

(19)日本国特許庁(JP)

(12)公開特許公報(A)

(11)公開番号

特開2025-50363

(P2025-50363A)

(43)公開日 令和7年4月4日(2025.4.4)

(51)国際特許分類 F I テーマコード(参考)
 C 3 0 B 29/36 (2006.01) C 3 0 B 29/36 A 4 G 0 7 7

審査請求 未請求 請求項の数 11 O L (全16頁)

(21)出願番号	特願2023-159117(P2023-159117)	(71)出願人	000004260 株式会社デンソー
(22)出願日	令和5年9月22日(2023.9.22)	(74)代理人	110001128 弁理士法人ゆうあい特許事務所
		(72)発明者	杉山 尚宏 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会社デンソー内
		(72)発明者	鷹羽 秀隆 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会社デンソー内
		(72)発明者	近藤 宏行 愛知県刈谷市昭和町1丁目1番地 株式会社デンソー内
		(72)発明者	松井 正樹

最終頁に続く

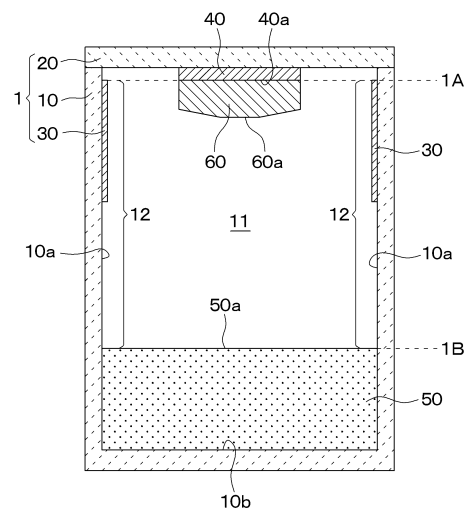
(54)【発明の名称】 炭化珪素単結晶の製造方法および炭化珪素単結晶の製造装置

(57)【要約】

【課題】炭化珪素単結晶の製造において、坩堝の黒鉛に起因する炭素粒子が炭化珪素単結晶に取り込まれることを抑制しつつ、坩堝の黒鉛の局所的な消耗を抑制する。

【解決手段】坩堝1のうち取り付けられた種結晶40の表面40aの位置からSiCの原料50の表面50aの位置までの領域である成長空間11では、原料50の昇華ガスに晒される側面12の一部が被覆部材30に覆われている。被覆部材30は、SiCの成長温度よりも高融点の金属炭化物で構成されており、側面12のうち種結晶40の表面40aの位置から原料50側に向かって一部の所定領域を覆っている。

【選択図】図1



10

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

炭化珪素単結晶の製造方法であって、

有底円筒状の容器本体（10）と、前記容器本体の開口部を閉塞する蓋体（20）と、炭化珪素の成長温度よりも高融点の金属炭化物で構成され、前記容器本体の内部に配置される被覆部材（30）とを有した中空状の円柱形状をなす坩堝（1）を用意することと、

前記蓋体に炭化珪素基板からなる種結晶（40）を配置し、前記容器本体に炭化珪素原料（50）を配置した後、前記炭化珪素原料の昇華ガスを供給することにより、前記種結晶の上に炭化珪素単結晶（60）を成長させることと、を備え、

前記坩堝を用意することにおいては、前記坩堝のうち前記種結晶の表面（40a）の高さ位置（1A）から前記炭化珪素原料の表面（50a）の高さ位置（1B）までの空間であって、前記昇華ガスが充填される空間を成長空間（11）とし、前記成長空間の壁面（10a、70a）を側面（12）として、前記被覆部材を前記側面に沿った筒状とし、前記側面のうち前記種結晶の表面の高さ位置から一部の所定の領域を前記被覆部材で覆う、炭化珪素単結晶の製造方法。 10

【請求項 2】

前記坩堝を用意することにおいては、前記被覆部材により前記側面の5%以上80%以下の面積を覆うことを含む、請求項1に記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

【請求項 3】

前記坩堝を用意することにおいては、前記被覆部材により前記側面の10%以上60%以下の面積を覆うことを含む、請求項2に記載の炭化珪素単結晶の製造方法。 20

【請求項 4】

前記炭化珪素単結晶を成長させることにおいては、前記種結晶の表面から前記炭化珪素単結晶の前記炭化珪素原料の側の最表面（60a）までの高さを前記炭化珪素単結晶の結晶高さとして、前記結晶高さが前記側面のうち前記被覆部材により覆われている領域の範囲内となるように、前記炭化珪素単結晶を成長させる、請求項1に記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

【請求項 5】

前記坩堝を用意することにおいては、前記被覆部材をタンタル、ニオブ、タングステン、チタンのうちいずれか1つの炭化物で構成することを含む、請求項1に記載の炭化珪素単結晶の製造方法。 30

【請求項 6】

前記坩堝を用意することにおいては、前記被覆部材を炭化タンタルで構成し、かつタンタルと炭素との比であるC/Ta比が0.2以上1以下の範囲内とすることを含む、請求項5に記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

【請求項 7】

前記坩堝を用意することにおいては、タンタル部材（31）に炭化処理をし、前記被覆部材を炭化タンタルで構成するとともに、前記炭化処理の前の前記タンタル部材の重量および寸法を基準として、前記炭化処理をした後の前記タンタル部材の前記重量および前記寸法の変化率を1%以上10%以下とすることを含む、請求項6に記載の炭化珪素単結晶の製造方法。 40

【請求項 8】

前記坩堝を用意することにおいては、前記成長空間に配置され、前記種結晶の側の上面（81a）が炭化珪素よりも融点が高い炭化物で構成された被覆材（82）で覆われた邪魔板（81）をさらに有するものを用意することを含む、請求項1ないし7のいずれか1つに記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

【請求項 9】

炭化珪素単結晶の製造装置であって、

有底筒状の容器本体（10）と、

炭化珪素基板からなる種結晶（40）が取り付けられる部材であって、前記容器本体の 50

開口部を塞ぐ蓋体（20）と、

炭化珪素の成長温度よりも融点が高い金属炭化物で構成された被覆部材（30）と、を有する坩堝（1）を備え、

前記坩堝のうち配置される炭化珪素原料（50）が配置される底面（10b）から前記蓋体に向かう方向を高さ方向とし、前記坩堝のうち前記炭化珪素原料の表面（50a）の前記高さ方向における位置を原料高さ位置（1B）とし、前記坩堝のうち配置される前記種結晶の表面（40a）の前記高さ方向における位置を種結晶高さ位置（1A）とし、前記坩堝のうち前記原料高さ位置から前記種結晶高さ位置までの空間であって、前記炭化珪素原料の昇華ガスが充填される空間を成長空間（11）とし、前記坩堝のうち前記成長空間における壁面（10a、70a）を側面（12）として、

10

前記被覆部材は、前記側面に沿った筒状であり、前記側面のうち前記種結晶高さ位置から前記原料高さ位置に向かって一部の所定の領域を覆っている、炭化珪素単結晶の製造装置。

【請求項10】

前記被覆部材は、前記側面の5%以上80%以下の面積を覆っている、請求項9に記載の炭化珪素単結晶の製造装置。

【請求項11】

前記被覆部材は、炭化タンタルで構成されており、タンタルと炭素との比であるC/Ta比が0.2以上1以下の範囲内である、請求項9または10に記載の炭化珪素単結晶の製造装置。

20

【発明の詳細な説明】

【技術分野】

【0001】

本開示は、炭化珪素（以下「SiC」という）単結晶の製造に用いられるSiC単結晶の製造方法およびSiC単結晶の製造装置に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、黒鉛製の坩堝の外周に配置させた加熱手段によって坩堝内にSiC単結晶を成長させるSiC単結晶の製造方法としては、例えば、昇華再結晶法が知られている。昇華再結晶法では、黒鉛製の坩堝内に種結晶を坩堝上部に配置し、坩堝底部に配したSiC粉末原料を例えば2300に加熱することで、SiC粉末原料を昇華させ、その昇華させたガスを原料温度よりも低い温度に設定された種結晶上に再結晶化させる。この種のSiC単結晶の製造方法および製造装置としては、特許文献1に記載のものが提案されている。

30

【先行技術文献】

【特許文献】

【0003】

【特許文献1】特許第4957672号公報

【発明の概要】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

特許文献1に記載のSiC単結晶製造装置は、種結晶の周囲にテーパ形状で広がる円錐台形のスカート部が配置されるとともに、スカート部の表面の全域が炭化タンタル（TaC）によりなるTaC部材で覆われている。このTaC部材は、板状のTaCに深絞り加工を行うことでスカート部の内壁面に沿ったカップ状とされ、継ぎ目のない形状となっており、スカート部のうち内壁面の黒鉛がむき出しになることを防いでいる。これにより、上記のSiC単結晶製造装置は、種結晶上に成長させるSiC単結晶にスカート部の黒鉛に起因する炭素が取り込まれ、SiC単結晶の結晶品質が低下することおよびTaC部材の継ぎ目や切れ目に起因する欠陥発生を抑制することができる。

40

【0005】

一方、この種のSiC単結晶製造装置において、SiC粉末原料が配置される坩堝の内

50

壁面の全域をT a CなどのS i Cよりも高融点の被覆材で覆うと、炭素原子が不足してシリコンが過剰となり、却ってS i C単結晶の結晶品質が低下することが新たに判明した。そこで、本発明者らが坩堝の内壁面のうち種結晶から遠い位置にある一部の領域を局部的に露出させることを検討したところ、S i C単結晶の製造を繰り返すと、当該一部の領域が消耗し、坩堝に穴が開くことがさらに明らかとなった。この場合、坩堝に穴が開くことに伴う発塵がS i C単結晶に取り込まれたり、S i C粉末原料を昇華して得られるガスが当該穴から坩堝外に逃げたりする不具合が生じる。

【 0 0 0 6 】

本開示は、坩堝の黒鉛由来の炭素が取り込まれることおよび坩堝の局所的な消耗に起因するS i C単結晶の結晶品質の低下を抑制することが可能なS i C単結晶の製造方法および製造装置を提供することを目的とする。

10

【 課題を解決するための手段 】**【 0 0 0 7 】**

本開示の1つの観点によれば、炭化珪素単結晶の製造方法は、有底円筒状の容器本体(10)と、容器本体の開口部を閉塞する蓋体(20)と、炭化珪素の成長温度よりも高融点の金属炭化物で構成され、容器本体の内部に配置される被覆部材(30)とを有した中空状の円柱形状をなす坩堝(1)を用意することと、蓋体に炭化珪素基板からなる種結晶(40)を配置し、容器本体に炭化珪素原料(50)を配置した後、炭化珪素原料の昇華ガスを供給することにより、種結晶の上に炭化珪素単結晶(60)を成長させることと、を備え、坩堝を用意することにおいては、坩堝のうち種結晶の表面(40a)の高さ位置(1A)から炭化珪素原料の表面(50a)の高さ位置(1B)までの空間であって、昇華ガスが充填される空間を成長空間(11)とし、成長空間の壁面(10a、70a)を側面(12)として、被覆部材を側面に沿った筒状とし、側面のうち種結晶の表面の高さ位置から一部の所定の領域を被覆部材で覆う。

20

【 0 0 0 8 】

これによれば、S i C単結晶の製造方法は、容器本体、蓋体および被覆部材を有する坩堝を用意し、蓋体に種結晶を配置し、容器本体にS i C原料を配置した後、S i C原料を昇華させて種結晶上にS i C単結晶を成長させる。そして、S i Cの成長温度よりも高融点の金属炭化物で構成された筒状の被覆部材を用意し、坩堝のうち種結晶の表面位置からS i C原料の表面位置までの空間であって、S i C原料の昇華ガスが充填される成長空間の側面の一部を当該被覆部材で覆う。また、被覆部材で覆う領域は、側面のうち種結晶の表面位置からS i C原料に向かって一部の所定領域となっている。このS i C単結晶の製造方法は、坩堝の側面のうち種結晶表面の近傍の黒鉛を被覆部材で覆うため、黒鉛由来の炭素がS i C単結晶に取り込まれることを抑制することができる。また、このS i C単結晶の製造方法は、側面のうち種結晶表面から離れた領域では十分な面積の黒鉛を露出させているため、坩堝の局所的な消耗や穴空きの発生を抑制することができる。

30

【 0 0 0 9 】

本開示の別の1つの観点によれば、炭化珪素単結晶の製造装置は、有底筒状の容器本体(10)と、炭化珪素基板からなる種結晶(40)が取り付けられる部材であって、容器本体の開口部を塞ぐ蓋体(20)と、炭化珪素の成長温度よりも融点が高い金属炭化物で構成された被覆部材(30)と、を有する坩堝(1)を備え、坩堝のうち配置される炭化珪素原料(50)の表面(50a)に位置する部位を原料高さ位置(1B)とし、配置される種結晶の表面(40a)に位置する部位を種結晶高さ位置(1A)とし、原料高さ位置から種結晶高さ位置までの空間であって、炭化珪素原料の昇華ガスが充填される空間を成長空間(11)とし、坩堝のうち成長空間における壁面(10a、70a)を側面(12)として、被覆部材は、側面に沿った筒状であり、側面のうち種結晶高さ位置から原料高さ位置に向かって一部の所定の領域を覆っている。

40

【 0 0 1 0 】

これによれば、S i C単結晶製造装置は、坩堝のうち種結晶の表面からS i C原料の表面までの成長空間において、昇華ガスに晒される側面のうち種結晶表面から一部の所定領

50

域がSiCよりも高融点の金属炭化物で構成された被覆部材に覆われた構成である。SiC単結晶製造装置は、坩堝の側面のうち種結晶表面の近傍では黒鉛が覆われているため、黒鉛由来の炭素がSiC単結晶に取り込まれることを抑制することができる。また、SiC単結晶製造装置は、側面のうち種結晶の表面から離れた領域では黒鉛が露出した状態となっているため、原料の昇華ガスがシリコン過剰になることを防ぎつつ、坩堝の局所的な消耗や穴空きの発生を抑制することができる。

【0011】

なお、各構成要素等に付された括弧付きの参照符号は、その構成要素等と後述する実施形態に記載の具体的な構成要素等との対応関係の一例を示すものである。

【図面の簡単な説明】

10

【0012】

【図1】第1実施形態のSiC単結晶製造装置の断面構成を示す図である。

【図2】成長空間における側面の被覆部材による被覆率とSiC単結晶における炭素インクルージョン密度との関係を示す図である。

【図3】第2実施形態のSiC単結晶製造装置の断面構成を示す図である。

【図4】スカート部の斜視図である。

【図5】スカート部を覆う被覆部材の炭化処理についての説明図である。

【図6】第3実施形態のSiC単結晶製造装置の断面構成を示す図である。

【図7】第3実施形態のSiC単結晶製造装置の変形例を示す図である。

【発明を実施するための形態】

20

【0013】

以下、本開示の実施形態について図に基づいて説明する。なお、以下の各実施形態相互において、互いに同一もしくは均等である部分には、同一符号を付して説明を行う。

【0014】

(第1実施形態)

第1実施形態のSiC単結晶製造装置について、図面を参照しつつ説明する。図1では、SiC単結晶製造装置の一部ではないが、製造方法を分かり易くするため、後述する坩堝1に配置される種結晶40および原料50、並びに種結晶40上に成長するSiC単結晶60を示している。これは、後述する図3、図6、図7についても同様である。

【0015】

30

〔基本構成〕

SiC単結晶製造装置は、例えば図1に示すように、有底円筒状の容器本体10と、円形状の蓋体20と、被覆部材30とを有して構成された坩堝1を備える。坩堝1は、例えば、容器本体10および蓋体20が黒鉛で構成されるとともに、中空状の円柱形状となっている。

【0016】

容器本体10は、例えば、内側の円筒底部に昇華ガスの供給源となるSiCの原料50が配置される。原料50は、例えば、粉末状のSiC結晶とされる。容器本体10は、蓋体20側の開口部を上とし、原料50が配置される側の壁面を内壁面10aとして、内壁面10aのうち上側から所定の領域が被覆部材30により覆われている。容器本体10は、本実施形態では、内壁面10aのうち種結晶40の表面40aの高さ位置から一部の所定領域が被覆部材30により覆われ、他の領域については内壁面10aが露出している。なお、粉末状のSiC結晶の原料50を昇華させると、SiやSi₂CのようなSi過剰の昇華ガスが生成されるため、後述する側面12のすべてを被覆部材30で覆ってしまうと、SiC単結晶における炭素が不足し、結晶品質が低下しうる。また、粉末状のSiC結晶におけるSi/Cの比率を調整し、Si過剰の昇華ガスが生じることを抑制することは困難である。このため、容器本体10の内壁面10aの一部は、被覆部材30で覆われない状態とされることで、当該一部の黒鉛からの炭素原子がSiCの再結晶に用いられ、Si過剰の昇華ガスに起因する結晶品質の低下を抑制する役割を果たす。例えば、内壁面10aのうち種結晶40の表面40aから所定の距離だけ離れた位置から原料50側の下

40

50

方領域のすべてが被覆部材 30 で覆われていない領域とされ、広面積とされるため、SiC 単結晶の成長工程時に局所的な消耗が生じることが抑制される。

【0017】

以下、説明の便宜上、図 1 に示すように、坩堝 1 のうち種結晶 40 の表面 40 a の位置を「高さ位置 1 A」と称し、原料 50 の表面 50 a の位置を「高さ位置 1 B」と称する。ここでいう高さ位置とは、例えば、坩堝 1 の内部の底面 10 b に対する法線方向に沿って、底面 10 b と蓋体 20 で閉塞される開口部とを繋ぐ方向を高さ方向として、当該高さ方向における位置を意味する。以下、上記した高さ方向のうち蓋体 20 側を上方、容器本体 10 の内側の底面 10 b 側を下方、とそれぞれ称することがある。また、坩堝 1 のうち高さ位置 1 A から高さ位置 1 B までの空間であって、原料 50 の昇華ガスが充填される空間

10

【0018】

なお、原料 50 の表面 50 a の位置は、例えば、原料 50 を容器本体 10 に投入した後に坩堝 1 をタップするなどの方法により、表面 50 a が平坦に配置される場合にはその平坦面の位置とされる。また、原料 50 の表面 50 a の位置は、例えば、平坦に配置されない場合には原料 50 の種結晶 40 側の最表面の凹凸の高さ方向における平均位置、あるいは当該最表面のうち内壁面 10 a に接する部分の高さ方向における平均位置とされる。また、種結晶 40 については厚みが薄く、無視できる程度であるため、蓋体 20 のうち種結晶 40 が貼り付けられる面の高さ位置から下方の領域を成長空間 11 とみなしてもよい。また、例えば、容器本体 10 のうち原料 50 が配置される領域を原料配置領域として、内

20

【0019】

本実施形態では、側面 12 は、容器本体 10 の内壁面 10 a の一部であって、原料 50 の昇華ガスに晒される部分で構成されている。側面 12 は、原料 50 の底面 10 b からの高さ、すなわち分量によるが、例えば、高さ方向における寸法が 30 mm ~ 500 mm 程度とされる。側面 12 の高さ方向における寸法は、成長空間 11 の寸法であり、得たい SiC 単結晶 60 のサイズや厚みに応じて、適宜変更されうる。

【0020】

蓋体 20 は、例えば、円板状とされ、容器本体 10 の開口部を塞ぐ面に SiC の種結晶 40 が貼り付けられる。種結晶 40 は、例えば、SiC 基板とされ、表面 40 a が蓋体 20 とは反対方向を向くように取り付けられる。

30

【0021】

被覆部材 30 は、後述する SiC の成長温度よりも高融点の炭化物で構成され、容器本体 10 の内壁面 10 a のうち種結晶 40 の高さ位置 1 A から所定の領域を覆う部材である。被覆部材 30 は、容器本体 10 の内壁面 10 a のうち種結晶 40 の近傍領域で黒鉛が剥き出しになること、ひいては種結晶 40 上に成長させる SiC 単結晶 60 に当該黒鉛からの炭素粒子が取り込まれ、結晶の品質劣化が生じることが抑制するために設けられる。

【0022】

以下、説明の便宜上、被覆部材 30 のうち種結晶 40 側の端部を「上端」、原料 50 側の端部を「下端」、とそれぞれ称することがある。被覆部材 30 は、側面 12 のうち被覆部材 30 の上端から下端に位置する領域の全部を覆っている。被覆部材 30 の上端は、例えば、高さ位置 1 A、すなわち種結晶 40 の表面 40 a の位置と一致している。

40

【0023】

被覆部材 30 は、例えば、タンタル、ニオブ、タングステン、チタンのうちいずれか 1 つの炭化物で構成される。被覆部材 30 は、例えば、側面 12 のうち高さ位置 1 A から高さ位置 1 B に向かう一部の領域に取り付けられ、側面 12 に沿った筒状とされる。被覆部材 30 は、例えば、側面 12 のうち被覆部材 30 に覆われる部分を被覆部とし、側面 12 の全域の面積に対する被覆部の面積の比率を被覆率として、被覆率が後述の所定の範囲内とされる。

50

【0024】

具体的には、図2に示すように、被覆率が10%～60%の範囲内においては、SiC単結晶60に混入した炭素粒子の含有密度である炭素インクルージョン密度が 1 cm^{-3} 以下であり、結晶品質が良好であった。また、炭素インクルージョン密度は、被覆率が10%未満になると増加し始めて被覆率5%で 100 cm^{-3} 程度となり、被覆率5%未満になるとさらに飛躍的に増加し 1000 cm^{-3} を超えた。また、炭素インクルージョン密度は、被覆率が60%を超えると増加し始め、被覆率80%で 100 cm^{-3} 程度となり、被覆率80%を超えるとさらに飛躍的に増加し 1000 cm^{-3} を超えた。この結果は、被覆率を5%以上80%以下、より好ましくは10%以上60%以下の範囲内とすることで、SiC単結晶60の結晶品質を良好に確保することができることを示している。

10

【0025】

なお、図2の縦軸の炭素インクルージョン密度は、側面12のうち被覆部材30で覆われた部分の原料50側の下限の高さ位置までSiC単結晶60を成長させ、SiC単結晶60のうち表面60aから1mm厚の基板結晶を取り出して測定したものである。図2の炭素インクルージョン密度は、上記の1mm厚の基板結晶を光学顕微鏡で観察し、当該基板結晶について所定の面積において確認される直径 $1\mu\text{m}$ 以上の炭素インクルージョンの数をカウントして得られたものである。また、本発明者らの検討によれば、SiC単結晶60の炭素インクルージョン密度については、側面12の内径や高さ寸法には依存しない結果が得られた。

【0026】

被覆部材30は、例えば、上記した金属材料で構成される厚み $0.1\text{ mm} \sim 3\text{ mm}$ の板材を用意し、当該板材を容器本体10の内壁面10aに沿った形状に加工した後に、炭化処理を行うことで得られる。例えば、容器本体10の内壁面10aに沿った形状の黒鉛部材を用意し、上記の加工済みの板材を当該黒鉛部材に隣接させた状態で、不活性雰囲気、例えばアルゴン雰囲気下で 1500 以上 2500 以下の加熱処理を行って炭化させる。例えば、上記の工程により、金属炭化物で構成された被覆部材30が得られる。これにより、CVDなどの成膜法により金属炭化物を被覆層とする場合に比べて、側面12の径が例えば6インチ以上のサイズであるときであっても、ピンホールやクラックのない被覆部材30を形成でき、SiC単結晶60を安定して製造することができる。

20

【0027】

被覆部材30は、例えば、炭化タンタルで構成される場合、タンタルに対する炭素の比率をC/Ta比として、C/Ta比が 0.2 以上 1 以下の範囲とされる。これは、C/Ta比 $= 0, 0.2, 0.4, 0.6, 0.8, 1.0$ の炭化タンタルの被覆部材について結晶成長を実施し、結晶成長に伴う被覆部材30の変形および破損状況を確認した結果によるものである。C/Ta比が 0.2 以上 1 以下の範囲では、良好な結晶成長が可能であった。一方、C/Ta比が 0.2 未満である場合には、SiC単結晶60を成長させる際に寸法変化が大きくなり過ぎること、および部分的にシリサイド化し、低融点となることに起因し、被覆部材30が破損するおそれがある。この結果は、被覆部材30による被覆率に依らなかった。

30

【0028】

なお、被覆部材30は、例えば、炭化タンタルで構成し、かつC/Ta比が 0.2 以上 1 以下の範囲内である場合、炭化処理前の寸法および重量を基準として、炭化処理による寸法および重量の変化率が 1% 以上 10% 以下となる。具体的には、C/Ta比が 0.2 未満である場合、SiCの結晶成長の工程時における被覆部材30の寸法・重量の変化率が 10% 超と大きく、変形や破損が生じた。一方、C/Ta比が 0.2 以上 1 以内の範囲内においては、被覆部材30の寸法、重量変化が予め炭化工程で生じるため、SiC結晶成長の工程時の被覆部材30の大きな変形、破損を防止することができる。被覆部材30は、例えば、炭化処理による寸法および重量の変化率を考慮し、炭化処理後の寸法が内壁面10aの内径と略同一となるように、炭化処理前の寸法が決定されることが好ましい。

40

【0029】

50

また、上記した炭化タンタル中のC/Ta比は、例えば、次のような方法により算出することができる。まず、炭化処理後のタンタル部材を粉末化し、得られた粉末についてX線回折測定を行う。このX線回折測定により得られる各種ピークについて、NaCl構造のTaC、三方晶のTa₃C₂、Ta₄C₃、六方晶のTa₂C、体心立方晶のTaのそれぞれの結晶相由来のピーク高さを確認し、各結晶相の割合を同定する。なお、上記した各構造における炭素比は、NaCl構造のTaCが1、三方晶のTa₃C₂、Ta₄C₃が0.67~0.75、六方晶のTa₂Cが0.5、体心立方のTaが0となる。そして、各結晶相の格子定数から各成長相におけるC/Ta比を同定し、全体の割合から炭化タンタルにおけるC/Ta比を算出することができる。このため、被覆部材30は、全域におけるC/Ta比の平均が0.2以上1以下の範囲内とされればよいと考えられる。

10

【0030】

さらに、SiC単結晶製造装置は、坩堝1の外周を囲むように配置された図示しない加熱手段を有している。

【0031】

以上が、本実施形態に係るSiC単結晶製造装置の構成である。

【0032】

〔SiC単結晶の製造方法〕

次に、上記のSiC単結晶製造装置を用いたSiC単結晶60の製造方法の一例について説明する。

【0033】

まず、例えば図1に示すように、容器本体10、蓋体20および被覆部材30を有する坩堝1を用意し、蓋体20の内面に種結晶40を貼り付けるとともに、容器本体10の底面10bに原料50を配置する。種結晶40としては、例えば、略円形板状であって、径が150mm~220mmの範囲内のものを用意する。

20

【0034】

続いて、例えば、坩堝1を図示しない加熱チャンバに設置し、位置が固定されたヒータなどの任意の加熱手段により加熱し、その輻射熱により坩堝1を加熱することで坩堝1内を所定温度にする。このとき、例えば、坩堝1内の成長空間11を圧力100Pa~10000Pa程度のAr雰囲気とし、原料50の温度を2100~2400程度とし、種結晶40の温度を原料50よりも低い2000~2300程度とする。

30

【0035】

チャンバ内の雰囲気は、例えば、Arガス等など不活性ガスを図示しない給気配管を通じて流入させつつ、図示しない排気配管を介して空気等を排出することで得られる。また、種結晶40の成長面(表面40a)の温度および原料50の温度を目標温度まで上昇させるまでは、例えば、加熱チャンバ内は大気圧に近い雰囲気圧力にして原料50からの昇華を抑制し、目標温度になったところで、上記した減圧雰囲気とする。

【0036】

上記のように、減圧雰囲気下において原料50を加熱することで原料50が昇華し、原料50から昇華ガスが発生する。この昇華ガスは、種結晶40の表面40aに供給される。これにより、昇華ガスが種結晶40の表面40aで結晶化し、SiC単結晶60が成長する。また、結晶の抵抗率を制御するため、窒素ガスを必要に応じて流入させる。

40

【0037】

そして、坩堝1は、成長空間11の側面12がSiCの成長温度よりも高融点の金属炭化物で構成された被覆部材30により覆われている。また、側面12のうち種結晶40の高さ位置1Aからの所定領域が被覆率5%~80%の範囲内で被覆部材30により覆われ、側面12の残部において黒鉛が露出している。これにより、種結晶40の近傍では側面12の黒鉛が露出しておらず、当該黒鉛に起因する炭素がSiC単結晶60に混入することを抑制することができる。また、側面12のうち種結晶40から遠い領域では黒鉛が被覆部材30から露出しているため、原料50の昇華ガス中におけるSiが過剰になることを防ぎつつ、SiC単結晶60の成長工程において側面12の黒鉛の部分的な消耗を抑制

50

することができる。

【0038】

本実施形態によれば、坩堝1の黒鉛由来の炭素が取り込まれることおよび坩堝1の局所的な消耗に起因するSiC単結晶60の結晶品質の低下を抑制することが可能なSiC単結晶の製造装置および製造方法となる。

【0039】

(1)側面12の被覆部材30による被覆率を5%以上80%以下、より好ましくは10%以上60%以下とすることで、SiC単結晶60における炭素インクルージョン密度が所定以下となり、良好な結晶品質を確保することが可能となる。ここで、例えば、原料50を配置する前の状態の坩堝1において蓋体20で閉塞される閉塞空間において、原料配置領域と残部の領域(成長空間11に相当)との高さ方向における寸法の比率を： $\frac{A}{B}$ とする(、は任意の正の数)。このとき、被覆部材30は、上記の閉塞空間のうち蓋体20側の端部から下方に向かって $\frac{C}{D}$ (+)の割合までの領域の壁面について、被覆率が5%~80%、より好ましくは10%~60%となるように配置されればよい。

10

【0040】

(2)SiC単結晶60の成長を被覆部材30で覆われた範囲内で行うことにより、側面12のうち剥き出しの黒鉛に起因する炭素がSiC単結晶60に取り込まれることが抑制され、良好な結晶品質を確保することが可能となる。言い換えると、種結晶40の表面40aに対する法線方向に沿って、表面40aからSiC単結晶60の表面60aまでの高さを結晶高さとして、SiC単結晶60の結晶高さを被覆部材30で覆われた領域の範囲内とすればよい。

20

【0041】

(3)被覆部材30をタンタル、ニオブ、タングステン、チタンのうちいずれか1つの炭化物で構成することで、被覆部材30の融点が2500を超えらることとなる。これにより、SiC単結晶60の成長温度において、被覆部材30が安定した形状を保つことができ、SiC単結晶60の成長工程を安定して行うことができる。

【0042】

(4)被覆部材30を炭化タンタルで構成し、C/Ta比を0.2以上1以下の範囲内とすることで、被覆部材30を得る際における炭化処理の前後の寸法および重量の変化率を1%~10%の範囲内に抑えることができる。これにより、被覆部材30をSiC結晶成長の工程において安定した形状・寸法で維持することができる。

30

【0043】

(第2実施形態)

第2実施形態のSiC単結晶製造装置について、図面を参照しつつ説明する。

【0044】

本実施形態のSiC単結晶製造装置は、例えば図3に示すように、坩堝1がさらにスカート部70を有する点で上記第1実施形態と相違する。本実施形態では、この相違点について主に説明する。

【0045】

坩堝1は、本実施形態では、例えば、蓋体20が円柱状の突起部21を有し、容器本体10のうち種結晶40の近傍に種結晶40を囲むスカート部70を有し、種結晶40が突起部21の先端位置に貼り付けられている。スカート部70は、例えば図3や図4に示すように、上下に開口部を有する円錐台形状とされ、内周面70aが被覆部材30により覆われている。スカート部70は、上下の開口部のうち径が小さいほうの開口部が種結晶40の近傍に配置されている。以下、説明の便宜上、スカート部70の上下の開口部のうち円錐台形状の上底面に位置する径の小さい開口部を「小開口部」、下底面に位置する径の大きい開口部を「大開口部」、とそれぞれ称することがある。スカート部70は、種結晶40上にSiC単結晶60を成長させるときに成長結晶の径を拡大する役割を果たすものであり、例えば、成長ガイドとも称されうる。スカート部70は、上下の開口部の中心軸を通る仮想直線と内周面70aとのなす角度を内周面70aの傾斜角度として、例えば

40

50

、傾斜角度が45°以下となっている。

【0046】

スカート部70は、例えば、黒鉛で構成されるとともに、内周面70aに被覆部材30が固定されている。被覆部材30のうちスカート部70に取り付けられるものは、例えば、次のような工程により作製される。例えば図5に示すように、Taなどの金属材料で構成される厚み0.1mm~3mmの板材31を用意し、板材31に深堀り加工を行うことで、板材31をスカート部70の内周面70aに対応する形状とする。続いて、例えば、巻締め加工により板材31の一部を折り曲げることでスカート部70の小開口部に固定することで、板材31は、スカート部70の内周面70aを覆った状態となる。その後、スカート部70の内周面70aに沿った形状を有する黒鉛部材100を用意し、スカート部70に取り付けた板材31を黒鉛部材100に隣接した配置とする。そして、例えば、板材31をアルゴン雰囲気下で1500以上2500以下の加熱処理を行って炭化させて、SiCの成長温度よりも高融点の金属炭化物とする。これにより、スカート部70は、内周面70aの一部または全部と小開口部の近傍とが金属炭化物の被覆部材30に覆われた構成となる。

10

【0047】

本実施形態では、成長空間11は、容器本体10の内壁面10aとスカート部70の内周面70aとに囲まれている。つまり、側面12は、本実施形態では、容器本体10の内壁面10aのうちスカート部70の大開口部から原料50の表面50aまでの領域とスカート部70の内周面70aとにより構成されている。被覆部材30は、側面12のうち内周面70aの種結晶40の高さ位置1Aから高さ位置1Bに向かって、側面12の被覆率が5%以上80%以下となるように所定の領域を覆っている。被覆部材30は、内周面70aの一部を覆うように配置されてもよいし、内周面70aの全域もしくはこれに加えて内壁面10aの一部を覆うように配置されてもよい。被覆部材30による側面12の被覆範囲については、得たいSiC単結晶60の結晶高さに応じて、適宜変更されうる。SiC単結晶60は、本実施形態においても、側面12のうち被覆部材30の下端を結晶高さの上限として、被覆部材30で覆われた範囲内で成長させることで得られる。

20

【0048】

本実施形態によれば、上記第1実施形態と同様の効果が得られるSiC単結晶の製造装置および製造方法となる。また、坩堝1が円錐台形状のスカート部70を有し、小開口部が種結晶40の高さ位置1Aに合わせて配置されることで、SiC単結晶60を種結晶40の径よりも大きい径サイズに成長させることが可能となる。なお、図3では、スカート部70を覆う被覆部材30の上端位置と種結晶40の表面40aの高さ位置1Aとが一致する例について示しているが、この例に限定されるものではなく、これらの位置は、略一致していればよい。「略一致」とは、被覆部材30の上端位置と種結晶40の高さ位置1Aとが一致する場合に加えて、例えばスカート部70の寸法や容器本体10への取り付けなどの誤差により、被覆部材30の上端位置が高さ位置1Aよりも上方または下方にある場合を含む。また、「略一致」には、種結晶40の表面40a上にSiC単結晶60を成長させる際の支障がない範囲内で、被覆部材30の上端位置が高さ位置1Aよりも上方または下方の位置になるように意図的に配置する場合も含まれる。このため、スカート部70は、被覆部材30で覆われた部分の上端が、高さ方向において種結晶40の表面40aと一致するように配置される場合、表面40aと隙間を有するように配置される場合、種結晶40と重なるように配置される場合のいずれもありうる。

30

40

【0049】

(第3実施形態)

第3実施形態のSiC単結晶製造装置について、図面を参照しつつ説明する。

【0050】

本実施形態のSiC単結晶製造装置は、例えば図6に示すように、坩堝1がスカート部70に加えて、さらに容器本体10の底面10bから延設される支柱部80と邪魔板81とを有する点で上記第1実施形態と相違する。スカート部70については上記第2実施形

50

態と同様であるため、本実施形態では、支柱部 8 0 および邪魔板 8 1 について主に説明する。

【 0 0 5 1 】

支柱部 8 0 は、例えば、円柱形状とされ、容器本体 1 0 の底面 1 0 b の中心から開口部側に向かって坩堝 1 の中心軸に沿って延設されている。支柱部 8 0 は、例えば、容器本体 1 0 と同様に、黒鉛などの原料 5 0 よりも高融点の材料で構成される。

【 0 0 5 2 】

邪魔板 8 1 は、例えば、円板形状とされ、支柱部 8 0 の先端に取り付けられている。邪魔板 8 1 は、例えば、支柱部 8 0 と同様に、黒鉛などの S i C の成長温度よりも高融点材料で構成され、下面 8 1 b とは反対側の上面 8 1 a が被覆材 8 2 で覆われている。邪魔板 8 1 は、底面 1 0 b 側の下面 8 1 b の中心に支柱部 8 0 が接続されており、S i C 単結晶 6 0 が長尺、すなわち結晶高さが大きくなるまで成長させる場合において、原料 5 0 からの異物混入を抑制する役割を果たす。具体的には、S i C 単結晶 6 0 の結晶高さが長尺になる場合、S i C 単結晶 6 0 の表面 6 0 a が原料 5 0 の表面 5 0 a に近づくこととなり、原料 5 0 からの炭素インクルージョンが S i C 単結晶 6 0 内に混入するおそれがある。本実施形態では、このような原料 5 0 に起因する異物を遮り、S i C 単結晶 6 0 に混入することを抑制するため、邪魔板 8 1 が成長空間 1 1 内に設けられている。

【 0 0 5 3 】

邪魔板 8 1 は、例えば、被覆部材 3 0 の下端の近傍に配置される。例えば、邪魔板 8 1 は、図 6 に示すように、被覆部材 3 0 がスカート部 7 0 の内周面 7 0 a の一部のみを覆うときにはスカート部 7 0 の大開口部よりも種結晶 4 0 に近い位置に配置される。なお、邪魔板 8 1 は、その高さ位置については被覆部材 3 0 による被覆範囲とは独立して設定されてもよいし、上面 8 1 a だけでなく、全域が被覆材 8 2 により覆われてもよい。

【 0 0 5 4 】

被覆材 8 2 は、例えば、被覆部材 3 0 と同様に、S i C の成長温度よりも高融点の金属炭化物で構成される。被覆材 8 2 は、例えば、タンタル、ニオブ、タングステン、チタンのうちいずれか 1 つの炭化物で構成される。被覆材 8 2 は、例えば、被覆部材 3 0 と同様の方法で製造されるが、被覆部材 3 0 と同じ材料が用いられてもよいし、異なる材料が用いられてもよい。

【 0 0 5 5 】

なお、支柱部 8 0 および邪魔板 8 1 を黒鉛で構成する場合、これらの部材のうち上面 8 1 a 以外の黒鉛部分は、被覆材 8 2 で覆うかどうかについては任意であり、側面 1 2 の被覆部材 3 0 による被覆率とは無関係である。

【 0 0 5 6 】

本実施形態によれば、上記第 2 実施形態と同様の効果が得られる坩堝 1 を備える S i C 単結晶製造装置となる。また、上面 8 1 a が被覆材 8 2 で覆われた邪魔板 8 1 をさらに有することで、原料 5 0 に起因する異物が S i C 単結晶 6 0 に混入することを防ぎ、S i C 単結晶 6 0 をより長尺で製造可能な S i C 単結晶製造装置となる。

【 0 0 5 7 】

なお、本実施形態の S i C 単結晶製造装置として、上記第 2 実施形態の坩堝 1 が支柱部 8 0、邪魔板 8 1 および被覆材 8 2 を有する例について示したが、これに限定されない。例えば図 7 に示すように、本実施形態の S i C 単結晶製造装置は、上記第 1 実施形態の坩堝 1 が支柱部 8 0、邪魔板 8 1 および被覆材 8 2 を有する構成であってもよい。

【 0 0 5 8 】

(他の実施形態)

本開示は、実施例に準拠して記述されたが、本開示は当該実施例や構造に限定されるものではないと理解される。本開示は、様々な変形例や均等範囲内の変形をも包含する。加えて、様々な組み合わせや形態、さらには、それらの一要素のみ、それ以上、あるいはそれ以下、を含む他の組み合わせや形態をも、本開示の範疇や思想範囲に入るものである。

【 0 0 5 9 】

10

20

30

40

50

なお、上記各実施形態において、実施形態を構成する要素は、特に必須であると明示した場合および原理的に明らかに必須であると考えられる場合等を除き、必ずしも必須のものではないことは言うまでもない。また、上記各実施形態において、実施形態の構成要素の個数、数値、量、範囲等の数値が言及されている場合、特に必須であると明示した場合および原理的に明らかに特定の数に限定される場合等を除き、その特定の数に限定されるものではない。また、上記各実施形態において、構成要素等の形状、位置関係等に言及するときは、特に明示した場合および原理的に特定の形状、位置関係等に限定される場合等を除き、その形状、位置関係等に限定されるものではない。

【 0 0 6 0 】

(本開示の観点)

10

上記した本開示については、例えば以下に示す観点として把握することができる。

[第 1 の 観 点]

炭化珪素単結晶の製造方法であって、

有底円筒状の容器本体 (1 0) と、前記容器本体の開口部を閉塞する蓋体 (2 0) と、炭化珪素よりも高融点の金属炭化物で構成され、前記容器本体の内部に配置される被覆部材 (3 0) とを有した中空状の円柱形状をなす坩堝 (1) を用意することと、

前記蓋体に炭化珪素基板からなる種結晶 (4 0) を配置し、前記容器本体に炭化珪素原料 (5 0) を配置した後、前記炭化珪素原料の昇華ガスを供給することにより、前記種結晶の上に炭化珪素単結晶 (6 0) を成長させることと、を備え、

前記坩堝を用意することにおいては、前記坩堝のうち前記種結晶の表面 (4 0 a) の高さ位置 (1 A) から前記炭化珪素原料の表面 (5 0 a) の高さ位置 (1 B) までの空間であって、前記昇華ガスが充填される空間を成長空間 (1 1) とし、前記成長空間の壁面 (1 0 a 、 7 0 a) を側面 (1 2) として、前記被覆部材を前記側面に沿った筒状とし、前記側面のうち前記種結晶の表面の高さ位置から一部の所定の領域を前記被覆部材で覆う、炭化珪素単結晶の製造方法。

20

[第 2 の 観 点]

前記坩堝を用意することにおいては、前記被覆部材により前記側面の 5 % 以上 8 0 % 以下の面積を覆うことを含む、第 1 の観点到に記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

[第 3 の 観 点]

前記坩堝を用意することにおいては、前記被覆部材により前記側面の 1 0 % 以上 6 0 % 以下の面積を覆うことを含む、第 2 の観点到に記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

30

[第 4 の 観 点]

前記炭化珪素単結晶を成長させることにおいては、前記種結晶の表面から前記炭化珪素単結晶の前記炭化珪素原料の側の最表面 (6 0 a) までの高さを前記炭化珪素単結晶の結晶高さとして、前記結晶高さが前記側面のうち前記被覆部材により覆われている領域の範囲内となるように、前記炭化珪素単結晶を成長させる、第 1 ないし第 3 の観点的のいずれか 1 つに記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

[第 5 の 観 点]

前記坩堝を用意することにおいては、前記被覆部材をタンタル、ニオブ、タングステン、チタンのうちいずれか 1 つの炭化物で構成することを含む、第 1 ないし第 4 の観点的のいずれか 1 つに記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

40

[第 6 の 観 点]

前記坩堝を用意することにおいては、前記被覆部材を炭化タンタルで構成し、かつタンタルと炭素との比である C / T a 比が 0 . 2 以上 1 以下の範囲内とすることを含む、第 5 の観点到に記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

[第 7 の 観 点]

前記坩堝を用意することにおいては、タンタル部材 (3 1) に炭化処理をし、前記被覆部材を炭化タンタルで構成するとともに、前記炭化処理の前の前記タンタル部材の重量および寸法を基準として、前記炭化処理をした後の前記タンタル部材の前記重量および前記寸法の変化率を 1 % 以上 1 0 % 以下とすることを含む、第 6 の観点到に記載の炭化珪素単結

50

晶の製造方法。

[第 8 の 観 点]

前記坩堝を用意することにおいては、前記成長空間に配置され、前記種結晶の側の上面 (8 1 a) が炭化珪素よりも融点が高い炭化物で構成された被覆材 (8 2) で覆われた邪魔板 (8 1) をさらに有するものを用意することを含む、第 1 ないし第 7 の観点のいずれか 1 つに記載の炭化珪素単結晶の製造方法。

[第 9 の 観 点]

炭化珪素単結晶の製造装置であって、

有底筒状の容器本体 (1 0) と、

炭化珪素基板からなる種結晶 (4 0) が取り付けられる部材であって、前記容器本体の開口部を塞ぐ蓋体 (2 0) と、 10

炭化珪素の成長温度よりも融点が高い金属炭化物で構成された被覆部材 (3 0) と、を有する坩堝 (1) を備え、

前記坩堝のうち配置される炭化珪素原料 (5 0) が配置される底面 (1 0 b) から前記蓋体に向かう方向を高さ方向とし、前記坩堝のうち前記炭化珪素原料の表面 (5 0 a) の前記高さ方向における位置を原料高さ位置 (1 B) とし、前記坩堝のうち配置される前記種結晶の表面 (4 0 a) の前記高さ方向における位置を種結晶高さ位置 (1 A) とし、前記坩堝のうち前記原料高さ位置から前記種結晶高さ位置までの空間であって、前記炭化珪素原料の昇華ガスが充填される空間を成長空間 (1 1) とし、前記坩堝のうち前記成長空間における壁面 (1 0 a 、 7 0 a) を側面 (1 2) として、 20

前記被覆部材は、前記側面に沿った筒状であり、前記側面のうち前記種結晶高さ位置から前記原料高さ位置に向かって一部の所定の領域を覆っている、炭化珪素単結晶の製造装置。

[第 1 0 の 観 点]

前記被覆部材は、前記側面の 5 % 以上 8 0 % 以下の面積を覆っている、第 9 の観点に記載の炭化珪素単結晶の製造装置。

[第 1 1 の 観 点]

前記被覆部材は、炭化タンタルで構成されており、タンタルと炭素との比である C / T a 比が 0 . 2 以上 1 以下の範囲内である、第 9 または第 1 0 の観点に記載の炭化珪素単結晶の製造装置。 30

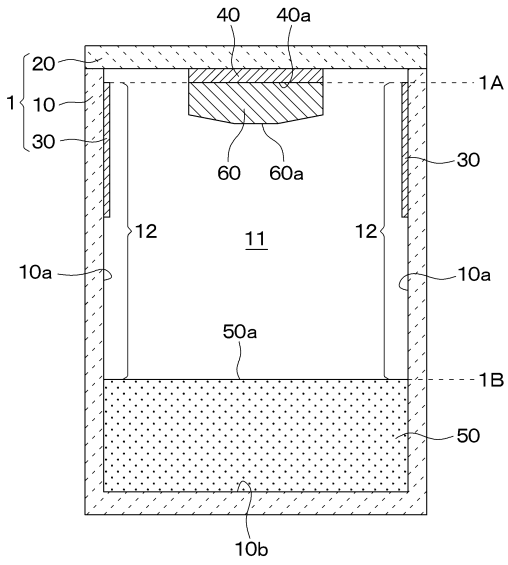
【 符 号 の 説 明 】

【 0 0 6 1 】

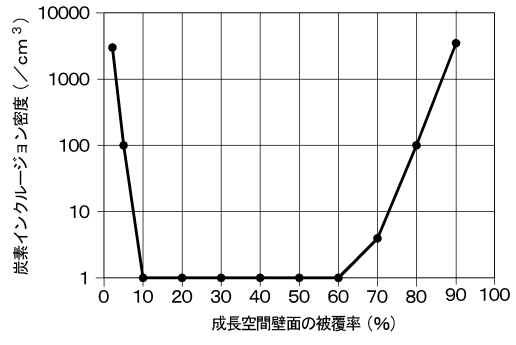
1 ... 坩堝、 1 0 ... 容器本体、 1 1 ... 成長空間、 1 2 ... 側面、 2 0 ... 蓋体、 3 0 ... 被覆部材、 4 0 ... 種結晶、 4 0 a ... 種結晶の表面、 5 0 ... 原料、 5 0 a ... 原料の表面、 6 0 ... 炭化珪素単結晶、 6 0 a ... S i C 単結晶の表面、 8 1 ... 邪魔板、 8 1 a ... 上面、 8 2 ... 被覆材

【 図面 】

【 図 1 】



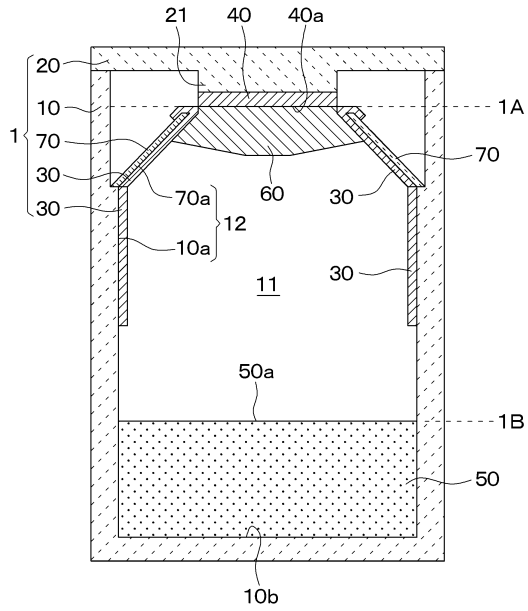
【 図 2 】



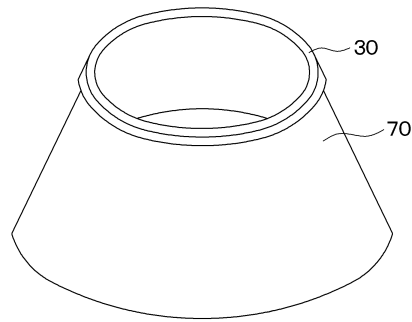
10

20

【 図 3 】



【 図 4 】

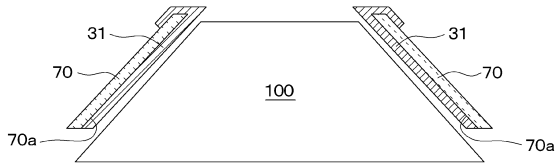


30

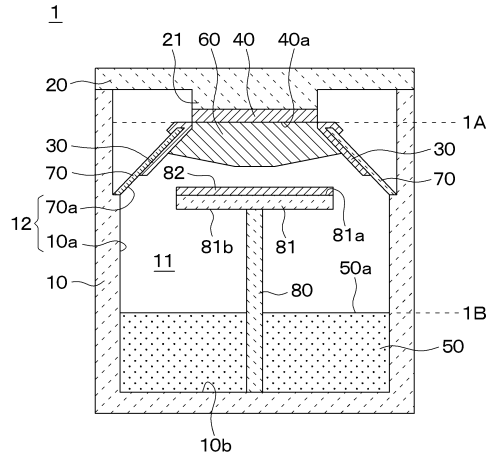
40

50

【 図 5 】

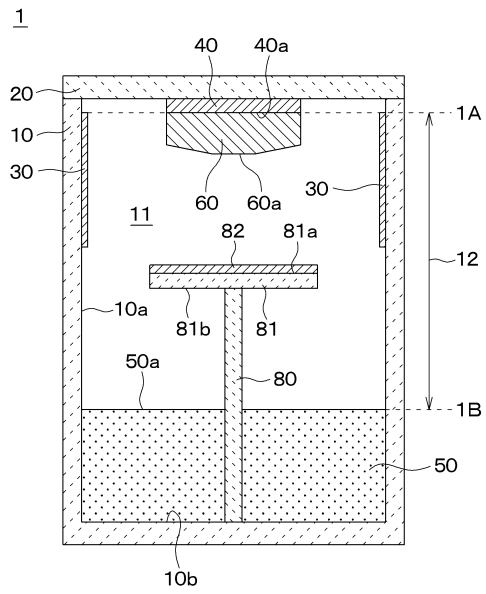


【 図 6 】



10

【 図 7 】



20

30

40

50

フロントページの続き

愛知県刈谷市昭和町 1 丁目 1 番地 株式会社デンソー内
(72)発明者 湯川 博喜
愛知県刈谷市昭和町 1 丁目 1 番地 株式会社デンソー内
(72)発明者 大矢 信之
愛知県刈谷市昭和町 1 丁目 1 番地 株式会社デンソー内
F ターム (参考) 4G077 AA02 BE08 DA02 EG11 EG18 HA12 MA02