

(19) 日本国特許庁 (JP)

(12) 特 許 公 報 (B2)

(11) 特許番号

特許第5888198号
(P5888198)

(45) 発行日 平成28年3月16日 (2016. 3. 16)

(24) 登録日 平成28年2月26日 (2016. 2. 26)

(51) Int. Cl.	F 1
C 3 O B 29/20 (2006. 01)	C 3 O B 29/20
C 3 O B 15/00 (2006. 01)	C 3 O B 15/00 Z

請求項の数 6 (全 14 頁)

(21) 出願番号	特願2012-213141 (P2012-213141)	(73) 特許権者	000183303
(22) 出願日	平成24年9月26日 (2012. 9. 26)		住友金属鉱山株式会社
(65) 公開番号	特開2014-65639 (P2014-65639A)		東京都港区新橋5丁目11番3号
(43) 公開日	平成26年4月17日 (2014. 4. 17)	(74) 代理人	110000811
審査請求日	平成26年12月5日 (2014. 12. 5)		特許業務法人貴和特許事務所
		(72) 発明者	梶ヶ谷 富男
			東京都青梅市末広町1-6-1 住友金属
			鉱山株式会社 青梅事業所内
		(72) 発明者	東風谷 敏男
			東京都青梅市末広町1-6-1 住友金属
			鉱山株式会社 青梅事業所内
		(72) 発明者	村下 憲治
			東京都青梅市末広町1-6-1 住友金属
			鉱山株式会社 青梅事業所内

最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 サファイア単結晶の製造装置

(57) 【特許請求の範囲】

【請求項 1】

チョクラルスキー法によるサファイア単結晶の製造装置であって、

炉体内に断熱空間を形成するカーボン製断熱材と、該断熱空間内に配置され原料融液を収容する坩堝と、該坩堝を前記断熱空間内に支持する支持軸と、前記断熱空間内まで伸長し、前記坩堝の上方に育成したサファイア単結晶を引き上げる引き上げ軸と、前記断熱空間内に配置され、前記坩堝の周囲に配置されるカーボン製ヒータとを備えるとともに、

前記坩堝の外周部の上方で、該坩堝の外周部と前記断熱材の内周面との間には、下方からのガス流を前記坩堝内の前記原料融液に向けて転向させる障害物が設置されておらず、

前記断熱空間内において、前記坩堝の上方で、かつ、前記原料融液の上方に、前記坩堝と同軸上に配置され、少なくとも1枚以上の径方向中央部に開口を有する円輪状の熱反射板からなり、前記原料融液からの輻射を制御することにより、前記原料融液および断熱空間の垂直方向の温度勾配を制御する手段と、

前記坩堝の上端縁に設置され、前記下方からのガス流と、前記原料融液および育成中のサファイア単結晶の肩部側面との接触を防止する手段と、をさらに備える、サファイア単結晶育成装置。

【請求項 2】

前記原料融液および断熱空間の垂直方向の温度勾配を制御する手段が、前記引き上げ軸の軸方向に所定間隔をもって配置された、少なくとも2枚以上の熱反射板を備えた多層型熱反射板からなる、請求項1に記載のサファイア単結晶育成装置。

10

20

【請求項 3】

前記原料融液および断熱空間の垂直方向の温度勾配を制御する手段が、前記原料融液内の垂直方向の温度勾配を、該原料融液の表面から下方に向かう方向に $2 \text{ cm} \sim 5 \text{ cm}$ となるように制御し、かつ、前記原料融液の上方の温度勾配を、該原料融液の表面から上方に向かう方向に $1 \text{ cm} \sim 4 \text{ cm}$ となるように制御するように構成されている、請求項 1 または 2 に記載のサファイア単結晶育成装置。

【請求項 4】

前記断熱材と、前記坩堝と、前記原料融液および断熱空間の垂直方向の温度勾配を制御する手段とにより、前記断熱材の内周面に沿って、断熱空間の底面から上面まで略円筒状の前記下方からのガス流の流路が形成される、請求項 1 ～ 3 のいずれかに記載のサファイア単結晶育成装置。

10

【請求項 5】

前記下方からのガス流と、前記原料融液および育成中のサファイア単結晶の肩部側面との接触を防止する手段が、前記坩堝上端縁から径方向内方に伸長するリッドからなる、請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載のサファイア単結晶育成装置。

【請求項 6】

前記リッドの上面に、該リッドから上方へ伸長する円筒状の突起部が設けられている、請求項 5 に記載のサファイア単結晶育成装置。

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

20

【0001】

本発明は、チョクラルスキー法によるサファイア単結晶の製造装置に関する。

【背景技術】

【0002】

サファイア単結晶は、酸化アルミニウムのコランダム構造を有する結晶体であり、優れた機械的および熱的特性、化学的安定性、光透過性を有することから、多くの分野ですでに利用されている。特に、サファイア単結晶は、半導体分野において、窒化ガリウム (GaN) 系発光ダイオードの発光層を成長させるための基板として、あるいは、シリコン・オン・サファイア (SOS) デバイス用の基板などに用いられており、これらの用途の重要性が高まるに依りて、その需要が飛躍的に伸びてきている。

30

【0003】

サファイア単結晶を製造する主な方法として、サファイア原料を坩堝内で融解し、その原料融液表面に種結晶を接触させて徐々に引き上げるることにより単結晶を育成するチョクラルスキー法 (Cz 法) やカイロポーラス法 (Kyropulous 法) などが知られている。なお、育成されたサファイア単結晶は、基板状に加工され、表面を研磨することによりサファイア基板とされる。

【0004】

サファイア原料融液からチョクラルスキー法によりサファイア単結晶を製造するには、図 4 に示すようなサファイア単結晶育成装置が用いられる (たとえば、特開 2011-195423 号公報参照)。このサファイア単結晶育成装置は、炉体 7 により形成されるチャンバ内に、サファイア原料が充填されるモリブデン製またはタングステン製の坩堝 1 と、坩堝 1 の外周面を加熱するカーボン製の円筒状ヒータ 3 と、坩堝 1 の底面を加熱するカーボン製の円盤状ヒータ 4 と、断熱空間 15 を構成するためのカーボン製の断熱材 6 とを備える。また、断熱材 6 の底面部 16 に設けられた開口に嵌入された酸化アルミニウム製の絶縁筒 8 を介して、断熱空間 15 の外側から内側に延在し、円筒状ヒータ 3 および円盤状ヒータ 4 のそれぞれに接続され、電力を供給するための 2 つの円筒状ヒータ電極 5 a、5 b と、断熱材 6 の底面部 16 と円盤状ヒータ 4 の開口を貫通して、坩堝 1 を支持する支持軸 2 が設けられている。さらに、断熱材 6 の上面部 17 に設けられた開口を通じて、ホルダ 9 a を介して、先端に種結晶 11 が取り付けられた引き上げ軸 9 が挿入され、育成時に、坩堝 1 内の原料融液 10 からチョクラルスキー法によりサファイア単結晶 12 を育成

40

50

できるようになっている。

【 0 0 0 5 】

ところで、融点が 2 0 4 0 という 2 0 0 0 を超える高い融点を有するサファイア単結晶をチョクラルスキー法により育成する場合、断熱空間 1 5 内は、当然のごとく 2 0 0 0 を超える高温環境となる。したがって、サファイア単結晶の育成においては、断熱空間 1 5 内の熱伝達は輻射が主体となること、および、タンタル酸リチウム (L T)、ニオブ酸リチウム (L N)、または、イットリウム・アルミニウム・ガーネット (Y A G) などの他の酸化物単結晶の融液と比較して、原料融液の粘度が非常に高く、対流が不安定であることに起因して、融液内の温度勾配の適正化が困難なものとなっている。また、L T、L N または Y A G などの酸化物単結晶の育成では、成長界面が、融液表面と略平行の状態を維持したまま、該融液表面に対して垂直方向下向きとなる方向に成長していくが、サファイア単結晶の育成においては、成長界面が、融液表面に対して大きな角度をもって、該融液表面に対して、ほぼ水平方向に成長していくという特性を有している。このため、融液内の温度勾配が不適切である場合、成長界面の形状、特に、その先端部が下凹となりやすい。成長界面の形状が下凹となると、育成結晶中に気泡、リネージなどのマクロな結晶欠陥を生じ、さらには、リネージが集積することにより多結晶となり、サファイア単結晶が得られなくなる場合がある。

10

【 0 0 0 6 】

このような観点から、原料融液 1 0 の内部および表面近傍の垂直方向および水平方向の温度勾配が適正となるように制御する必要がある。従来、サファイア単結晶の結晶育成においては、原料融液の温度勾配を制御する 1 つの方法として、炉体内の雰囲気ガスである A r ガスの対流 (以下、「A r ガス流」という) を利用することが行われている。すなわち、炉体 7 の坩堝 1 の外周部の上方には、ステー (支持部材) 1 4 を介してヒータシールド 1 3 が設置され、坩堝 1 の周囲を上昇する高温の A r ガス流を原料融液の表面に向かわせることにより、融液表面近傍の水平方向の温度勾配を、坩堝 1 の側壁付近が高温となり、中心付近が低温となるように制御している。

20

【 0 0 0 7 】

しかしながら、このような温度勾配の制御を行っても、得られるサファイア単結晶 1 2 a では、特に、結晶の上半部において、気泡が取り込まれ、リネージが発生し、このリネージの集積によって多結晶化するなどの不具合が生じており、良品が得られるのが実質的に結晶の下半部に制限され、サファイア単結晶の収率を十分に向上できていないのが実情である。

30

【 0 0 0 8 】

また、サファイア単結晶の育成における 2 0 0 0 を超える高温環境下では、カーボン製の各ヒータ 3、4 やカーボン製の断熱材 6 からカーボンの昇華が起こる。このカーボン昇華により生じたカーボンガスは、ヒータで加熱され、高温となった A r ガス流とともに、断熱空間 1 5 内を対流し、原料融液と接触して、原料融液を還元する。これにより生成したアルミニウムやアルミニウム酸化物が坩堝 1 の材料と反応し、坩堝材が不純物として融液中に取り込まれ、それらがサファイア単結晶に混入し、その品質を低下させるという問題もある (特開 2 0 1 1 - 1 9 5 4 2 3 号公報参照) 。

40

【 0 0 0 9 】

温度勾配の制御、汚染などの問題を解決するための手段として、シリコン単結晶の育成におけるものであるが、坩堝の上端部に熱遮蔽板および熱反射板を設置することが提案されている (特開平 5 - 2 9 4 7 8 3 号公報参照) 。この技術では、坩堝の上縁に円筒状の熱遮蔽壁を設置して、原料融液からの輻射を制御するとともに A r ガス流の影響を排除している。しかしながら、この技術は、結晶の保温性を高め、結晶内の温度勾配を緩和するものであるため、この技術を、原料融液内の垂直方向および水平方向の温度勾配を十分に大きくする必要があるサファイア単結晶の育成に適用することはできない。

【 先行技術文献 】

【 特許文献 】

50

【 0 0 1 0 】

【特許文献 1】特開 2 0 1 1 - 1 9 5 4 2 3 号公報

【特許文献 2】特開平 5 - 2 9 4 7 8 3 号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【 0 0 1 1 】

本発明は、上述のような問題に鑑み、チョクラルスキー法によるサファイア単結晶の結晶育成において、結晶欠陥のないサファイア単結晶を収率よく提供することを目的とする。

【課題を解決するための手段】

10

【 0 0 1 2 】

本発明のサファイア単結晶育成装置は、チョクラルスキー法によるサファイア単結晶の製造装置であって、炉体内に断熱空間を形成するカーボン製断熱材と、該断熱空間内に配置され原料融液を収容する坩堝と、該坩堝を前記断熱空間内に支持する支持軸と、前記断熱空間内まで伸長し、前記坩堝の上方に育成したサファイア単結晶を引き上げる引き上げ軸と、前記断熱空間内に配置され、前記坩堝の周囲に配置されるカーボン製ヒータを備える。

【 0 0 1 3 】

特に、本発明のサファイア単結晶育成装置は、従来技術で設けられていた前記坩堝の外周部の上方で、該坩堝の外周部と前記断熱材の内周面との間に配置され、下方からのガス流を前記坩堝内の前記原料融液に向けて転向させるヒータシールドなどの障害物は設置されていない。

20

【 0 0 1 4 】

その代わりに、坩堝の上方に配置され、前記原料融液および断熱空間の垂直方向の温度勾配を制御する手段と、前記坩堝の上端縁に設置され、前記下方からのガス流と、前記原料融液および育成中のサファイア単結晶の肩部側面との接触を防止する手段とを備える。

【 0 0 1 5 】

前記断熱材と、前記坩堝と、前記原料融液および断熱空間の垂直方向の温度勾配を制御する手段とにより、前記断熱材の内周面に沿って、断熱空間の底面から上面まで略円筒状の前記下方からのガス流の流路が形成されることが好ましい。

30

【 0 0 1 6 】

前記原料融液および断熱空間の垂直方向の温度勾配を制御する手段が、原料融液からの輻射熱を反射する、少なくとも 1 枚以上の円輪状の熱反射板であることが好ましい。なお、この熱反射板は、水平方向の温度勾配を制御する手段としても機能する。

【 0 0 1 7 】

前記下方からのガス流と、前記原料融液および育成中のサファイア単結晶の肩部側面との接触を防止する手段が、前記坩堝上端縁から径方向内方に伸長するリッドであることが好ましい。さらに、このリッドの上面に該リッドから上方へ伸長する円筒状の突起部が設けられていることがより好ましい。

【発明の効果】

40

【 0 0 1 8 】

本発明の製造装置を使用して得られるサファイア単結晶は、クビレや二段肩のない、肩部の形状がなだらかであることを特徴とする。また、本発明の製造装置を使用して得られるサファイア単結晶は、上半部における結晶欠陥やリネージ不良、さらには、不純物の混入の発生がいずれも防止される。したがって、サファイア単結晶の下半部のみならず、サファイア単結晶の上半部まで良品の採取が可能となるため、本発明は、サファイア単結晶を収率よく製造することを可能とするものであり、その工業的意義はきわめて大きい。

【図面の簡単な説明】

【 0 0 1 9 】

【図 1】図 1 は、本発明の実施態様における Ar ガス流および育成中のサファイア単結晶

50

の熱の流れを示す部分断面図である。

【図2】図2は、本発明の他の実施態様におけるArガス流および育成中のサファイア単結晶の熱の流れを示す部分断面図である。

【図3】図3は、(a)本発明により得られたサファイア単結晶と、(b)従来の方法により得られたサファイア単結晶の形状を比較した断面図である。

【図4】図4は、従来技術の単結晶測定装置を模式的に表した断面図である。

【図5】図5は、サファイア単結晶の育成においてクビレおよび二段肩の発生を説明するための断面図である。

【発明を実施するための形態】

【0020】

10

本発明者らは、上述の問題に鑑みて、坩堝1の外周部の上方にヒータシールド13を設置した構造について鋭意検討を行った。その結果、従来の円筒状ヒータ3および円盤状ヒータ4で加熱されたガスを融液の表面外周部に当てる、ガス対流制御による融液上方の温度勾配の制御では、融液表面の水平方向の温度勾配はある程度大きくすることはできるが、融液表面の垂直方向の温度勾配を大きくすることについては十分でないとの知見が得られた。

【0021】

このため、結晶育成の初期段階で急速に結晶径が拡大し、平板状結晶が形成されやすくなる。このような形状の単結晶が形成された場合、引き上げ軸方向から放熱される固化潜熱量よりも、融液表面から露出した肩部より直接的に放熱される固化潜熱量が増大し、固液界面が結晶側に凹んだ凹界面となってしまう(図5(a)参照)。この凹界面に沿って、気泡が界面に滞留し、単結晶内に取り込まれることとなる。

20

【0022】

また、この状態のまま、サファイア単結晶12aの成長が進行すると、ヒータの近傍を通過して上昇する高温のArガスが、ヒータシールド13の作用により、結晶肩部側面に当たるようになるため、サファイア単結晶の結晶径が縮小することになる(クビレの発生、図5(b)参照)。さらに、サファイア単結晶12bの成長が進行すると、サファイア単結晶の引き上げに伴い、結晶肩部が、垂直方向の温度勾配が大きいヒータシールド13上方の空間に位置するようになるので、サファイア単結晶上部からの放射熱が大きくなり、結晶径が急激に拡大する現象が起こりやすくなる(二段肩の発生、図5(c)参照)。

30

【0023】

このような二段肩が発生すると、育成されるサファイア単結晶12cは異方成長しやすくなり、引き上げ軸に対して大きく対称性がくずれた形状となる。これは、ヒータシールド13とサファイア単結晶12の肩部で原料融液が蓋をされた状態となるために融液表面に流れ込んできたArガスの流れが安定せず、サファイア単結晶12cの外周付近の温度分布が軸対称から外れるためと考えられる。このように形状の軸対称性が悪化した結晶では、結晶欠陥が発生しやすく、サファイア単結晶の収率を低下させる大きな原因となっている。

【0024】

そこで、本発明者らは、Arガス流による温度勾配の制御に代替する手段を鋭意検討し、本発明に至ったものである。本発明では、Arガス流によらずに温度勾配を形成するため、図4のヒータシールド13に代えて、熱反射板により原料融液の温度勾配を形成する。具体的には、炉体の天井から下方に伸長する支柱を介して、少なくとも1枚以上の円輪状の熱反射板を設置する。

40

【0025】

この結果、本発明の装置では、炉体の内壁と支柱との間に、高温に熱せられたArガスが上方の断熱空間に流通することを可能とする略円筒状の空間を確保することができ、これにより、Arガスがヒータシールド、または、熱反射板もしくは熱遮蔽板と原料融液の間に滞留することを防止することができる。さらに、カーボン蒸気を含んだArガスが原料融液に直接衝突して、カーボン蒸気と原料融液が反応することに起因する、不純物の混

50

入が防止される。

【 0 0 2 6 】

一方、温度勾配の制御を熱反射板により行うことにより、反射される輻射熱の進行方向を一定方向に制御することができるため、サファイア単結晶の育成における 2 0 0 0 を超えるような高温環境下においても、原料融液内および表面、さらには断熱空間の温度勾配を高精度かつ容易に制御することができる。このように温度勾配を適正化することにより、引き上げ軸方向の放熱量を制御でき、かつ、サファイア単結晶の径方向の急速な成長を抑止することができるため、クビレや二段肩の発生を効果的に防止することが可能となる。

【 0 0 2 7 】

さらに、本発明の装置では、カーボン蒸気を含んだ Ar ガスと原料融液とが直接接触することを防止するため、坩堝 1 の上端部に、円輪状のリッド（蓋）を設置することにより、不純物の混入をほぼ完全に防止している。

【 0 0 2 8 】

本発明は、このような構造上の特徴により、サファイア単結晶の上半部から下半部まで、結晶欠陥、リネージ不良、不純物の混入といった不具合を除去することができ、育成されたサファイア単結晶の大半から良品を得ることを可能としている。

【 0 0 2 9 】

以下、（ 1 ）本発明のサファイア単結晶の製造装置、および、（ 2 ）本発明により得られるサファイア単結晶インゴットについて、さらに詳細に説明する。

【 0 0 3 0 】

（ 1 ）サファイア単結晶の製造装置

本発明は、チョクラルスキー法によるサファイア単結晶の製造装置に関し、本発明の製造装置は、従来のチョクラルスキー法によるサファイア単結晶の製造装置と同様の基本構造を備える。特に、坩堝の上方に配置され、原料融液および断熱空間の垂直方向の温度勾配を制御する手段（以下、「垂直方向温度勾配制御手段」という）と、坩堝の上端縁に設置され、下方からのガス流と、前記原料融液および育成中のサファイア単結晶の肩部側面との接触を防止する手段（以下、「接触防止手段」という）とを備えることを特徴とする。

【 0 0 3 1 】

これらの手段を備えることにより、原料融液および断熱空間の垂直方向の温度勾配を適正に制御するとともに、Ar ガスと、原料融液およびサファイア単結晶との接触を防止することができるため、得られるサファイア単結晶にクビレや二段肩が発生することを効果的に防止することができるとともに、不純物の混入も抑制することができる。

【 0 0 3 2 】

また、前記原料融液の径方向の温度勾配を制御する手段（以下、「径方向温度制御手段」という）をさらに備えることで、結晶育成の初期段階から、サファイア単結晶の成長界面の形状を下凸に維持することができるため、さらに高品質のサファイア単結晶を得ることが可能となる。

【 0 0 3 3 】

これらの手段の設計は、予めコンピュータによるシミュレーションに基づいて行うか、および/または、予備試験を行い、各ヒータの出力およびその比率、ヒータと坩堝の相対位置などと温度勾配の関係を、所定の放射型温度計や熱電対を用いて測定し、これによって得られたデータに基づいて行うことが好ましい。また、上記予備試験において、結晶肩部のみの育成を行い、温度勾配と単結晶の成長界面の形状も把握しておくことがより好ましい。

【 0 0 3 4 】

（ a ）垂直方向温度勾配制御手段

本発明では、ヒータシールドによる Ar ガス流の制御によらずに、温度勾配制御手段を設けることで、原料融液および断熱空間の温度勾配を制御する。このような手段としては

10

20

30

40

50

、ヒータ出力の調整、断熱材の選択、熱遮蔽板または熱反射板の設置などが挙げられる。この中でも、温度勾配の制御の容易性、安定性およびエネルギーコストなどの観点から、熱反射板を用いて垂直方向の温度勾配を制御することが好ましい。特に、本発明では、図1に示されるように、原料融液の上方であって、坩堝と同軸上に、少なくとも1枚以上の円輪状の熱反射板を設置することにより温度勾配を制御することが好ましい。このように熱反射板を設置することにより、原料融液および断熱空間の垂直方向の温度勾配を大きくすることができ、育成中のサファイア単結晶が急成長することを防止することができ、もって、ボイドやリネージなどの結晶欠陥が発生することを防止することができる。

【0035】

この熱反射板の設置枚数や配置は、使用する結晶育成装置のヒータ出力、断熱材の材質および厚さなどを総合的に判断して、所望の温度勾配を形成することができるよう設計されるべきものであるが、予めシミュレーションにより得られたデータに基づいて設計することが好ましい。

【0036】

これらの手段を用いて形成される原料融液内の垂直方向の温度勾配は、原料融液の表面から下方に向かう方向に2 / cm ~ 5 / cmとなるように制御することが好ましく、3 / cm ~ 4 / cmとなるように制御することがより好ましい。また、原料融液上方の温度勾配は、該原料融液の表面から上方に向かう方向に1 / cm ~ 4 / cmとなるように制御することが好ましく、2 / cm ~ 3 / cmとなるように制御することがより好ましい。各温度勾配が、このような範囲にある場合には、原料融液の上方における垂直方向の温度勾配の急峻化が達成でき、結晶育成の初期段階から、成長界面の形状を下凸に維持しやすく、結晶欠陥の発生を抑制することができる。原料融液内および上方の垂直方向の温度勾配が上記下限値未満では、結晶成長速度の制御が困難となり、この場合、融液表面の温度が融点より2 以上低いと、サファイア単結晶が急成長し、成長界面の形状が下凹となりやすくなり、一方、融液表面の温度が融点より2 以上高いと、種結晶の融け上がり（種結晶の融解）が起こりやすくなる。また、これらの温度勾配が上記上限値を超えると、サファイア単結晶内の垂直方向の温度差が大きくなるために、転位などの結晶欠陥密度が高くなり、さらには、クラックの発生率が高くなる。いずれの場合であっても、サファイア単結晶の収率の低下の原因となる。

【0037】

このような原料融液表面近傍の垂直方向の温度勾配の制御は、熟練者のヒータ出力の調整やヒータと坩堝の相対位置の調整などでもある程度可能であるが、図1に示すような、多層型熱反射板を設け、熱反射板の数、形状などを制御して、原料融液からの輻射を制御することにより、この原料融液の垂直方向の温度勾配を制御することを容易に達成することができる。

【0038】

なお、多層型熱反射板とは、断熱空間内に支持される保持部材と、該保持部材に前記引き上げ軸の軸方向に所定間隔をもって配置固定され、径方向中央部に開口を有する円輪状の熱反射板を、少なくとも2枚以上積層したものをいう。このような多層型熱反射板を構成する各熱反射板および保持部材の材料としては、2000 以上の高温環境下で容易に変形しないものであれば特に限定されることはなく、たとえば、モリブデン（Mo）、タングステン（W）またはこれらの合金を用いることができる。

【0039】

（b）接触防止手段

接触防止手段は、断熱空間内のArガスが、原料融液および育成中のサファイア単結晶の肩部側面と接触することを防止し、得られるサファイア単結晶にクビレや二段肩が生じたり、不純物（主に炭素、モリブデン、タングステンなどの炉内構成材に用いている元素）が混入したりすることを防止することを目的とするものである。

【0040】

接触防止手段としては、特開平5 - 294783号公報のような円筒状の遮蔽壁や、後

10

20

30

40

50

述するリッド（蓋）を坩堝の上縁に設置する手段が挙げられるが、上述したような熱反射板を設置する際に、炉体の天井から下方に伸張する支柱を介して、該熱反射板を支持することが好ましい。

【0041】

このような構成を有する装置では、原料融液の水平方向および垂直方向のいずれにおいても、温度勾配を大きく維持できる効果を得ながら、断熱材6の内側壁と、該熱反射板の外周部または支柱との間に略円筒状の空間を形成することができ、これにより、高温に熱せられたArガスを、原料融液表面近傍に滞留させることなく、断熱空間へ流通させることが可能となる。

【0042】

10

この断熱材6の内側壁と、熱反射板の外周部または支柱との間隔は、好ましくは熱反射板の外径の3%~15%、より好ましくは熱反射板の外径の7%~10%とする。この間隔が熱反射板の外径の3%未満では、Arガスの流通が阻害され、原料融液近傍に滞留することを十分に防止することができない。一方、熱反射板の外径の15%を超えると、熱反射板の反射部の形状または寸法が制限される場合があり、効率よく輻射を利用することができなくなるおそれがある。

【0043】

また、各熱反射板の断面形状は、従来のヒータシールドのように略円錐形状ではなく、円盤状（径方向に直線状）であることが好ましい。これにより、これらの熱反射板に沿って、径方向内方に侵入してきたArガスが、原料融液の表面に向かって流れることはないため、カーボン蒸気を含むArガスと原料融液との直接接触を実質的に阻止することが可能となる。

20

【0044】

なお、原料融液とArガス流の接触を確実に防止するためには、図1に示すように円盤状のリッド（蓋）18aを坩堝の上端部に設置することが好ましく、図2に示すように該リッドの上面に突起部19を設けたものを設置することがより好ましい。

【0045】

リッド18aの外径は、坩堝1の外径と同じか、これよりも1mm~2mm程度大きいことが好ましい。また、その内径は、育成するサファイア単結晶と接触しない大きさであればよいが、シミュレーションにより予測されるArガス流を考慮して適宜調整することが好ましい。具体的には、リッド18aの内径は、坩堝1の内径の70%~90%の範囲、すなわち、坩堝1の内径が300mmのときには、この坩堝1の内径より30mm~90mm程度小さい内径とする。

30

【0046】

また、突起部19は、最下部の熱反射板と接触しないように調整すれば、その形状などについては特に限定されることはない。好ましくは、突起部19の高さは、坩堝1の高さの30%~100%程度、すなわち、坩堝1の高さが300mmのときには、90mm~300mm程度とする。

【0047】

このようなリッドおよび突起部の構成材料としては、高温環境下で容易に変形しないことが重要であり、たとえば、モリブデン（Mo）、タングステン（W）、または、炭化タンタル（TaC）などで構成されか、あるいは、これらの材料でコーティングされることが好ましく、この中でもカーボンと反応することがない炭化タンタル（TaC）を用いることが好ましい。

40

【0048】

（c）径方向温度勾配制御手段

上述のように垂直方向の温度勾配を適切に制御した場合であっても、原料融液の径方向の温度勾配を十分に大きくすることができない場合には、育成中、特に育成初期段階のサファイア単結晶の成長界面の形状が下凸に維持することが困難となる場合がある。これを防止するためには、上記製造装置に、径方向温度勾配制御手段をさらに加えることが好ま

50

しい。

【0049】

このような手段として、具体的には、前記熱反射板の設置枚数や配置を設計する際に、原料融液の径方向の温度勾配を加味した上で設計すること、ヒータ出力の調整または断熱材の選択などが挙げられる。

【0050】

いずれの手段を採用する場合であっても、原料融液の径方向の温度勾配は、その中心部から外周部に向かう方向に好ましくは $2 \text{ }^\circ\text{C/mm} \sim 5 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ 、より好ましくは $3 \text{ }^\circ\text{C/mm} \sim 4 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ とする。上述の垂直方向の温度勾配と合わせて、径方向の温度勾配をこのような範囲に制御することで、サファイア単結晶の結晶径が急成長することを、効果的に防止することができる。前記温度勾配が $2 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ 未満ではサファイア単結晶の結晶径の急成長を抑制することができず、また、 $5 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ を超えるとクラック発生率が高くなるという問題が生じる。

10

【実施例】

【0051】

以下、本発明を実施例により、さらに詳細に説明する。

【0052】

なお、以下の実施例および比較例において、偏光検査は、得られたサファイア基板をヨウ化メチレンに浸して白色光源を照射することで行った。また、X線トポグラフは、大試料ラングカメラ（株式会社リガク製、LGL-8）により、表面平坦度は、光学式表面平坦度測定器（株式会社ニデック製、フタットネステスター FT-900）により評価した。

20

【0053】

（実施例1）

ヒータシールド13を除いて、図4に示す基本構成の結晶育成装置を使用して、サファイア単結晶の育成を行った。本実施例では、ヒータシールドの代わりに、図1に示すような多層型熱反射板を設置することにより、原料融液および断熱空間の垂直方向の温度勾配を制御するとともに、坩堝の上端縁から径方向内方に伸張するリッドを設置することにより、Arガス流と原料融液および育成中のサファイア単結晶の肩部側面との接触を防止した。このとき、断熱材の内側壁と熱反射板の外周部との間隔は、 20 mm とした。また、リッドとしては、坩堝の内径よりも 60 mm 小さい内径を有するものを使用した。なお、育成方位はa軸方向とした。

30

【0054】

初めに、原料として酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）粉末を、モリブデン（Mo）製の坩堝（直径 300 mm 、高さ 300 mm ）に挿入し、この坩堝を結晶育成装置の支持軸上に設置した。このとき、坩堝底の位置が、断熱空間15内において、カーボン製ヒータ3、4により最高温度となる位置と一致するように坩堝の垂直方向の位置を調整した。また、モリブデン（Mo）製の引き上げ軸に、モリブデン（Mo）製のホルダを介して種結晶を設置した。

【0055】

その後、断熱部材を密閉し、断熱空間を形成した後、Arガス雰囲気とし、ヒータ3、4により酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）粉末を $2050 \text{ }^\circ\text{C}$ 以上に加熱し、該粉末を融解した。酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）粉末が完全に融解したことを確認した後、先端に種結晶が取り付けられた引き上げ軸を 5 rpm で回転させた状態で下降させ、酸化アルミニウム（ Al_2O_3 ）融液に接触させた。このとき、熱反射板と坩堝底間の平均温度勾配が $3 \text{ }^\circ\text{C/cm}$ となるように、ヒータ3、4の出力を調整した。

40

【0056】

サファイア単結晶育成の初期段階、具体的には、結晶育成を開始してから肩部が形成されるまでの間の育成結晶の引き上げ速度は、 1 mm/hr に調整した。このとき、原料融液内の垂直方向の温度勾配は、該融液表面から下方に向かう方向に $3 \text{ }^\circ\text{C/cm} \sim 4 \text{ }^\circ\text{C/cm}$

50

m、原料融液上方の垂直方向の温度勾配は、該融液表面から上方に向かう方向に $2 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm} \sim 3 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ となるように熱反射板の位置を調整した。このときの、原料融液表面の径方向の温度勾配は、中心部から外周部に向かう方向に $3 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm} \sim 4 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{cm}$ であった。これらのパラメータの値は、サファイア単結晶の育成を開始する前に、予備試験として、ヒータ3、4の出力比やヒータと坩堝の相対位置などと、温度勾配との関係を、放射型温度計やタングステン-レニウム(W-R e)熱電対などを用いて測定して得られたデータに基づいて、調整されたものである。また、この予備試験において、結晶肩部のみの育成を行い、上記パラメータの値の下では、サファイア単結晶が急成長しないこと、および、成長界面の形状は下凸を保たれることを確認した。

【0057】

10

育成中にモニターした結晶成長速度と育成後に取り出した結晶内の欠陥観察から、結晶育成の初期段階では、予備試験の結果通りに結晶径の急成長は確認されず、サファイア単結晶の成長界面の形状は下凸を保っていたと考えられる。この状態を維持したまま、5日間の引き上げを行った。

【0058】

この結果、35kg(直径:200mm、長さ:280mm)のサファイア単結晶を得た。このサファイア単結晶は、肩部の形状がなだらかであり、また、偏光検査により観察した結果、その内部に、粒界、リネージはもちろんのこと、ポイドなどの結晶欠陥はほとんど確認されなかった。加えて、ICP法による不純物分析を実施したところ、モリブデン(Mo)濃度は検出下限(1ppm)程度であった。

20

【0059】

このサファイア単結晶に対して、スライス加工および研磨加工をすることにより、厚さ1mmの4inφのc面サファイア基板を200枚得た。X線トポグラフ、表面平坦度測定などで得られた基板を評価したところ、良品率は96%であった。この結果を表1に示す。

【0060】

(実施例2)

図2に示すような多層型熱反射板およびリッドを使用したこと以外は、実施例1と同様に、サファイア単結晶の育成を行った。本実施例では、リッドとして、該リッドの上面から上方へ150mm(坩堝の高さの50%)伸長する円筒状の突起部が設けられているものを使用した。

30

【0061】

この結晶育成の初期段階では、結晶径の急成長は確認されず、また、サファイア単結晶の成長界面の形状は下凸を保っていたと考えられる。この状態を維持したまま、5日間の引き上げを行った。育成開始時の原料融液内の垂直方向の温度勾配は、該融液表面から下方に向かう方向に $3 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{mm} \sim 4 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{mm}$ 、上方の垂直方向の温度勾配は、該融液表面から上方に向かう方向に $2 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{mm} \sim 3 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{mm}$ となるように調整した。また、原料融液表面の径方向の温度勾配は、その中心部から外周部に向かう方向に $3 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{mm} \sim 4 \text{ }^{\circ}\text{C}/\text{mm}$ となるように調整した。

【0062】

40

この結果、35kg(直径:200mm、長さ:280mm)のサファイア単結晶を得た。このサファイア単結晶は、肩部の形状がなだらかであり、また、偏光検査により観察した結果、その内部に、粒界、リネージはもちろんのこと、ポイドなどの結晶欠陥はほとんど確認されなかった。加えて、ICP法による不純物分析を実施したところ、モリブデン(Mo)濃度は検出下限(1ppm)以下であった。

【0063】

このサファイア単結晶に対して、スライス加工および研磨加工をすることにより、厚さ1mmの4inφのc面サファイア基板を200枚得た。X線トポグラフ、表面平坦度測定などで得られた基板を評価したところ、良品率は98%であった。この結果を表1に示す。

50

【 0 0 6 4 】

(比較例 1)

図 4 に示されるようなヒータシールドを使用し、A r ガスによる温度勾配の制御を行ったこと以外は、実施例 1 と同様に、サファイア単結晶の育成を行った。本比較例では、結晶育成の初期段階で、結晶径が急成長し、育成後に取出した結晶内部の欠陥観察から、成長界面の形状を下凸に維持することができなかったことが確認された。その後、5 日間の引き上げを行った。育成開始時の、原料融液内の垂直方向の温度勾配は $1 \text{ }^\circ\text{C/mm} \sim 2 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ 、断熱空間の垂直方向の温度勾配は $1 \text{ }^\circ\text{C/mm} \sim 2 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ 、原料融液表面の水平方向の温度勾配も $1 \text{ }^\circ\text{C/mm} \sim 2 \text{ }^\circ\text{C/mm}$ であった。

【 0 0 6 5 】

この結果、35 kg (直径 : 200 mm、長さ : 280 mm) のサファイア単結晶を得た。このサファイア単結晶は、クビレや二段肩が発生しており、偏光検査による観察では、内部にボイド、粒界などの結晶欠陥は確認された。また、ICP 法による不純物分析を実施したところ、不純物として金属モリブデン (Mo) 粒子が混入していることも確認された。

【 0 0 6 6 】

このサファイア単結晶に対して、スライス加工および研磨加工をすることにより、厚さ 1 mm の $\phi 4 \text{ in}$ の c 面サファイア基板を 200 枚得た。X 線トポグラフ、表面平坦度測定などで得られた基板を評価したところ、良品率は 65 % であった。この結果を表 1 に示す。

【 0 0 6 7 】

【表 1】

	垂直方向温度 勾配制御手段	接触防止手段		二段肩 /クビレ	結晶 欠陥	不純物	良品率 (%)
		リッド	突起部				
実施例 1	多層型 熱反射板	あり	なし	なし	なし	検出下限値 程度	96
実施例 2	多層型 熱反射板	あり	あり	なし	なし	検出下限値 以下	98
比較例 1	ヒータ シールド	なし	なし	あり	あり	あり	65

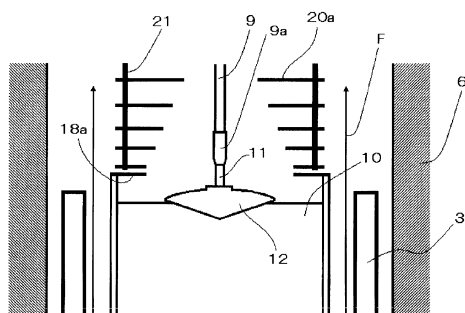
【符号の説明】

【 0 0 6 8 】

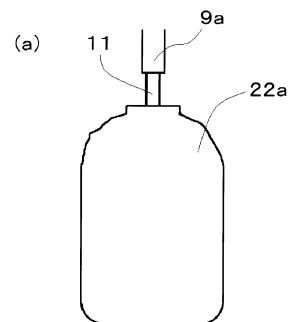
- 1 坩堝
- 2 支持軸
- 3 円筒状ヒータ
- 4 円盤状ヒータ
- 5 a、5 b ヒータ電極
- 6 断熱材
- 7 炉体
- 8 絶縁筒
- 9 引き上げ軸
- 9 a ホルダ
- 10 原料融液
- 11 種結晶
- 12、12 a、12 b、12 c サファイア単結晶
- 13 ヒータシールド
- 14 ステー (支持部材)
- 15 断熱空間

- 16 底面部
- 17 上面部
- 18a、18b リッド（蓋）
- 19 突起部
- 20a、20b 多層型熱反射板
- 21 支柱
- 22a、22b サファイア単結晶
- 23 クビレ
- 24 二段肩
- 25 気泡（ボイド）
- 26 粒界（多結晶）
- F Ar ガス流

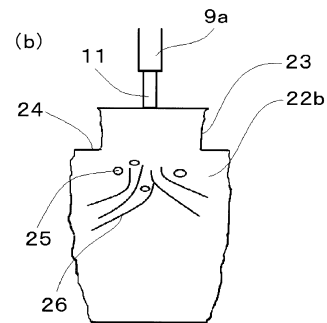
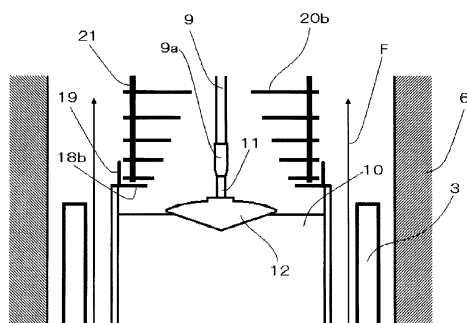
【図1】



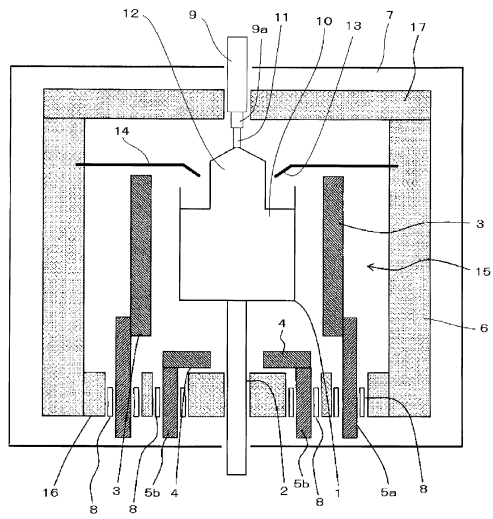
【図3】



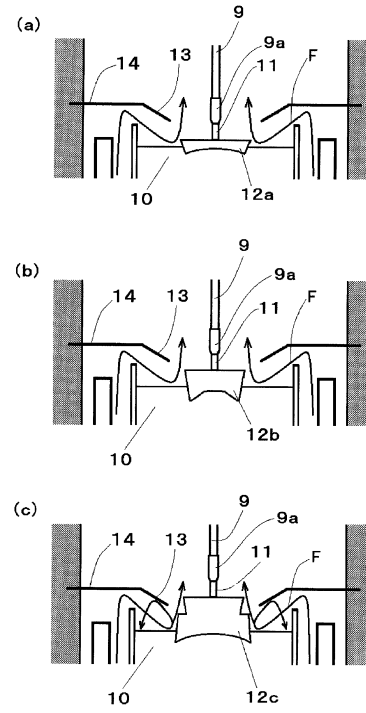
【図2】



【図 4】



【図 5】



フロントページの続き

審査官 國方 恭子

(56)参考文献 特開昭61-247683(JP,A)
特開昭51-087197(JP,A)
特開昭51-018999(JP,A)
特開2008-007353(JP,A)
特開2003-327490(JP,A)
特開平11-189487(JP,A)

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