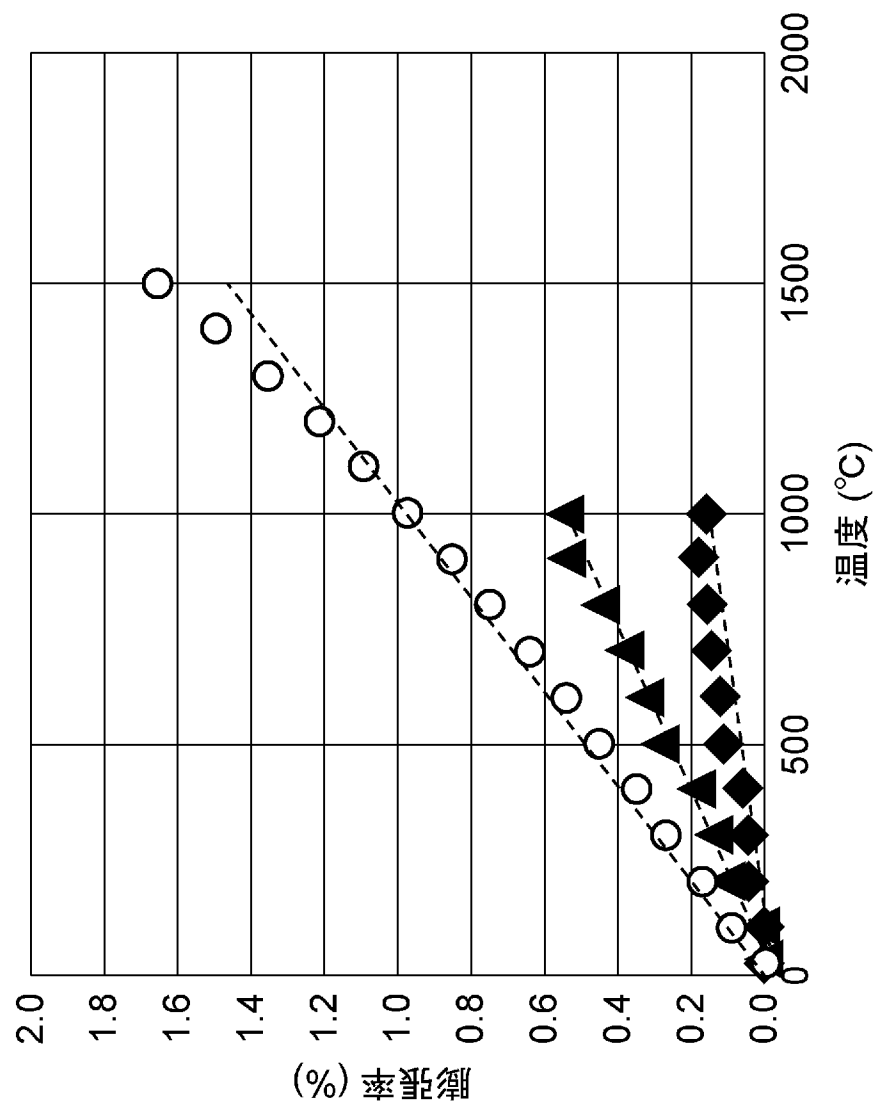
[図12]



[図13]



[図14]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2019/047260

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C30B 11/00 (2006.01) i; C30B 29/16 (2006.01) i
FI: C30B11/00 C; C30B29/16

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)

C30B11/00; C30B29/16

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan	1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan	1971-2020
Registered utility model specifications of Japan	1996-2020
Published registered utility model applications of Japan	1994-2020

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.
A	JP 2017-214229 A (KYOCERA CORP.) 07.12.2017 (2017-12-07) claims	1-9
A	JP 2004-99333 A (NIKKO-MATERIALS CO., LTD.) 02.04.2004 (2004-04-02) claims, fig. 2	1-9
A	JP 2017-521345 A (PLANSEE (SHANGHAI) HIGH PERFORMANCE MAT LTD.) 03.08.2017 (2017-08-03) claims, fig. 2a	1-9
A	JP 2004-284853 A (MITSUBISHI MATERIALS CORP.) 14.10.2004 (2004-10-14) claims, fig. 3	1-9
A	JP 2012-17239 A (COVALENT MATERIALS CORP.) 26.01.2012 (2012-01-26) claims	1-9

☐ 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 February 2020 (10.02.2020)

Date of mailing of the international search report
03 March 2020 (03.03.2020)

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

Information on patent family members

International application No.

PCT/JP2019/047260

Patent Documents referred in the Report	Publication Date	Patent Family	Publication Date
JP 2017-214229 A	07 Dec. 2017	US 2019/0211470 A1 claims EP 3467158 A1 CN 109312490 A	
JP 2004-99333 A	02 Apr. 2004	US 2005/0118739 A1 claims, fig. 2 EP 1500633 A1 CN 1701042 A	
JP 2017-521345 A	03 Aug. 2017	US 2017/0191188 A1 claims, fig. 2a CN 105220223 A	
JP 2004-284853 A	14 Oct. 2004	(Family: none)	
JP 2012-17239 A	26 Jan. 2012	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C30B 11/00(2006.01)i; C30B 29/16(2006.01)i FI: C30B11/00 C; C30B29/16		
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）） C30B11/00; C30B29/16		
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 1971-2020年 日本国実用新案登録公報 1996-2020年 日本国登録実用新案公報 1994-2020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
A	JP 2017-214229 A（京セラ株式会社）07.12.2017（2017-12-07） 特許請求の範囲	1-9
A	JP 2004-99333 A（株式会社日鉱マテリアルズ）02.04.2004（2004-04-02） 特許請求の範囲、図2	1-9
A	JP 2017-521345 A（プランゼー シャンハイ ハイ パフォーマンス マテリアル リミ テッド）03.08.2017（2017-08-03） 特許請求の範囲、図2a	1-9
A	JP 2004-284853 A（三菱マテリアル株式会社）14.10.2004（2004-10-14） 特許請求の範囲、図3	1-9
A	JP 2012-17239 A（コバレントマテリアル株式会社）26.01.2012（2012-01-26） 特許請求の範囲	1-9
☐ 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抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの “X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの “Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの “&” 同一パテントファミリー文献		
国際調査を完了した日 10.02.2020		国際調査報告の発送日 03.03.2020
名称及びあて先 日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号		権限のある職員（特許庁審査官） 西垣 歩美 4G 1190 電話番号 03-3581-1101 内線 3416

国際調査報告
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2019/047260

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2017-214229	A	07.12.2017	US 2019/0211470 A1 Claims EP 3467158 A1 CN 109312490 A	
JP	2004-99333	A	02.04.2004	US 2005/0118739 A1 Claims, Fig. 2 EP 1500633 A1 CN 1701042 A	
JP	2017-521345	A	03.08.2017	US 2017/0191188 A1 Claims, Fig. 2a CN 105220223 A	
JP	2004-284853	A	14.10.2004	(ファミリーなし)	
JP	2012-17239	A	26.01.2012	(ファミリーなし)	