(19)日本国特許庁(JP)　(12)特　許　公　報(B2)　(11)特許番号
特許第3550495号
(P3550495)
(45)発行日　平成16年8月4日(2004.8.4)　(24)登録日　平成16年4月30日(2004.4.30)

(51)Int.Cl.[7]	F I	
C30B 15/08	C30B 15/08	
C30B 15/02	C30B 15/02	
C30B 29/30	C30B 29/30	B

請求項の数 8　(全 11 頁)

(21)出願番号　特願平10-62303
(22)出願日　平成10年2月26日(1998.2.26)
(65)公開番号　特開平11-240789
(43)公開日　平成11年9月7日(1999.9.7)
審査請求日　平成12年9月27日(2000.9.27)

(73)特許権者　000003104
東洋通信機株式会社
神奈川県川崎市幸区塚越三丁目４８４番地
(73)特許権者　598078595
小平　紘平
北海道札幌市北区あいの里３条９丁目４番１号
(74)代理人　100085660
弁理士　鈴木　均
(72)発明者　小平　紘平
北海道札幌市北区あいの里３条９丁目４番１号

審査官　横山　敏志

最終頁に続く

(54)【発明の名称】単結晶製造装置および単結晶製造方法

(57)【特許請求の範囲】

【請求項１】

電気炉内に原料の入った坩堝を配置してこれを当該原料の融点以上の温度に保ち、坩堝の底部に形成された細孔から漏れ出た原料融液に種子結晶の上端部を接触させた状態で種子結晶を回転させながら引き下げることによって結晶を成長させる単結晶製造装置において、

粉末原料を融解させて原料融液を生成するための原料融解槽と、

この原料融解槽に粉末原料を供給する粉末原料供給手段と、

当該原料融解槽内の原料融液を前記坩堝内に導入する原料融液導入手段とを備えており、

前記原料融解槽は、前記電気炉内にて前記坩堝よりも高い位置に配置され、且つ、前記坩堝よりも温度の高い電気炉要素部分に配置した

ことを特徴とする単結晶製造装置。

【請求項２】

電気炉内に原料の入った坩堝を配置してこれを当該原料の融点以上の温度に保ち、坩堝の底部に形成された細孔から漏れ出た原料融液に種子結晶の上端部を接触させた状態で種子結晶を回転させながら引き下げることによって結晶を成長させる単結晶製造装置において、

粉末原料を融解させて原料融液を生成するための原料融解槽と、

この原料融解槽に粉末原料を供給する粉末原料供給手段と、

当該原料融解槽内の原料融液を前記坩堝内に導入する原料融液導入手段とを備えており

、
前記粉末原料供給手段は、
粉末原料を収容する粉末原料槽と、
この粉末原料槽内の粉末原料中へ乾燥気体を導入する乾燥気体導入手段と、
この粉末原料槽から前記原料融解槽へ粉末原料を移送するための原料移送手段とを有する
ことを特徴とする単結晶製造装置。
【請求項３】
前記原料移送手段は、
前記原料融解槽へ粉末原料を移送すべくその一端側が前記粉末原料槽に他端側が前記電気炉内に挿入された移送管と、
この移送管を外部から冷却する冷却手段とを備えている
ことを特徴とする請求項２に記載の単結晶製造装置。
【請求項４】
電気炉内に原料の入った坩堝を配置してこれを当該原料の融点以上の温度に保ち、坩堝の底部に形成された細孔から漏れ出た原料融液に種子結晶の上端部を接触させた状態で種子結晶を回転させながら引き下げることによって結晶を成長させる単結晶製造装置において、
粉末原料を融解させて原料融液を生成するための原料融解槽と、
この原料融解槽に粉末原料を供給する粉末原料供給手段と、
当該原料融解槽内の原料融液を前記坩堝内に導入する原料融液導入手段とを備えており、
前記原料融解槽は、前記坩堝より高い位置に配置されており、
前記原料融液導入手段は、
前記原料融解槽の底部に形成された細孔から漏れ出て流下する原料融液をその表面を伝わらせて前記坩堝内へ案内する案内部材を備えている
ことを特徴とする単結晶製造装置。
【請求項５】
前記坩堝は、底部がテーパー角度θを持つ逆円錐形状であって、該底部には複数の細孔を設けたものであることを特徴とする請求項１乃至４の何れかに記載の単結晶製造装置。
【請求項６】
電気炉内に原料の入った坩堝を配置してこれを当該原料の融点以上の温度に保ち、坩堝の底部に形成された細孔から漏れ出た原料融液に種子結晶の上端部を接触させた状態で種子結晶を回転させながら引き下げることによって結晶を成長させる単結晶製造方法において、
前記電気炉内の前記坩堝の上方に粉末原料を融解させて原料融液を生成するための原料融解槽を設けると共に、該原料融解槽は、前記坩堝よりも温度の高い電気炉要素部分に配置し、
前記電気炉外に粉末原料を収容する粉末原料槽を設け、
当該粉末原料槽から移送管を通して当該原料融解槽内に粉末原料を供給し、
当該原料融解槽内で粉末原料を融解させてから前記坩堝内に導入することにより、前記坩堝内に原料融液を連続供給して、
前記坩堝の底の細孔からの原料融液の流出量をほぼ一定に保ちつつ結晶育成を行うようにした
ことを特徴とする単結晶製造方法。
【請求項７】
電気炉内に原料の入った坩堝を配置してこれを当該原料の融点以上の温度に保ち、坩堝の底部に形成された細孔から漏れ出た原料融液に種子結晶の上端部を接触させた状態で種子結晶を回転させながら引き下げることによって結晶を成長させる単結晶製造方法において、
前記電気炉内の前記坩堝の上方に粉末原料を融解させて原料融液を生成するための原料

融解槽を設け、
前記電気炉外に粉末原料を収容する粉末原料槽を設け、
当該粉末原料槽から移送管を通して当該原料融解槽内に粉末原料を供給し、
当該原料融解槽内で粉末原料を融解させてから前記坩堝内に導入することにより、前記坩堝内に原料融液を連続供給して、
前記坩堝の底の細孔からの原料融液の流出量をほぼ一定に保ちつつ結晶育成を行うようにし、
更に、前記粉末原料槽内の粉末原料中へ乾燥気体を導入して当該粉末原料の湿気を除去すると共に、
前記粉末原料槽から前記原料融解槽へ粉末原料を移送する移送管を設け、当該移送管を外部から冷却しつつ粉末原料を移送するようにした
ことを特徴とする単結晶製造方法。
【請求項８】
前記原料融解槽から前記坩堝内へ原料融液を案内する案内部材を設け、
前記原料融解槽の底部に形成された細孔から漏れ出て流下する原料融液を、当該案内部材の表面を伝わらせて前記坩堝内へ供給するようにした
ことを特徴とする請求項６または７に記載の単結晶製造方法。
【発明の詳細な説明】
【０００１】
【発明の属する技術分野】
本発明は単結晶製造装置に関し、特に引き下げ法により単結晶を製造する製造装置および製造方法に関するものである。
【０００２】
【従来の技術】
近年、タンタル酸リチウムＬｉＴａＯ$_3$（以下ＬＴと記す。）、ニオブ酸リチウムＬｉＮｂＯ$_3$（以下ＬＮと記す。）、四硼酸リチウム$Li_2B_4O_7$（以下ＬＢＯと記す。）等の酸化物の単結晶を用いて各種の表面波デバイスが生産されている。
これらの単結晶は、水晶基板に比べて大きな電気機械結合係数（K^2）が得られ、ＬＴやＬＢＯにあっては零温度係数の切断角度が存在することから、表面波デバイスにこれらの単結晶を使用することにより、携帯電話機器等の端末が小型化、高機能化等されるようになった。上記の酸化物の中でも、ＬＢＯは正方晶系４ｍｍに属し、この単結晶は遅延時間温度係数がほぼ０ｐｐｍ／°Ｃであり、また電気機械結合係数は水晶の約６倍と大きく、機械的反射はＬＴやＬＮよりも大きいので、表面弾性波デバイスの小型化に適した材料として注目されている。
ＬＢＯ単結晶の育成方法には大きく分けて次の３つの方法がある。すなわち、チョクラルスキー法（Ｃｚ法、回転引き上げ法）、バーティカルブリッジマン法（ＶＢ法）、及び引き下げ法である。
チョクラルスキー法は、図２に示すように、結晶化しようとする原料を白金坩堝４１に入れ、電気炉４２内にて原料を融点以上に昇温し融解させ、その融液４３に棒状の種子結晶４４の下端部を浸けてゆっくり回転させながら引き上げることにより、種子結晶４４の下端部から結晶４５を成長させる方法である。
バーティカルブリッジマン法は、図３に示すように、結晶化しようとする原料を白金坩堝５１に入れ、電気炉５２内にて原料を融点以上に昇温し融解させた後、白金坩堝５１の一端に板状の種子結晶５３を入れ、電気炉５２内に温度勾配を形成した状態で、白金坩堝５１を種子結晶５３側を先端にして高温側から低温側に徐々に移動させることにより、種子結晶５３側より順次結晶を成長させる方法である。
引き下げ法は、本願に係る発明者の一人が文献（Journal of the Ceramic Society of Japan105[7]1997 ）に発表した単結晶成長法であり、図４に示すように、底に細孔６１ａを設けた白金坩堝６１の中に多結晶原料を入れ、この白金坩堝６１を上側を原料の融点以上、下側を原料の融点以下に保った電気炉６２内の最も温度勾配が急峻な位置に配置して原

料を融解させ、白金坩堝６１の細孔６１ａから重力によって流出した原料融液に棒状の種子結晶６３の上端を接触させた状態で、種子結晶６３を回転させながら引き下げることによって結晶させる方法である。この引き下げ法は、白金坩堝６１の底の細孔６１ａから漏れ出た原料融液の白金坩堝６１に対する濡れ性及び表面張力を利用して、白金坩堝６１と種子結晶６３との間に原料融液を保持しつつ結晶育成を行うため、ＬＢＯのように溶融時に粘性の大きい物質の結晶育成に適している。

【０００３】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、チョクラルスキー法は、Ｓｉ（シリコン）、ＬＴ、ＬＮなど、融液の粘性が比較的小さい物質の結晶育成には適しているが、ＬＢＯはＳｉ、ＬＴ、ＬＮなどと比べて融液の粘性が大きいため、育成の過程で気泡やクラックが入り易い。このためチョクラルスキー法によるＬＢＯ単結晶の育成速度は０．３ｍｍ／ｈ程度と他のＳｉ、ＬＴ、ＬＮ等の結晶に比べて１０分の１以下になるという問題があった。また、チョクラルスキー法による結晶製造装置は、ブリッジマン法、引き下げ法など他の方法による結晶製造装置に比べて一般に高価であるという問題もあった。

また、バーティカルブリッジマン法は、現在ＬＢＯ単結晶を育成する標準的な方法となっているが、ＬＢＯ単結晶を一回育成する度毎に白金坩堝を新たに用意しなければならず、製造コストが高くなるという問題がある。そこで多くの場合、白金坩堝への原料充填量を増やして白金坩堝の使用を減らす目的で、粉末原料よりも高価な非晶質ＬＢＯ焼結体を原料として使用している。また、バーティカルブリッジマン法では結晶の育成状況をその場で観察しながら育成を行うことができないため育成終了後でなければその良否を判断できないといった問題や、育成速度が０．３ｍｍ／ｈ～０．５ｍｍ／ｈ程度と遅く結晶育成に時間ががかり過ぎるため製造コストが高くなるという問題もあった。

さらに、チョクラルスキー法、バーティカルブリッジマン法は、いずれもＬＢＯ融液の粘性が大きいため、融液内の水分や気泡が残留し易く、結晶中にこれら水分や気泡が含まれてしまう場合が多い。

また、引き下げ法においては、白金坩堝の底の細孔から流出する融液の流量が坩堝内の融液量に伴って変化するため、直胴部すなわち均一な径の部分を多く有する良質な単結晶を得ることが難しいという問題があった。すなわち、坩堝内の融液量が多いときは細孔から流出する融液の流量も多いが、坩堝内の融液量が減少するに連れて流量が減少していくため、直胴部を多く得るためには、育成開始から終わりにかけて徐々に育成速度を低下させていく必要があり、そのための炉内温度制御や種子結晶の引き下げ速度制御などが困難であった。

また、いずれの育成方法においても坩堝内の原料容積が限定されているので、育成される結晶の寸法（長さ、直径など）には制限があった。

本発明は上記問題を解決すべく創案されたものであり、ＬＢＯなど融液の粘性が大きい物質をはじめとして、単結晶を連続的に低コストで容易に良質に製造できる単結晶製造装置および単結晶製造方法を提供することにある。

【０００４】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するために、請求項１に記載の発明に係る単結晶製造装置は、電気炉内に原料の入った坩堝を配置してこれを当該原料の融点以上の温度に保ち、坩堝の底部に形成された細孔から漏れ出た原料融液に種子結晶の上端部を接触させた状態で種子結晶を回転させながら引き下げることによって結晶を成長させる引き下げ法を用いた単結晶製造装置において、粉末原料（粉末状態の原料）を融解させて原料融液を生成するための原料融解槽と、この原料融解槽に粉末原料を供給する粉末原料供給手段と、当該原料融解槽内の原料融液を前記坩堝内に導入する原料融液導入手段とを備えており、前記原料融解槽は、前記電気炉内にて前記坩堝よりも高い位置に配置され、且つ、前記坩堝よりも温度の高い電気炉要素部分に配置したことを特徴としている。

上記のように構成された単結晶製造装置によれば、粉末原料供給手段により原料融解槽に

粉末原料を供給し、原料融解槽内で粉末原料を融解させて原料融液を生成し、この原料融液を原料融液導入手段により坩堝内に導入することにより、坩堝内に原料融液を供給しつつ結晶育成中を行うことができるので、結晶育成の始めから終わりまで坩堝内の融液量をほぼ一定に保ち、坩堝の底の細孔からの原料融液の流出量をほぼ一定に保ちつつ結晶育成を行うことができる。

また、請求項２に記載の発明に係る単結晶製造装置は、電気炉内に原料の入った坩堝を配置してこれを当該原料の融点以上の温度に保ち、坩堝の底部に形成された細孔から漏れ出た原料融液に種子結晶の上端部を接触させた状態で種子結晶を回転させながら引き下げることによって結晶を成長させる単結晶製造装置において、粉末原料を融解させて原料融液を生成するための原料融解槽と、この原料融解槽に粉末原料を供給する粉末原料供給手段と、当該原料融解槽内の原料融液を前記坩堝内に導入する原料融液導入手段とを備えており、前記粉末原料供給手段が、粉末原料を収容する粉末原料槽と、この粉末原料槽内の粉末原料中へ乾燥気体を導入する乾燥気体導入手段と、この粉末原料槽から原料融解槽へ粉末原料を移送するための原料移送手段とを有するものであることを特徴としている。

上記のように構成された単結晶製造装置によれば、粉末原料中に乾燥空気を導入して原料粉末の湿気を除去することにより、湿気による原料粉末の凝集を防ぎ、原料融解槽へ成分比一定の粉末原料を安定に供給できる。

また、請求項３に記載の発明に係る単結晶製造装置は、請求項２における原料融解槽が、坩堝と共に電気炉内に配置されており、原料移送手段は、原料融解槽へ粉末原料を移送すべくその一端側が粉末原料槽に他端側が電気炉内に挿入された移送管と、この移送管を外部から冷却する冷却手段とを備えたものであることを特徴としている。

上記のように構成された単結晶製造装置によれば、坩堝と原料融解槽とを一つの電気炉で加熱できるので装置構成を簡略化することができるとともに、電気炉外部から電気炉内の原料融解槽に粉末原料を移送する移送管を冷却することにより、移送管の途中で粉末原料が融解するのを防ぎ移送管の詰まりを防止できる。

また、請求項４に記載の発明に係る単結晶製造装置は、電気炉内に原料の入った坩堝を配置してこれを当該原料の融点以上の温度に保ち、坩堝の底部に形成された細孔から漏れ出た原料融液に種子結晶の上端部を接触させた状態で種子結晶を回転させながら引き下げることによって結晶を成長させる単結晶製造装置において、粉末原料を融解させて原料融液を生成するための原料融解槽と、この原料融解槽に粉末原料を供給する粉末原料供給手段と、当該原料融解槽内の原料融液を前記坩堝内に導入する原料融液導入手段とを備えており、前記原料融解槽が、坩堝よりも高い位置に配置されており、原料融液導入手段は、原料融解槽の底部に形成された孔から漏れ出て流下する原料融液をその表面を伝わらせて坩堝内へ案内する案内部材を備えたものであることを特徴としている。

上記のように構成された単結晶製造装置によれば、原料融解槽の底部から漏れ出た原料融液を案内部材の表面を伝わらせて自重により降下させて坩堝内へ供給しつつ、この原料融液中に残存する水分や不純物を坩堝に入る前に電気炉の熱で蒸発させて除去することができる。

また、請求項５記載の発明は、請求項１乃至４の何れかに記載の単結晶製造装置において、前記坩堝は、底部がテーパー角度θを持つ逆円錐形状であって、該底部には複数の細孔を設けたものであることを特徴としている。

また、請求項６記載の発明は、電気炉内に原料の入った坩堝を配置してこれを当該原料の融点以上の温度に保ち、坩堝の底部に形成された細孔から漏れ出た原料融液に種子結晶の上端部を接触させた状態で種子結晶を回転させながら引き下げることによって結晶を成長させる単結晶製造方法において、前記電気炉内の前記坩堝の上方に粉末原料を融解させて原料融液を生成するための原料融解槽を設けると共に、該原料融解槽は、前記坩堝よりも温度の高い電気炉要素部分に配置し、前記電気炉外に粉末原料を収容する粉末原料槽を設け、当該粉末原料槽から移送管を通して当該原料融解槽内に粉末原料を供給し、当該原料融解槽内で粉末原料を融解させてから前記坩堝内に導入することにより、前記坩堝内に原料融液を連続供給して、前記坩堝の底の細孔からの原料融液の流出量をほぼ一定に保ちつ

つ結晶育成を行うようにしたことを特徴としている。
また、請求項７記載の発明は、電気炉内に原料の入った坩堝を配置してこれを当該原料の融点以上の温度に保ち、坩堝の底部に形成された細孔から漏れ出た原料融液に種子結晶の上端部を接触させた状態で種子結晶を回転させながら引き下げることによって結晶を成長させる単結晶製造方法において、前記電気炉内の前記坩堝の上方に粉末原料を融解させて原料融液を生成するための原料融解槽を設け、前記電気炉外に粉末原料を収容する粉末原料槽を設け、当該粉末原料槽から移送管を通して当該原料融解槽内に粉末原料を供給し、当該原料融解槽内で粉末原料を融解させてから前記坩堝内に導入することにより、前記坩堝内に原料融液を連続供給して、前記坩堝の底の細孔からの原料融液の流出量をほぼ一定に保ちつつ結晶育成を行うようにし、更に、前記粉末原料槽内の粉末原料中へ乾燥気体を導入して当該粉末原料の湿気を除去すると共に、前記粉末原料槽から前記原料融解槽へ粉末原料を移送する移送管を設け、当該移送管を外部から冷却しつつ粉末原料を移送するようにしたことを特徴としている。
また、請求項８記載の発明は、請求項６または７に記載の単結晶製造方法において、前記原料融解槽から前記坩堝内へ原料融液を案内する案内部材を設け、前記原料融解槽の底部に形成された細孔から漏れ出て流下する原料融液を、当該案内部材の表面を伝わらせて前記坩堝内へ供給するようにしたことを特徴としている。
【０００５】
【発明の実施の形態】
以下、図面に示す実施の形態により本発明をより詳細に説明する。
図１（ａ）は本発明に係る単結晶製造装置１の実施の形態の一例を示す概略全体構成図である。この例では、ＬＢＯ単結晶を製造する場合について説明する。
図１（ａ）において１０は電気炉、２０は粉末原料供給装置、３０は結晶引き下げ装置である。
電気炉１０は円筒形状の３つの電気炉要素１０ａ、１０ｂ、１０ｃを上下に積み重ねて連結した構造になっており、電気炉１０内の下部には白金坩堝２が、上部には白金製の原料融解槽（以下、プリメルト坩堝という。）３が設けられている。また、プリメルト坩堝３と白金坩堝２との間には、プリメルト坩堝３で生成されたＬＢＯの原料融液５ｍを白金坩堝２内に導入するための案内部材である白金棒４が設けられている。
電気炉１０の最上部の電気炉要素１０ａはプリメルト坩堝３をＬＢＯの融点以上の温度（例えば、９９５°Ｃ）に加熱している。中間部の電気炉要素１０ｂは白金坩堝２をＬＢＯの融点以上の温度（例えば、９７０°Ｃ）に加熱している。また、最下部の電気炉要素１０ｃはＬＢＯの融点よりも低い温度（例えば、６９０°Ｃ）に設定されている。これにより中間部から最下部にかけて緩やかな温度勾配が形成され、育成された結晶の歪みを除去するアニール効果を有する。また、電気炉１０の側壁には、白金坩堝２の下部近傍すなわち結晶成長部を炉外から目視により観察できるように覗き窓１７が設けられている。この覗き窓１７は耐熱ガラスにて気密に閉塞されている。
粉末原料供給装置２０は、ＬＢＯの粉末原料５ｐを収容する粉末原料槽６と、図示しない粉末原料供給源から粉末原料槽６内に粉末原料５ｐを導入するための原料導入管７と、図示しない乾燥気体発生源から粉末原料槽６内の粉末原料５ｐ中に乾燥気体（乾燥空気、窒素、アルゴン、ヘリウム、等）を導入するための乾燥気体導入管８と、粉末原料槽６から原料融解槽３へ粉末原料５ｐを移送するための原料移送装置２１とを有している。
【０００６】
原料移送装置２１は、原料融解槽３へ粉末原料５ｐを移送すべくその上端側が粉末原料槽６の底部６ａに下端側が電気炉１０内に挿入された移送管９と、この移送管９を冷却するための冷却ジャケット１１と、粉末原料５ｐを強制移送すべく移送管９の途中に設けられた粉末供給ポンプ１２とを有する。移送管９及び冷却ジャケット１１は、電気炉１０の上蓋１０ｄの中央部に形成された貫通孔１３内に挿入されており、移送管９の下端部は原料融解槽３内に達している。冷却ジャケット１１は、移送管９の外周を取り囲むようにして設けられており、その内部を通過する冷媒により移送管９を外部から冷却することにより

、移送管９内を電気炉１０からの熱に抗してＬＢＯの融点温度未満に保っている。　結晶引き下げ装置３０は、種子結晶１４を保持するための保持部１５ａをその上端部に有する円柱状の回転ロッド１５と、この回転ロッド１５を鉛直姿勢に保持して軸回転させつつ上下に移動させる回転引き下げ装置１６とからなる。　図１（ｂ）に上記プリメルト坩堝３及び白金棒４の部分の構造を、図１（ｃ）に白金坩堝２の構造を示す。

【０００７】

図１（ｂ）に示すように、プリメルト坩堝３の底部には中央に孔３ａが開いており、この孔３ａに白金棒４の上端部が挿入されている。孔３ａの径は白金棒４の径よりも若干大きく設定されており、孔３ａから漏れ出た原料融液５ｍが白金棒４の表面を伝って流下することにより白金坩堝２内へ自然に案内される仕組みになっている。

図１（ｃ）に示すように、白金坩堝２の底部は漏斗状（逆円錐形状）に形成されるとともに、底部中央及びその周辺部には同一口径（例えば、０．５ｍｍ）複数の細孔２ａ、２ａ、・・が設けられており、複数の細孔２ａ、２ａ、・・から原料融液５ｍを流出させることにより、白金坩堝２の下面全体を有効に利用して育成中の結晶１８の上面との間に原料融液５ｍを保持しつつ結晶育成を行える構造になっている。

【０００８】

以上のように構成された単結晶製造装置１によれば以下のようにしてＬＢＯ単結晶を製造することができる。

まず、電気炉１０の電気炉要素１０ａ及び１０ｂの温度をＬＢＯの融点温度以上、電気炉要素１０ｃの温度をＬＢＯの融点温度未満にそれぞれ設定して炉内の加熱を開始し、炉内が設定温度になったらその状態を維持する。冷却ジャケット１１には冷媒を常時流し、粉末原料槽６内の粉末原料５ｐ中には乾燥気体導入管８を通して乾燥気体を常時導入しておく。

その後、粉末供給ポンプ１２を作動させ、粉末原料槽６から移送管９を通してプリメルト坩堝３内に粉末原料５ｐを所定量供給する。プリメルト坩堝３内に供給された粉末原料５ｐは電気炉１０により加熱されて融解し、原料融液５ｍとなってプリメルト坩堝３の底部の孔３ａから漏れ出し始める。そして、この原料融液５ｍが白金棒４の表面を伝って流下することにより、白金坩堝２内に原料融液５ｍが導入されていく。

白金坩堝２内に原料融液５ｍが溜まると、白金坩堝２の底部の複数の細孔２ａ、２ａ、・・から原料融液５ｍが漏出し始める。この状況は電気炉１０の覗き窓１７を通して観察することができるので、原料融液５ｍの漏れ出しが確認されたら、回転引き下げ装置１６により回転ロッド１５を上昇させ、回転ロッド１５に保持されている種子結晶１４の先端（上端）を白金坩堝２の下面を濡らしている原料融液５ｍに接触させる。

その後、種子結晶１４の先端を原料融液５ｍに接触させた状態を維持しつつ、回転引き下げ装置１６により回転ロッド１５を一定の向きに所定の速度（例えば、３０ｒｐｍ）で回転させながら一定の速度（例えば、０．７５ｍｍ／ｈ）で下降させることにより、種子結晶１４の先端から結晶１８を成長させていく。

【０００９】

その際、プリメルト坩堝３内への粉末原料５ｐの供給量を制御して白金坩堝２内への原料融液５ｍの導入量を制御することにより、結晶育成の始めから終わりまで白金坩堝２内の原料融液５ｍの量をほぼ一定に保って、白金坩堝２の底の細孔２ａ、２ａ、・・からの原料融液５ｍの流出量をほぼ一定に保ちつつ結晶１８の育成を行う。

このように白金坩堝２の底の細孔２ａ、２ａ、・・からの原料融液５ｍの流出量をほぼ一定に保つことにより、育成中の結晶１８の上面に単位時間あたりに供給される原料融液５ｍの量が結晶育成中ほぼ一定に保たれる。

【００１０】

したがって、本実施の形態の単結晶製造装置１によれば以下のような優れた利点を有する。

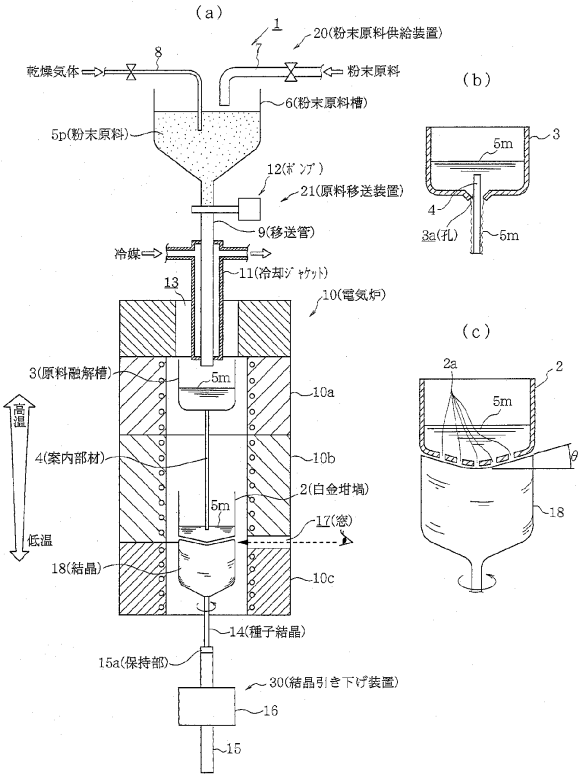
すなわち、育成中の結晶１８の上面に単位時間あたりに供給される原料融液５ｍの量を結晶育成中ほぼ一定に保つことができるので、粉末原料槽６からプリメルト坩堝３へ粉末原

料５ｐを連続的に供給しつつ結晶を育成することにより、直胴部を多く有する長寸のＬＢＯ単結晶を得ることができる。
また、粉末原料槽６に入れる粉末原料５ｐとして、ＬＢＯの粉末や、Li_2OとB_2O_3との混合粉末など自由に選択できるので、非晶質ＬＢＯ焼結体を原料として使用するバーチカルブリッジマン法と比較して原料コストを安くできる。また、チョクラルスキー法と同様に棒状種子を使用できることも製造コストを削減する上で有利である。
【００１１】
また、ＬＢＯ等の多元系単結晶は原料融解時の蒸気圧が原料成分毎に異なるため、原料融液の組成変動が生じ、育成結晶の組成変動を引き起こしたり、原料融液の粘性変化により均一な結晶育成が不可能となる場合が多いが、本実施の形態の単結晶製造装置１によれば、予め原料融解時の組成変動を見越して原料粉末５ｐの成分比率を調整しておくことにより、組成変動のない均一な結晶を育成することができる。
また、粉末原料槽６内の粉末原料５ｐ中に乾燥空気を導入して原料粉末５ｐの湿気を除去するようにしたので、湿気による原料粉末５ｐの凝集を防ぎ、プリメルト坩堝３へ成分比一定の粉末原料５ｐを安定に供給できる。
また、電気炉１０の外部から電気炉１０内のプリメルト坩堝３に粉末原料５ｐを移送する移送管９を冷却するようにしたので、移送管９の中で粉末原料５ｐが融解するのを防いで移送管９の詰まりを防止してプリメルト坩堝３に粉末原料５ｐを安定に供給できる。
また、プリメルト坩堝３の底部に形成された孔３ａから漏れ出て流下する原料融液５ｍを白金棒４の表面を伝わらせて白金坩堝２内へ案内するようにしたことにより、プリメルト坩堝３内で生成された原料融液５ｍ中に残存していた水分や不純物を白金坩堝２に入る前に電気炉の熱で蒸発除去できるので、気泡や不純物を含まない高品質の結晶を育成することができる。
【００１２】
また、電気炉１０の側壁に覗き窓１７を設けて結晶育成部をその場で観察できるようにしたので、種付け部やショルダー部の制御が容易である。
また、白金坩堝２の底部の複数の細孔２ａ、２ａ、・・の数、位置、大きさ、白金坩堝２の底形状、テーパ角度θ（図１（ｃ）参照）等を適切に設定することで育成結晶の直径を大きくすることが可能である。
また、上記電気炉１０、粉末原料供給装置２０、原料移送装置２１、結晶引き下げ装置３０等をコンピュータ制御することにより良質なＬＢＯ単結晶を自動育成することも可能である。
なお、上記実施の形態ではＬＢＯの単結晶を製造する場合を例にとり説明したが、上記構成の単結晶製造装置１は、光アイソレータの材料に使用されるルチル、シンチレータの材料に使用されるＢＧＯ、ＢＳＯ、非線形光学材料の一種であるＣＬＢＯ、圧電・光学材料として知られるＬＮ、ＬＴ、等の単結晶製造用としても応用できるものである。
【００１３】
【発明の効果】
以上説明したように、本発明は以下のような優れた効果を奏するものである。請求項１に記載の発明では、引き下げ法を用いた単結晶製造装置において、粉末原料供給手段により原料融解槽に粉末原料を供給し、原料融解槽内で粉末原料を融解させて原料融液を生成し、この原料融液を原料融液導入手段により坩堝内に導入することにより、坩堝内に原料融液を連続的に供給しつつ結晶育成を行えるようにしたので、ＬＢＯなど融液の粘性が大きい物質の単結晶を低コストで容易に且つ良質に製造できる。
また、請求項２に記載の発明では、粉末原料中に乾燥空気を導入して原料粉末の湿気を除去するようにしたので、湿気による原料粉末の凝集を防ぎ、原料融解槽へ成分比一定の粉末原料を安定に供給できる。
また、請求項３に記載の発明では、坩堝と原料融解槽とを一つの電気炉で加熱できるので装置構成を簡略化することができる。また、電気炉外部から電気炉内の原料融解槽に粉末原料を移送する移送管を冷却するように構成したので、移送管の中で粉末原料が融解して

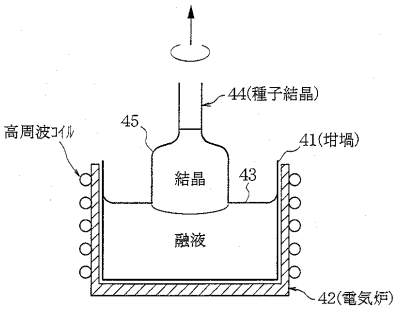
詰まりが発生するの防いで原料融解槽へ粉末原料を安定に供給できる。
また、請求項４に記載の発明では、原料融解槽の底部に形成された孔から漏れ出て流下する原料融液を案内部材の表面を伝わらせて坩堝内へ案内するようにしたことにより、原料融解槽内で生成された原料融液中に残存していた水分や不純物を坩堝に入る前に電気炉の熱で蒸発除去できるので、気泡や不純物を含まない高品質の結晶を育成することができる。
また、請求項５に記載の発明では、引き下げ法を用いた単結晶製造方法において、電気炉内の坩堝の上方に粉末原料を融解させて原料融液を生成するための原料融解槽を設け、電気炉外に粉末原料を収容する粉末原料槽を設け、当該粉末原料槽から移送管を通して当該原料融解槽内に粉末原料を供給し、当該原料融解槽内で粉末原料を融解させてから前記坩堝内に導入することにより、坩堝内に原料融液を連続供給して、坩堝の底の細孔からの原料融液の流出量をほぼ一定に保ちつつ結晶育成を行うようにしたので、ＬＢＯなど融液の粘性が大きい物質の単結晶を低コストで容易に且つ良質に製造できる。
また、請求項６に記載の発明では、粉末原料中に乾燥空気を導入して原料粉末の湿気を除去するようにしたので、湿気による原料粉末の凝集を防ぎ、原料融解槽へ成分比一定の粉末原料を安定に供給できる。
また、請求項７に記載の発明では、坩堝と原料融解槽とを一つの電気炉で加熱できるので単結晶製造に使用する装置構成を簡略化することができる。また、電気炉外部から電気炉内の原料融解槽に粉末原料を移送する移送管を冷却するように構成したので、移送管の中で粉末原料が融解して詰まりが発生するの防いで原料融解槽へ粉末原料を安定に供給できる。
また、請求項８に記載の発明では、原料融解槽の底部に形成された孔から漏れ出て流下する原料融液を案内部材の表面を伝わらせて坩堝内へ供給するようにしたことにより、原料融解槽内で生成された原料融液中に残存していた水分や不純物を坩堝に入る前に電気炉の熱で蒸発除去できるので、気泡や不純物を含まない高品質の結晶を育成することができる。

【図面の簡単な説明】
【図１】（ａ）は本発明に係る単結晶製造装置の実施の形態の一例を示す概略全体構成図、（ｂ）、（ｃ）は（ａ）に示す単結晶製造装置の部分拡大断面図である
【図２】従来の単結晶製造装置の一例を示す説明図である。
【図３】従来の単結晶製造装置の一例を示す説明図である。
【図４】従来の単結晶製造装置の一例を示す説明図である。
【符号の説明】
１：単結晶製造装置　　２：白金坩堝　　２ａ：細孔
３：プリメルト坩堝（原料融解槽）　　３ａ：孔　　４：白金棒（融液導入手段、案内部材）
５ｐ：末原料　　６：粉末原料槽　　６ａ：底部　　７：原料導入管
８：乾燥気体導入管　　９：移送管
１０：電気炉　　１０ａ、１０ｂ、１０ｃ：電気炉要素　　１０ｄ：上蓋
１１：冷却ジャケット（冷却手段）　　１２：粉末供給ポンプ
１４：種子結晶　　１５：回転ロッド　　１６：回転引き下げ装置
１７：覗き窓　　２０：粉末原料供給装置　　２１：原料移送装置

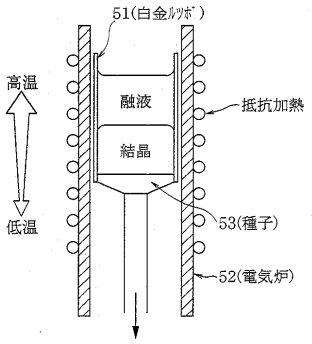
【図１】


(a)
1
20(粉末原料供給装置)
8
乾燥気体
粉末原料
6(粉末原料槽)
5p(粉末原料)
12(ﾎﾞﾝﾌﾟ)
21(原料移送装置)
9(移送管)
冷媒
11(冷却ｼﾞｬｹｯﾄ)
13
10(電気炉)
3(原料融解槽)
5m
10a
高温
4(案内部材)
10b
2(白金坩堝)
5m
17(窓)
低温
18(結晶)
10c
14(種子結晶)
15a(保持部)
30(結晶引き下げ装置)
16
15
(b)
5m
3
4
3a(孔)
5m
(c)
2a
2
5m
θ
18

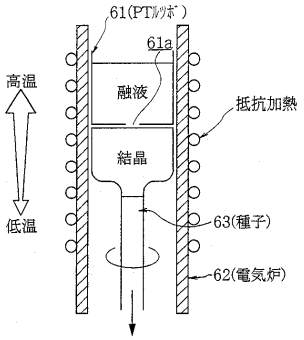
【図２】


高周波ｺｲﾙ
45
44(種子結晶)
41(坩堝)
結晶
43
融液
42(電気炉)

【図３】


51(白金ﾙﾂﾎﾞ)
高温
融液
抵抗加熱
結晶
53(種子)
低温
52(電気炉)

【図４】


61(PTﾙﾂﾎﾞ)
61a
高温
融液
抵抗加熱
結晶
63(種子)
低温
62(電気炉)

フロントページの続き

(56)参考文献 特開平０９－１４２９８８（ＪＰ，Ａ）
特開昭６２－０５６３９５（ＪＰ，Ａ）
特開平０２－２０４３９５（ＪＰ，Ａ）
Dae-Ho YOON et al., Crystal growth of dislocation-free LiNbO3 single crystals by micro pulling down method, Journal of Crystal Growth, 1994年, Vol.142, pp.339-343
北川高郎 ほか, 引き下げ法によるLi2B4O7単結晶の育成とその評価, Journal of the Ceramic Society of Japan, １９９７年 7月 1日, Vol.105, pp.616-619

(58)調査した分野(Int.Cl.[7], ＤＢ名)
C30B1/00-35/00
JSTPlus(JOIS)