

25番2号 虎ノ門ESビル8階 ダイ
ヤ特許事務所 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, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC,
EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR,
HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG,
KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU,
LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA,
UG, US, UZ, VC, VN, WS, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS,
MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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))

single crystal and a manufacturing device for an oxide single crystal that can relieve the burden on workers, eliminate mistakes by workers, and moreover lead to improved yield of oxide single crystals.

(57) 要約: 本発明の酸化物単結晶の製造方法は、単結晶用原料(8)の一部を融液化するようにルツボ(6)内の単結晶用原料(8)を加熱する第一の工程と、単結晶用原料(8)の全部を融液化するように単結晶用原料(8)を加熱して原料融液(8)を作製し、原料融液(8)の湯面に種結晶2を接触させる第二の工程と、種棒(3)の重量を測定しながら種棒(3)を引き上げるとともに、種結晶(2)から成長した単結晶の単結晶引上げ重量速度が所定値になるように加熱源(7)の出力を調整して、種結晶から単結晶のネック部、コーン部、及び直胴部を形成し、直胴部を形成した単結晶を湯面から切り離す第三の工程と、加熱源(7)の予め定めた出力で、湯面から切り離した単結晶を徐冷する第四の工程とを含み、第一～第四の工程を自動運転することを特徴とする。本発明の酸化物単結晶の製造装置は上述の第一～第四の工程を自動運転することができる製造装置である。本発明によれば、作業者の負担を軽減し、作業者のミスをなくすこと、さらには酸化物単結晶の歩留り向上につながる酸化物単結晶の製造方法及び酸化物単結晶の製造装置を提供することができる。

明 細 書

発明の名称：酸化物単結晶の製造方法及び製造装置

技術分野

[0001] 本発明は、酸化物単結晶の製造方法及び製造装置に関する。

背景技術

[0002] 引き上げ法はチョクラスキー法とも呼ばれ、単結晶用原料をルツボ内で加熱融解して原料融液の状態にした後、種結晶を融液に接触させ、回転しながら引き上げることによって単結晶を育成する方法である。

この方法は、単結晶がルツボと接触せず、ルツボによる機械的歪が発生しないので、高品質で大口径の結晶を作製しやすいという利点がある。

このため、イットリウム・アルミニウム・ガーネット ($Y_3Al_5O_{12}$; YAG)、サファイア (Al_2O_3)、ニオブ酸リチウム ($LiNbO_3$; LN)、タンタル酸リチウム ($LiTaO_3$; LT)、ゲルマニウム酸ビスマス ($Bi_4Ge_3O_{12}$; BGO) 等の酸化物単結晶がこの方法により製造されることが多い。

[0003] ところで、引き上げ法による酸化物単結晶の育成においては、種結晶を原料融液に接触させるシーディング操作の最適化が、育成される結晶の品質を決める重要な要素となる。例えば、適正なタイミングでシーディング操作がなされる場合、結晶のメニスカス径が安定するため、高品質の単結晶を育成することが可能となる。

シーディング操作のタイミングは、従来、熟練作業者が育成炉の観察窓を通して炉内の状態を観察し、作業者の経験と勘に頼って行われていた。このため、作業者間でシーディング操作のタイミングのバラツキが生じ、単結晶育成の成功率が不十分となることがあった。

この問題を解決するため、作業者間でシーディング操作のタイミングのバラツキが生じることを抑制する方法が検討されてきた。例えば、特許文献1に記載のシーディング操作方法では、計測されたルツボ底温度を所定の関

係式に代入してシーディング操作時におけるルツボ底温度を算出し、算出したルツボ底温度に測定したルツボ底温度が到達したタイミングにおいてシーディング操作を行っていた。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特許第6 5 7 5 7 6 4 号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] 原料融解時におけるルツボ底温度とシーディング操作時におけるルツボ底温度との関係式を求めるには、原料融解時における坩堝底温度とシーディング操作時におけるルツボ底温度との関係を精度よく調べるため、熟練者が1つのルツボについて、6～11回シーディング操作を行わなくてはならない。このため、特許文献1に記載のシーディング操作方法では、関係式を求めるのに時間がかかっていた。また、作業者間でシーディング操作のタイミングのバラツキが生じるために、特定の熟練者が関係式を求めることが好ましく、このため、特許文献1に記載のシーディング操作方法では、関係式を求めるのにさらに時間がかかる場合があった。また、通常、作業者が複数台掛け持ちしてシーディング操作を行うため、計算式によりシーディング操作時における適切なルツボ底温度を算出したとしても、そのルツボ底温度のタイミングでシーディング操作を行えない場合があった。そのため、適温よりも高い温度でシーディング操作を行ったため種棒と湯面が切り離されてしまったり、適温よりも低い温度でシーディング操作を行ったため、種棒の周りの原料融液が固化したりする等の問題が発生していた。

さらに、作業者が複数台掛け持ちしてシーディング操作を行うと、作業者の負担も多くなり、その結果、作業者間の作業効率のバラツキによる影響が大きくなり、作業者間の酸化物単結晶の歩留りのバラツキに影響を与えている可能性も考えられる。

本発明は、上記課題を解決すべく、作業者の負担を軽減し、作業者のミスをなくすこと、さらには酸化物単結晶の歩留り向上につながる酸化物単結晶の製造方法及び酸化物単結晶の製造装置を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 本発明者らは、鋭意検討した結果、シーディング操作を自動運転で行うことにより上記課題を解決できることを見だし、本発明に至った。すなわち、

[1] ルツボに投入された単結晶用原料を加熱源により加熱溶融して原料融液を作製し、該原料融液に種結晶を接触させて回転引き上げ法により酸化物単結晶を製造する酸化物単結晶の製造方法であって、

前記加熱源における前記単結晶用原料の一部を融液化する出力でルツボ内の単結晶用原料を加熱し、又は、前記単結晶用原料の温度が、前記単結晶用原料の一部を融液化する第1の温度となるように加熱源の出力を調整して、ルツボ内の単結晶用原料を加熱する第一の工程と、

前記ルツボ内の原料融液の温度が、前記単結晶用原料の全部を融液化する第2の温度になるように、前記加熱源の出力を調整して前記単結晶用原料を加熱して、原料融液を作製し、先端に種結晶を備えた種棒を降下させて前記原料融液の湯面に種結晶を接触させる第二の工程と、

前記種棒の重量を測定しながら前記種棒を引き上げるとともに、前記種結晶から成長した単結晶の単結晶引き上げ重量速度が所定値になるように、前記加熱源の出力を調整して、前記種結晶から単結晶のネック部、コーン部、及び直胴部を形成し、前記直胴部を形成した単結晶を前記湯面から切り離す第三の工程と、

前記加熱源の予め定めた出力で、前記湯面から切り離した単結晶を徐冷する第四の工程とを含み、

前記第一～前記第四の工程を自動運転することを特徴とする酸化物単結晶の製造方法。

[2] 前記第一の工程及び前記第二の工程において、前記ルツボ内の原料融

液の湯面を観察できるように設けられた覗き窓を介して放射温度計を用いて、前記原料融液の湯面温度を測定し、測定した該湯面温度に基づいて前記加熱源の出力を調整する上記〔１〕に記載の酸化物単結晶の製造方法。

〔３〕前記原料融液の湯面の位置におけるルツボの内径を R とした場合、前記原料融液の湯面温度を測定する位置と前記原料融液の湯面の中心位置との間の距離が $2/3 R$ 以下である上記〔２〕に記載の酸化物単結晶の製造方法。

〔４〕前記種結晶を接触させる種付け位置の湯面温度を測定する上記〔２〕に記載の酸化物単結晶の製造方法。

〔５〕前記原料融液の湯面温度を測定する位置と前記種結晶を接触させる前記原料融液の湯面の位置との間の距離が 15 mm 以上である上記〔２〕に記載の酸化物単結晶の製造方法。

〔６〕少なくとも前記第二の工程において、前記覗き窓の表面に雰囲気ガスを導入して前記覗き窓の曇りを防止する上記〔２〕～〔５〕のいずれか１つに記載の酸化物単結晶の製造方法。

〔７〕前記第二の工程において、下記の最大出力よりも小さな出力で、かつ下記の最小出力よりも大きな出力で前記加熱源の出力を調整する上記〔１〕～〔６〕のいずれか１つに記載の酸化物単結晶の製造方法。

最大出力：前記原料融液の温度が前記種結晶を融解する温度となるような前記加熱源の出力

最小出力：前記加熱源が前記単結晶用原料の溶融に伴う潜熱の熱量を発生するための前記加熱源の出力

〔８〕前記第二の工程は、前記種棒の重量を測定しながら前記種棒を降下させ、前記種棒の重量が 0.5 g 以上変化したとき、前記原料融液の湯面に前記種結晶が接触したと判断し、

前記第二の工程は、前記原料融液の湯面に前記種結晶を接触させた場合、前記種結晶下の前記原料融液が潜熱を奪われて固化するような第３の温度に、前記原料融液の温度がなるように前記加熱源の出力を調整して前記原料融

液を加熱した後、前記原料融液の湯面に種結晶を接触させ、その後、10分間保持したときの重量変化の絶対値が1g以下である場合、前記第三の工程に移行する上記〔1〕～〔7〕のいずれか1つに記載の酸化物単結晶の製造方法。

〔9〕ルツボに投入された単結晶用原料を加熱源により加熱溶融して原料融液を作製し、該原料融液に種結晶を接触させて回転引き上げ法により酸化物単結晶を製造する酸化物単結晶の製造装置であって、

先端に種結晶を備えた種棒と、

前記種棒の重量を測定するロードセルと、

前記種棒を回転させながら引き上げる引上回転駆動機構と、

前記ルツボに投入された単結晶用原料を加熱溶融する加熱源と、

前記ルツボ内の前記単結晶用原料及び前記原料融液の温度を測定する温度計と、

前記引上回転駆動機構及び前記加熱源を制御する制御部とを備え、

前記制御部は、前記加熱源における前記単結晶用原料の一部を融液化する出力でルツボ内の単結晶用原料を加熱し、又は、前記単結晶用原料の温度が、前記単結晶用原料の一部を融液化する第1の温度となるように加熱源の出力を調整して、ルツボ内の単結晶用原料を加熱する第一の工程と、

前記ルツボ内の原料融液の温度が、前記単結晶用原料の全部を融液化する第2の温度になるように、前記加熱源の出力を調整して前記単結晶用原料を加熱して、原料融液を作製し、先端に種結晶を備えた種棒を降下させて前記原料融液の湯面に種結晶を接触させる第二の工程と、

前記種棒の重量を測定しながら前記種棒を引き上げるとともに、前記種結晶から成長した単結晶の単結晶引き上げ重量速度が所定値になるように、前記加熱源の出力を調整して、前記種結晶から単結晶のネック部、コーン部、及び直胴部を形成し、前記直胴部を形成した単結晶を前記湯面から切り離す第三の工程と、

前記加熱源の予め定めた出力で、前記湯面から切り離した単結晶を徐冷す

る第四の工程とを実施することを特徴とする酸化物単結晶の製造装置。

〔10〕前記温度計は放射温度計であり、

前記制御部は、前記第一の工程及び前記第二の工程において、前記ルツボ内の原料融液の湯面を観察できるように設けられた覗き窓を介して前記放射温度計を用いて測定した前記原料融液の湯面温度に基づいて前記加熱源の出力を調整する上記〔9〕に記載の酸化物単結晶の製造装置。

〔11〕前記原料融液の湯面の位置におけるルツボの内径を R とした場合、前記原料融液の湯面温度を測定する位置と前記原料融液の湯面の中心位置との間の距離が $2/3 R$ 以下である上記〔10〕に記載の酸化物単結晶の製造装置。

〔12〕前記種結晶を接触させる種付け位置の湯面温度を測定する上記〔10〕に記載の酸化物単結晶の製造装置。

〔13〕前記原料融液の湯面温度を測定する位置と前記種結晶を接触させる前記原料融液の湯面の位置との間の距離が 15 mm 以上である上記〔10〕に記載の酸化物単結晶の製造装置。

〔14〕前記覗き窓の表面に雰囲気ガスを導入して前記覗き窓の曇りを防止する覗き窓の曇り防止手段をさらに備え、

前記制御部は、少なくとも前記第二の工程において、前記覗き窓の曇り防止手段によって前記覗き窓の曇りを防止する上記〔10〕～〔13〕のいずれか1つに記載の酸化物単結晶の製造装置。

〔15〕前記制御部は、前記第二の工程において、下記の最大出力よりも小さな出力で、かつ下記の最小出力よりも大きな出力で前記加熱源の出力を調整する上記〔9〕～〔14〕のいずれか1つに記載の酸化物単結晶の製造装置。

最大出力：前記原料融液の温度が前記種結晶を融解する温度となるような前記加熱源の出力

最小出力：前記加熱源が前記単結晶用原料の溶融に伴う潜熱の熱量を発生するための前記加熱源の出力

〔16〕前記制御部は、前記第二の工程において、前記種棒の重量を測定しながら前記種棒を降下させ、前記種棒の重量が0.5g以上変化したとき、前記原料融液の湯面に前記種結晶が接触したと判断し、

制御部は、さらに、前記第二の工程において、前記原料融液の湯面に前記種結晶を接触させた場合に前記種結晶下の前記原料融液が潜熱を奪われて固化するような第3の温度に、前記原料融液の温度がなるように前記加熱源の出力を調整して前記原料融液を加熱した後、前記原料融液の湯面に種結晶を接触させ、その後、10分間保持したときの重量変化の絶対値が1g以下である場合、前記第三の工程に移行する上記〔9〕～〔15〕のいずれか1つに記載の酸化物単結晶の製造装置。

発明の効果

〔0007〕 本発明によれば、作業者の負担を軽減し、作業者のミスをなくすこと、さらには酸化物単結晶の歩留り向上につながる酸化物単結晶の製造方法及び酸化物単結晶の製造装置を提供することができる。

図面の簡単な説明

〔0008〕〔図1〕図1は、本発明の一実施形態の酸化物単結晶の製造装置の概略図である。

〔図2〕図2（a）は、実施例1で使用した酸化物単結晶の製造装置の覗き窓を上から見たときの覗き窓の概略図であり、図2（b）は図2（a）のAA断面図である。

〔図3〕図3は、実施例1における第一の工程及び第二の工程での加熱源の出力（パワー）の変化、放射温度計で測定した原料融液の湯面の温度、熱電対で測定したルツボ底の温度、及びロードセルで測定した種棒の重量の変化を示すグラフである。

〔図4〕図4は、実施例1の第二の工程におけるルツボ内の単結晶用原料及び原料融液の加熱温度の設定パターンを示すグラフである。

発明を実施するための形態

〔0009〕〔酸化物単結晶の製造方法〕

本発明の酸化物単結晶の製造方法は、ルツボに投入された単結晶用原料を加熱源により加熱溶融して原料融液を作製し、原料融液に種結晶を接触させて回転引き上げ法により酸化物単結晶を製造する酸化物単結晶の製造方法であって、加熱源における単結晶用原料の一部を融液化する出力でルツボ内の単結晶用原料を加熱し、又は、単結晶用原料の温度が、単結晶用原料の一部を融液化する第1の温度となるように加熱源の出力を調整して、ルツボ内の単結晶用原料を加熱する第一の工程と、ルツボ内の原料融液の温度が、単結晶用原料の全部を融液化する第2の温度になるように、加熱源の出力を調整して単結晶用原料を加熱して、原料融液を作製し、先端に種結晶を備えた種棒を降下させて原料融液の湯面に種結晶を接触させる第二の工程と、種棒の重量を測定しながら種棒を引き上げるとともに、種結晶から成長した単結晶の単結晶引き上げ重量速度が所定値になるように、加熱源の出力を調整して、種結晶から単結晶のネック部、コーン部、及び直胴部を形成し、直胴部を形成した単結晶を湯面から切り離す第三の工程と、加熱源の予め定めた出力で、湯面から切り離した単結晶を徐冷する第四の工程とを含み、第一～第四の工程を自動運転することを特徴とする。これにより、作業者の負担が軽減され、作業者のミスがなくなり、さらには酸化物単結晶の歩留りが向上する。

[0010] (第一の工程)

第一の工程では、加熱源における単結晶用原料の一部を融液化する出力でルツボ内の単結晶用原料を加熱し、又は、単結晶用原料の温度が、単結晶用原料の一部を融液化する第1の温度となるように加熱源の出力を調整して、ルツボ内の単結晶用原料を加熱する。

[0011] 加熱源には、例えば、抵抗加熱方式加熱源、高周波誘導加熱方式加熱源等が挙げられる。高融点酸化物に適していることから、高周波誘導加熱方式加熱源が好ましい。高周波誘導加熱方式加熱源は、単結晶用原料が投入されるルツボとして、白金、イリジウム等の金属ルツボを使用し、金属ルツボを誘導加熱することにより単結晶用原料を加熱溶融する。加熱源の出力は、例えば、高周波定電流制御方式により制御される。

[0012] 加熱源における単結晶用原料の一部を融液化する出力でルツボ内の単結晶用原料を加熱するときの加熱時間は、例えば1～10時間であり、好ましくは1～4時間である。

[0013] 加熱源における単結晶用原料の一部を融液化する出力は、例えば、単結晶用原料を加熱しながら、覗き窓を通じて単結晶用原料の入ったルツボ内の状況を観察し、単結晶用原料の一部が融液化した時点の加熱源の出力を調べることにより求めることができる。

[0014] 単結晶用原料の温度を測定する温度計として、例えば、ルツボの底に接触させた熱電対、ルツボの壁の温度を検出する放射温度計、ルツボ内の原料融液の湯面温度を検出する放射温度計等を用いることができる。ルツボの底に接触させた熱電対は、酸化物単結晶の製造を繰り返している間に劣化して、温度の検出精度が悪くなることから、放射温度計を用いて測定することが好ましく、ルツボ内の原料融液の湯面で酸化物単結晶を成長させることから、放射温度計を用いてルツボ内の原料融液の湯面温度を検出することがより好ましい。例えば、覗き窓を介して放射温度計を用いて原料融液の温度を測定し、測定した温度に基づいて加熱源の出力を調整してもよい。

[0015] 第1の温度は、例えば、一部を融液化した単結晶用原料を加熱しながら、覗き窓を通じて単結晶用原料の入ったルツボ内の状況を観察し、単結晶用原料の一部が融液化した時点の温度を測定することにより求めることができる。製造する酸化物単結晶がタンタル酸リチウムの場合、第1の温度は、例えば1580℃である。

[0016] (第二の工程)

第二の工程では、ルツボ内の原料融液の温度が、単結晶用原料の全部を融液化する第2の温度になるように、加熱源の出力を調整して単結晶用原料を加熱して、原料融液を作製し、先端に種結晶を備えた種棒を降下させて原料融液の湯面に種結晶を接触させる。ルツボ内の原料融液の温度は、第一の工程における単結晶用原料の温度と同様の方法で測定することができる。

[0017] 第2の温度は、例えば、単結晶用原料を加熱しながら、覗き窓を通じて単

結晶用原料の入ったルツボ内の状況を観察し、単結晶用原料の全部が融液化した時点の温度を測定することにより求めることができる。製造する酸化物単結晶がタンタル酸リチウムの場合、第2の温度は、例えば1630℃である。

[0018] 原料融液の湯面に種結晶を接触させた場合、種結晶下の原料融液が潜熱を奪われて固化するような第3の温度に、原料融液の温度がなるように加熱源の出力を調整して原料融液を加熱することが好ましい。これにより、適切なタイミングでシーディング操作を開始することができる。原料融液の湯面に種結晶を接触させた場合、種結晶下の原料融液が潜熱を奪われて固化するような第3の温度とは、具体的には、シーディング操作の熟練者がシーディング操作を開始するときの原料融液の温度である。製造する酸化物単結晶がタンタル酸リチウムの場合、第3の温度は、例えば1639℃である。

[0019] 上述したように、ルツボの底に接触させた熱電対は、酸化物単結晶の製造を繰り返している間に劣化して、温度の検出精度が悪くなる。したがって、覗き窓を介して放射温度計を用いて原料融液の湯面温度を測定し、シーディング操作を実施する原料融液の温度（第3の温度）を決定することが好ましい。これにより、シーディング操作の熟練者がシーディング操作を開始する原料融液の温度を、使用する製造装置に関係なく、そのまま、シーディング操作を開始する温度として適用することができる。そして、ルツボ内の原料融液の湯面を観察できるように設けられた覗き窓を介して放射温度計を用いて測定した種結晶を接触させる位置の湯面温度に基づいて、湯面温度が第3の温度となるように加熱源の出力を調整することにより、作業者がシーディング操作の熟練者でなくても、作業者は、シーディング操作の熟練者と同じタイミングでシーディング操作を開始することができる。

[0020] また、原料融液の湯面温度の測定位置は、原料融液の湯面の位置におけるルツボの内径をRとした場合、原料融液の湯面の中心位置から $2/3 R$ 以下の距離内のいずれかの位置であってもよい。この場合、原料融液の湯面温度の測定範囲は、測定位置を中心とした5～10mmφ程の範囲内である。原

料融液の湯面の中心位置 $2/3 R$ 以下の距離の領域内ではルツボ外周側面付近に比べて湯面の温度勾配が小さくなるため、温度制御の繰り返し精度がよい。原料融液の湯面温度の測定位置は、原料融液の湯面の中心位置から $1/2 R$ 以下の距離内のいずれかの位置であることが好ましい。

[0021] 湯面温度の測定位置は、種結晶を接触させる位置であってもよい。この場合、原料融液の湯面温度の測定範囲は、測定位置を中心とした $5 \sim 10 \text{ mm}$ ϕ 程の範囲内である。このような湯面温度の測定位置により、種結晶を接触させる直前までの原料融液をシーディングの適温に制御することができる。

[0022] また、湯面温度の測定位置は、種付けの位置からの距離が 15 mm 以上離れた位置であってもよい。この場合、原料融液の湯面温度の測定範囲は、測定位置を中心とした $5 \sim 10 \text{ mm}$ ϕ 程の範囲内である。種棒を降ろして種結晶が原料融液に接触した瞬間に種結晶周囲の原料融液の温度が下がることがあるが、こうすることで放射温度計の計測値がこの温度低下の影響を受けにくくなり、放射温度計の温度計測値の低下に追従しようとして過剰に加熱源の出力を上げる動作を抑制することができる。湯面温度の測定位置は、種付けの位置からの距離が 20 mm 以上離れた位置であることが好ましい。

[0023] 種棒を降下させて原料融液の湯面に種結晶を接触させる前に、原料融液の湯面から 5 mm 以上、 40 mm 以下の範囲で 5 分以上保持させることが好ましい。これにより、原料融液とルツボからの輻射熱で、種結晶を原料融液に近い温度まで上げることができる。そうすることで、種結晶が原料融液に接触した際の種結晶にかかるヒートショックを和らげることができる。また、原料融液の温度が急激に低下して固化してしまうことも抑制することができる。融液からの距離が 5 mm よりも近いと、種結晶が原料融液に触れてしまう可能性がある。 40 mm よりも遠いと、輻射熱量が弱く種結晶の温度上昇が不十分である。保持時間が 5 分より短い場合も同様に種結晶の温度上昇が不十分となる可能性がある。さらに好ましくは、原料融液の湯面から 10 mm 以上、 30 mm 以下の範囲である。種結晶から湯面までの距離は、原料融液の重さから体積を計算してルツボ形状から融液界面の位置が計算でき、種

棒の移動距離から界面までの距離を計算することができる。その他に、レーザーセンサーなどで直接界面までの距離を測定しても良い。

[0024] 少なくとも第二の工程において、覗き窓の表面に雰囲気ガスを導入して覗き窓の曇りを防止することが好ましい。これにより、覗き窓を介して放射温度計を用いて測定した温度の精度をさらに高めることができる。なお、蒸発した融液や金属酸化物が温度の低い覗き窓で固化し覗き窓に付着することが覗き窓の曇りの原因となる。また、雰囲気ガスとは、酸化物単結晶を原料融液から引き上げるときの雰囲気ガスである。酸化物単結晶がタンタル酸リチウムの場合、雰囲気ガスは、例えば1体積%の酸素と99体積%の窒素との混合ガスである。雰囲気ガスを導入するときの雰囲気ガスの流速は、覗き窓の曇りを防止することができれば特に限定されないが、3～200 m/分が好ましく、30～150 m/分であることがより好ましい。なお、第一の工程において、覗き窓を介して放射温度計を用いて原料融液の温度を測定する場合も、雰囲気ガスを導入して覗き窓の曇りを防止することが好ましい。

[0025] 種棒を降下させて原料融液の湯面に種結晶を接触させるとき、種棒の重量を測定しながら種棒を降下させることが好ましい。そして、種棒の重量が0.5 g以上変化したとき、原料融液の湯面に種結晶が接触したと判断することが好ましい。これにより、原料融液の湯面への種結晶の接触が、より精度よく判断することができる。また、作業者間における原料融液の湯面への種結晶の接触のバラツキが小さくなる。

[0026] 種棒を降下させて原料融液の湯面に種結晶を接触させるとき、種棒をゆっくりと降下させることが好ましい。具体的には、種棒を降下させて原料融液の湯面に種結晶を接触させるときの、種棒の降下速度は好ましくは0.01～1 mm/秒であり、より好ましくは0.05～0.5 mm/秒である。

[0027] 原料融液の湯面に種結晶を接触させた後、10分間保持したときの重量変化の絶対値が1 g以下である場合、酸化物単結晶の引き上げ（第三の工程）を開始することが好ましい。これにより、より適切なタイミングで化物単結晶の引き上げ（第三の工程）を開始することができる。なお、10分間保持

したときの重量変化の絶対値が1 gより大きい場合は、例えば、装置よりアラームで作業者に知らせる。そして、作業者は再度シーディング操作を行う。具体的には、重量が1 gよりも大きく減少した場合は、種棒が湯面から切り離されてしまったためであると考えられるので、湯面の設定温度を低く微調整する。一方、重量が1 gよりも大きく増加した場合は、種棒の周りに固化ができてしまったためであると考えられるので、湯面の設定温度を高く微調整する。これらの操作により、湯面の温度を正しい適温に設定することが出来る。設定温度が適温かどうかは、再度シーディング操作を繰り返し、重量変化の絶対値が1 g以下になるか否かにより判断することができる。再度のシーディング操作により、湯面の温度が適温になった場合は、引き上げ（第三の工程）を開始することができる。

[0028] 第二の工程において、下記の最大出力よりも小さな出力で、かつ下記の最小出力よりも大きな出力で加熱源の出力を調整することが好ましい。加熱源の出力を下記の最小出力よりも大きくすることにより、固体が液体に変化する際の潜熱のみに対して加熱源の出力が使用され、原料融液の温度が所望の温度に達するまでの時間を長くなることを抑制することができる。また、加熱源の出力を下記の最大出力よりも小さくすることにより、原料融液の温度が急激に上昇したり、種結晶が溶解したりすることを抑制することができる。

最大出力：原料融液の温度が種結晶を融解する温度となるような加熱源の出力

最小出力：加熱源が単結晶用原料の溶融に伴う潜熱の熱量を発生するための加熱源の出力

なお、シーディング操作の熟練者は、種結晶を融解する温度となるような加熱源の出力及び原料融液の温度がなかなか上昇しないときの加熱源の出力を経験的に知っている。したがって、これらの加熱源の出力をそれぞれ、最大出力及び最小出力として適用してもよい。

[0029] 原料融液の温度が第2の温度から第3の温度となる間に、原料融液の温度

が第2の温度及び第3の温度よりも高い温度である第4の温度まで加熱してもよい。これにより、単結晶用原料をさらに完全に溶融できるとともに、原料融液の対流が大きくなり、原料融液をより均一にすることができる。製造する酸化物単結晶がタンタル酸リチウムの場合、第4の温度は、例えば1665℃である。なお、原料融液の温度が第4の温度であるときの保持時間は、原料融液の対流により、原料融液が十分に均一になれば、特に限定されないが、1分～10時間が好ましく、5分～1時間がより好ましい。

[0030] (第三の工程)

第三の工程では、種棒の重量を測定しながら種棒を引き上げるとともに、前記種結晶から成長した単結晶の単結晶引上げ重量速度が所定値になるように、加熱源の出力を調整して、種結晶から単結晶のネック部、コーン部、及び直胴部を形成して、直胴部を形成した単結晶を湯面から切り離す。第三の工程の単結晶の育成方法には、例えば、従来の結晶自動引上装置における結晶重量法による酸化物単結晶の自動直径制御に適用されているものを適用できる。

[0031] 例えば、単結晶のネック部を形成する場合は、単結晶引上げ重量速度が徐々に大きくなるように加熱源の出力を調整する。具体的には、種棒を引き上げながら、加熱源の出力を少しずつ低下させる。これにより、原料融液の湯面の温度は少しずつ低下するので、単結晶引上げ重量速度が徐々に大きくなり、その結果、単結晶は徐々に太くなる。また、単結晶の胴部を形成する場合は、単結晶引上げ重量速度が一定になるように加熱源の出力を調整する。具体的には、種棒を引き上げながら、加熱源の出力を一定にする。これにより、原料融液の湯面の温度は一定となるので、単結晶引上げ重量速度は一定となり、その結果、単結晶の太さは一定となる。そして、直胴部を形成した単結晶は湯面から切り離されることになる。なお、テール部のような緩やかな凸形状を単結晶に形成する場合は、単結晶の回転数をコントロールすることにより、緩やかな凸形状を単結晶に形成する。

[0032] (自動運転)

本発明の酸化物単結晶の製造方法では、上記第一～第四の工程を自動運転する。これにより、作業者が複数台掛け持ちしてシーディング操作を行う場合に、作業者の負担を低減することができる。上記第一～第四の工程は、例えば、後述の本発明の一実施形態の酸化物単結晶の製造装置を使用して自動運転することができる。

[0033] [酸化物単結晶の製造装置]

本発明の一実施形態の酸化物単結晶の製造装置は、ルツボに投入された単結晶用原料を加熱源により加熱溶融して原料融液を作製し、原料融液に種結晶を接触させて回転引き上げ法により酸化物単結晶を製造する酸化物単結晶の製造装置である。そして、本発明の一実施形態の酸化物単結晶の製造装置 1 は、図 1 に示すように、先端に種結晶 2 を備えた種棒 3 と、種棒 3 の重量を測定するロードセル 4 と、種棒 3 を回転させながら引き上げる引上回転駆動機構 5 と、ルツボ 6 に投入された単結晶用原料を加熱溶融する加熱源 7 と、ルツボ内の単結晶用原料及び原料融液 8 の温度を測定する温度計 9 と、引上回転駆動機構 5 及び加熱源 7 を制御する制御部 10 とを備える。種結晶 2、加熱源 7 は反応容器 12 に収納されている。そして、覗き窓 13 を通じてルツボ 6 内の結晶用原料及び原料融液 8 の状態を観察することができる。また、温度計 9 は、覗き窓 13 を介してルツボ 6 内の結晶用原料及び原料融液 8 の温度を測定することができる。なお、種棒 3、ロードセル 4、引上回転駆動機構 5、加熱源 7、温度計 9 及び引上回転駆動機構 5 は、従来の結晶自動引上装置に使用されているものを使用することができる。制御部 10 は、ロードセル 4 及び温度計 9 と接続しており、ロードセル 4 から種棒 3 の重量の情報を、温度計 9 からルツボ内の単結晶用原料及び原料融液 8 の温度の情報を取得することができる。

[0034] 制御部 10 は、ロードセル 4 から種棒 3 の重量の情報及び温度計 9 からルツボ内の単結晶用原料及び原料融液 8 の温度の情報に基づいて、引上回転駆動機構 5 及び加熱源 7 を制御することができる。これにより、制御部 10 は、加熱源 7 における単結晶用原料 8 の一部を融液化する出力でルツボ 6 内の

単結晶用原料を 8 加熱し、又は、単結晶用原料 8 の温度が、単結晶用原料の一部を融液化する第 1 の温度となるように加熱源 7 の出力を調整して、ルツボ内の単結晶用原料 8 を加熱する第一の工程と、ルツボ 6 内の原料融液の温度が、単結晶用原料 8 の全部を融液化する第 2 の温度になるように、加熱源 7 の出力を調節して単結晶用原料 8 を加熱して、原料融液を作製し、先端に種結晶 2 を備えた種棒 3 を降下させて原料融液 8 の湯面に種結晶 2 を接触させる第二の工程と、種棒 3 の重量を測定しながら種棒 3 を引き上げるとともに、種結晶 2 から成長した単結晶の単結晶引上げ重量速度が所定値になるように、加熱源 7 の出力を調節して、種結晶 2 から単結晶のネック部、コーン部、及び直胴部を形成し、直胴部を形成した単結晶を湯面から切り離す第三の工程と、加熱源 7 の予め定めた出力で、湯面から切り離した単結晶を徐冷する第四の工程とを実施することができる。なお、第一～第四の工程については、上述の本発明の酸化物単結晶の製造方法の説明の単元で説明したので、第一～第四の工程の説明は省略する。

[0035] 図 2 (a) 及び図 2 (b) に示すように、覗き窓 13 の外周の一部にスリット 14 を形成し、そこから覗き窓の表面に雰囲気ガスを導入して、覗き窓 13 の曇りを防止してもよい。なお、図 2 (b) の矢印は雰囲気ガスの流れを示す。

[0036] ルツボ 6 内の原料融液 8 の温度の参考データとなるので、図 1 に示すように、酸化物単結晶の製造装置 1 は、ルツボの底に接触させた熱電対 15 をさらに備えてもよい。

[0037] 本発明の一実施形態の酸化物単結晶の製造装置は、ルツボを回転させるルツボ回転駆動機構をさらに備えてもよい。また、本発明の一実施形態の酸化物単結晶の製造装置は、種棒の引き上げ長を検出するために、マグネスケール等の位置センサをさらに備えてもよい。さらに加熱源のワークコイルの位置を移動できるようにするために、本発明の一実施形態の酸化物単結晶の製造装置は、ワークコイル移動駆動機構をさらに備えてもよい。この場合、ワークコイルの移動長を検出できるようにするために、本発明の一実施形態の

酸化物単結晶の製造装置は、マグネスケール等の位置センサをさらに備えてもよい。

[0038] 本発明の一実施形態の酸化物単結晶の製造装置 1 は、本発明の酸化物単結晶製造装置の一例に過ぎないので、本発明の一実施形態の酸化物単結晶の製造装置 1 は、本発明の酸化物単結晶製造装置を限定しない。

実施例

[0039] 以下に実施例及び比較例を挙げて、本発明をさらに具体的に説明するが、本発明はこれら実施例に限定されるものではない。

[0040] [実施例 1]

コングルメント組成の原料を用い、内径が 150 mm ϕ の円筒形のルツボを使用して、高周波誘導加熱炉によってチョクラルスキー法により直径 4 インチのタンタル酸リチウム単結晶の製造を行った。タンタル酸リチウム単結晶の製造に使用した製造装置の概略図を図 1 に示す。この装置を使用することにより、後述の第一～第四の工程を自動運転した。また、タンタル酸リチウム単結晶の製造に使用した製造装置の覗き窓 13 の概略図を図 2 (a) 及び図 2 (b) に示した。覗き窓 13 の外周の一部にスリット 14 を形成し、そこから 1 体積%の酸素と 99 体積%の窒素との雰囲気ガスを 4 L 導入した。このときの雰囲気ガスの流速は 40 m/分であった。

[0041] まず初めに加熱源 7 の発振機の電源を ON にし、加熱源 7 の所定の出力で 2 時間かけて単結晶用原料の一部が融液化するまで昇温した。このときのルツボ底温度は 1350℃であり覗き窓 13 から確認したルツボ 6 内の状態は固液混合状態であり、覗き窓 13 越しに測定した原料融液の湯面の温度は 1580℃であった。

ルツボ底の温度測定には熱電対 15、覗き窓 13 からの湯面温度を測定する温度計 9 として放射温度計を使用した。種付けの位置は湯面におけるルツボの中心位置であり、放射温度計 9 による温度測定の範囲は、種付けの位置を中心に湯面 10 mm ϕ 程の範囲であった。図 3 に、第一の工程及び第二の工程での加熱源の出力（パワー）の変化、温度計 9 で測定した原料融液の湯

面の温度、熱電対 15 で測定したルツボ底の温度、及びロードセル 4 で測定した種棒 3 の重量の変化を示す。第一の工程が 2 時間経過もしくは原料融液 8 の湯面温度が 1580℃以上になったところで第二の工程に移行し、温度計 9 の信号を加熱源 7 の出力にフィードバックし、単結晶用原料及び原料融液 8 の温度を制御した。

[0042] 図 4 に、第二の工程におけるルツボ 6 内の単結晶用原料及び原料融液 8 の温度の設定パターンを示す。図 4 に示すように、20 分かけて 1580℃から 1630℃まで原料融液 8 の湯面温度が上昇するように加熱源 7 の出力を制御した (STEP 1)。このときに、上述のように加熱源 7 の出力の最大値及び最小値を設定し、加熱源 7 の出力を最小値より大きく、最大値よりも小さくなるように制御した。なぜなら、加熱源 7 の出力が最大値以上であると種棒 3 が溶けてしまうおそれがある。また、加熱源の 7 の出力が最小値以下であると固体が液体に変化する際の潜熱として加熱源 7 の出力が使われるだけで原料融液 8 の湯面温度が所望の温度にならないことがあるためである。

[0043] その後、1630℃から 1665℃まで 3℃/分の昇温速度で原料融液 8 の湯面温度を上昇させて (STEP 2)、ルツボ内の原料融液 8 の対流によって原料融液 8 をより均一化するために 20 分保持した後 (STEP 3)、20 分かけて 1639℃ (適温) まで原料融液 8 の湯温を降下させた (STEP 4)。途中 1650℃以下になったところで、種棒 3 を自動で 70 mm 降下させ、原料融液 8 の湯面から 30 mm の高さの位置に移動させ、さらに原料融液 1639℃になったところ (STEP 5) で種棒 3 を 20 mm 降下させた。1639℃ (適温) の原料融液 8 の湯面温度で 10 分間保持した後、0.1 mm/秒の速さで種棒 3 を 1 mm ずつ降下させ、ロードセル 4 により検出した種棒 3 の重量変化が 0.5 g 生じたところで種棒 3 を停止させ、シーディングを実施した。シーディング完了後、ロードセル 4 で検出した種棒 3 の重量変化が 10 分間で ±1 g 以内であることを判断し、結晶引上工程 (第三の工程) へ自動で移行した。

[0044] 第三の工程では、ロードセル 4 で検出した種棒 3 の重量を、加熱源 7 の出

力にフィードバックすることで、結晶から単結晶のネック部、コーン部、及び直胴部を形成し、直胴部を形成した単結晶を原料融液 8 の湯面から切り離し、結晶育成を終了した。

[0045] 第四の工程では、原料融液 8 の湯面から切り離された単結晶を、加熱源 7 の出力を制御しながら 8 時間かけて室温まで冷却した。

[0046] 上述の第一～第四の工程を自動運転することができたので、作業者が複数台掛け持ちしていても作業者の負担を軽減することができ、作業者のミスをなくすこと、さらにはタンタル酸リチウム単結晶の歩留り向上につながった。

同様の操作を 10 回実施したところ、8 回は問題なく自動運転することができた。2 回は種結晶を原料融液に接触した後、切れてしまう現象が発生した。

[0047] [実施例 2]

コングルエント組成の原料を用い、内径が 150 mm ϕ のルツボを使用して、高周波誘導加熱炉によってチョクラルスキー法により直径 4 インチのタンタル酸リチウム単結晶の製造を行った。種付けの位置は湯面におけるルツボの中心位置であり、放射温度計 9 による温度測定の位置は、種付けの位置の中心から 25 mm ϕ の位置で、湯面 5 mm ϕ の範囲を測定するようにした。その他の条件は実施例 1 と同じ操作を実施した。特に問題なく、第一～第四の工程を自動運転することができた。同様のタンタル酸リチウム製造を計 10 回実施したところ、10 回問題なく自動運転することができた。

[0048] [実施例 3]

コングルエント組成の原料を用い、内径が 150 mm ϕ のルツボを使用して、高周波誘導加熱炉によってチョクラルスキー法により直径 4 インチのタンタル酸リチウム単結晶の製造を行った。種付けの位置は湯面におけるルツボの中心位置であり、放射温度計 9 による温度測定の位置は、種付けの位置の中心から 90 mm ϕ の位置で、湯面 5 mm ϕ の範囲を測定するようにした。この時の放射温度計の制御温度は 1645℃に設定した（種結晶と原料融

液の接触する部分の温度が1639℃になる設定温度)。その他の条件は実施例1と同じ操作を実施した。特に問題なく、第一～第四の工程を自動運転することができた。同様のタンタル酸リチウム製造を計10回実施したところ、10回問題なく自動運転することができた。

[0049] [実施例4]

コングルエント組成の原料を用い、内径が200mmφのルツボを使用して、高周波誘導加熱炉によってチョクラスキー法により直径6インチのタンタル酸リチウム単結晶の製造を行った。種付けの位置は湯面におけるルツボの中心位置であり、放射温度計9による温度測定の範囲は、種付けの位置の中心から130mmφの位置で、湯面5mmφの範囲を測定するようにした。この時の放射温度計の制御温度は1644℃に設定した(種結晶と原料融液の接触する部分の温度が1639℃になる設定温度)。その他の条件は実施例1と同じ操作を実施した。特に問題なく、第一～第四の工程を自動運転することができた。同様のタンタル酸リチウム製造を計10回実施したところ、10回問題なく自動運転することができた。

[0050] [実施例5]

コングルエント組成の原料を用い、内径が200mmφのルツボを使用して、高周波誘導加熱炉によってチョクラスキー法により直径6インチのタンタル酸リチウム単結晶の製造を行った。放射温度計9による温度測定の範囲は、湯面におけるルツボの中心位置から150mmφの位置で、湯面5mmφの範囲を測定するようにした。この時の放射温度計の制御温度は1649℃に設定した(種結晶と原料融液の接触する部分の温度が1639℃になる設定温度)。その他の条件は実施例1と同じ操作を実施した。特に問題なく、第一～第四の工程を自動運転することができた。同様のタンタル酸リチウム製造を計10回実施したところ、9回は問題なく自動運転することができた。しかし、1回は種結晶を原料融液に接触した後、原料融液が部分的に固化してしまう現象が発生した。

[0051] [比較例1]

第一の工程は、実施例 1 と同じ操作を実施した。

第二の工程は、マニュアル操作で種棒が溶解しない出力（実施例の最大値の近傍の出力に相当）で 1 5 8 0℃から 1 6 3 0℃まで上昇させた。そして、図 3 に示す温度の設定パターンに合わせて、マニュアル操作で、原料融液の湯面の温度を調整した。原料融液の液面の温度が 1 6 3 9℃になったところで種棒を 2 0 m m 降下させ、1 6 3 9℃（適温）の湯面の温度で 1 0 分間保持した後、作業者は、覗き窓を介して原料融液の湯面を観察しながら種棒を降下させ、原料融液の湯面と種棒の接触を確認してシーディングを完了させた。シーディング完了後、ロードセルの重量変化が 1 0 分間で ± 1 g 以内であることを作業者が確認した。そして、結晶引上開始ボタンを押し、マニュアルから自動の結晶育成工程に移行した。

[0052] 第三の工程及び第四の工程は実施例 1 の第三の工程及び第四の工程と同様にそれぞれ実施した。

第二の工程については、作業者が、酸化物単結晶の製造装置を複数台、掛け持ちして、シーディング操作の作業を実施したとき、何台かの酸化物単結晶の製造装置では、シーディング操作を適温で実施できない場合があった。例えば、シーディング操作を行う温度が適温よりも高くなってしまい、種付け後に種がネック切れになってしまうような単純なミスが発生した。特に、作業者が新人である場合、上述したような単純なミスの発生頻度が高くなり、生産性が落ちてしまうということが生じた。なお、実施例 1 ～ 5 では、そのような単純なミスは全く発生しなかった。

符号の説明

- [0053] 1 酸化物単結晶の製造装置
2 種結晶
3 種棒
4 ロードセル
5 引上回転駆動装置
6 ルツボ

- 7 加熱源
- 8 単結晶用原料及び原料融液
- 9 温度計
- 10 制御部
- 12 反応容器
- 13 覗き窓
- 14 スリット
- 15 熱電対

請求の範囲

[請求項1]

ルツボに投入された単結晶用原料を加熱源により加熱溶融して原料融液を作製し、該原料融液に種結晶を接触させて回転引き上げ法により酸化物単結晶を製造する酸化物単結晶の製造方法であって、

前記加熱源における前記単結晶用原料の一部を融液化する出力でルツボ内の単結晶用原料を加熱し、又は、前記単結晶用原料の温度が、前記単結晶用原料の一部を融液化する第1の温度となるように加熱源の出力を調整して、ルツボ内の単結晶用原料を加熱する第一の工程と、

前記ルツボ内の原料融液の温度が、前記単結晶用原料の全部を融液化する第2の温度になるように、前記加熱源の出力を調整して前記単結晶用原料を加熱して、原料融液を作製し、先端に種結晶を備えた種棒を降下させて前記原料融液の湯面に種結晶を接触させる第二の工程と、

前記種棒の重量を測定しながら前記種棒を引き上げるとともに、前記種結晶から成長した単結晶の単結晶引上げ重量速度が所定値になるように、前記加熱源の出力を調整して、前記種結晶から単結晶のネック部、コーン部、及び直胴部を形成し、前記直胴部を形成した単結晶を前記湯面から切り離す第三の工程と、

前記加熱源の予め定めた出力で、前記湯面から切り離した単結晶を徐冷する第四の工程とを含み、

前記第一～前記第四の工程を自動運転することを特徴とする酸化物単結晶の製造方法。

[請求項2]

前記第一の工程及び前記第二の工程において、前記ルツボ内の原料融液の湯面を観察できるように設けられた覗き窓を介して放射温度計を用いて、前記原料融液の湯面温度を測定し、測定した該湯面温度に基づいて前記加熱源の出力を調整する請求項1に記載の酸化物単結晶の製造方法。

- [請求項3] 前記原料融液の湯面の位置におけるルツボの内径をRとした場合、前記原料融液の湯面温度を測定する位置と前記原料融液の湯面の中心位置との間の距離が $2/3 R$ 以下である請求項2に記載の酸化物単結晶の製造方法。
- [請求項4] 前記種結晶を接触させる種付け位置の湯面温度を測定する請求項2に記載の酸化物単結晶の製造方法。
- [請求項5] 前記原料融液の湯面温度を測定する位置と前記種結晶を接触させる前記原料融液の湯面の位置との間の距離が15 mm以上である請求項2に記載の酸化物単結晶の製造方法。
- [請求項6] 少なくとも前記第二の工程において、前記覗き窓の表面に雰囲気ガスを導入して前記覗き窓の曇りを防止する請求項2～5のいずれか1項に記載の酸化物単結晶の製造方法。
- [請求項7] 前記第二の工程において、下記の最大出力よりも小さな出力で、かつ下記の最小出力よりも大きな出力で前記加熱源の出力を調整する請求項1～6のいずれか1項に記載の酸化物単結晶の製造方法。
最大出力：前記原料融液の温度が前記種結晶を融解する温度となるような前記加熱源の出力
最小出力：前記加熱源が前記単結晶用原料の溶融に伴う潜熱の熱量を発生するための前記加熱源の出力
- [請求項8] 前記第二の工程は、前記種棒の重量を測定しながら前記種棒を降下させ、前記種棒の重量が0.5 g以上変化したとき、前記原料融液の湯面に前記種結晶が接触したと判断し、
前記第二の工程は、前記原料融液の湯面に前記種結晶を接触させた場合、前記種結晶下の前記原料融液が潜熱を奪われて固化するような第3の温度に、前記原料融液の温度がなるように前記加熱源の出力を調整して前記原料融液を加熱した後、前記原料融液の湯面に種結晶を接触させ、その後、10分間保持したときの重量変化の絶対値が1 g以下である場合、前記第三の工程に移行する請求項1～6のいずれか

1 項に記載の酸化物単結晶の製造方法。

[請求項9]

ルツボに投入された単結晶用原料を加熱源により加熱溶融して原料融液を作製し、該原料融液に種結晶を接触させて回転引き上げ法により酸化物単結晶を製造する酸化物単結晶の製造装置であって、

先端に種結晶を備えた種棒と、

前記種棒の重量を測定するロードセルと、

前記種棒を回転させながら引き上げる引上回転駆動機構と、

前記ルツボに投入された単結晶用原料を加熱溶融する加熱源と、

前記ルツボ内の前記単結晶用原料及び前記原料融液の温度を測定する温度計と、

前記引上回転駆動機構及び前記加熱源を制御する制御部とを備え、

前記制御部は、前記加熱源における前記単結晶用原料の一部を融液化する出力でルツボ内の単結晶用原料を加熱し、又は、前記単結晶用原料の温度が、前記単結晶用原料の一部を融液化する第1の温度となるように加熱源の出力を調整して、ルツボ内の単結晶用原料を加熱する第一の工程と、

前記ルツボ内の原料融液の温度が、前記単結晶用原料の全部を融液化する第2の温度になるように、前記加熱源の出力を調整して前記単結晶用原料を加熱して、原料融液を作製し、先端に種結晶を備えた種棒を降下させて前記原料融液の湯面に種結晶を接触させる第二の工程と、

前記種棒の重量を測定しながら前記種棒を引き上げるとともに、前記種結晶から成長した単結晶の単結晶引き上げ重量速度が所定値になるように、前記加熱源の出力を調整して、前記種結晶から単結晶のネック部、コーン部、及び直胴部を形成し、前記直胴部を形成した単結晶を前記湯面から切り離す第三の工程と、

前記加熱源の予め定めた出力で、前記湯面から切り離した単結晶を徐冷する第四の工程とを実施することを特徴とする酸化物単結晶の製

造装置。

- [請求項10] 前記温度計は放射温度計であり、
前記制御部は、前記第一の工程及び前記第二の工程において、前記ルツボ内の原料融液の湯面を観察できるように設けられた覗き窓を介して前記放射温度計を用いて測定した前記原料融液の湯面温度に基づいて前記加熱源の出力を調整する請求項9に記載の酸化物単結晶の製造装置。
- [請求項11] 前記原料融液の湯面の位置におけるルツボの内径をRとした場合、前記原料融液の湯面温度を測定する位置と前記原料融液の湯面の中心位置との間の距離が $2/3 R$ 以下である請求項10に記載の酸化物単結晶の製造装置。
- [請求項12] 前記種結晶を接触させる種付け位置の湯面温度を測定する請求項10に記載の酸化物単結晶の製造装置。
- [請求項13] 前記原料融液の湯面温度を測定する位置と前記種結晶を接触させる前記原料融液の湯面の位置との間の距離が15mm以上である請求項10に記載の酸化物単結晶の製造装置。
- [請求項14] 前記覗き窓の表面に雰囲気ガスを導入して前記覗き窓の曇りを防止する覗き窓の曇り防止手段をさらに備え、
前記制御部は、少なくとも前記第二の工程において、前記覗き窓の曇り防止手段によって前記覗き窓の曇りを防止する請求項10～13のいずれか1項に記載の酸化物単結晶の製造装置。
- [請求項15] 前記制御部は、前記第二の工程において、下記の最大出力よりも小さな出力で、かつ下記の最小出力よりも大きな出力で前記加熱源の出力を調整する請求項9～14のいずれか1項に記載の酸化物単結晶の製造装置。
最大出力：前記原料融液の温度が前記種結晶を融解する温度となるような前記加熱源の出力
最小出力：前記加熱源が前記単結晶用原料の熔融に伴う潜熱の熱量を

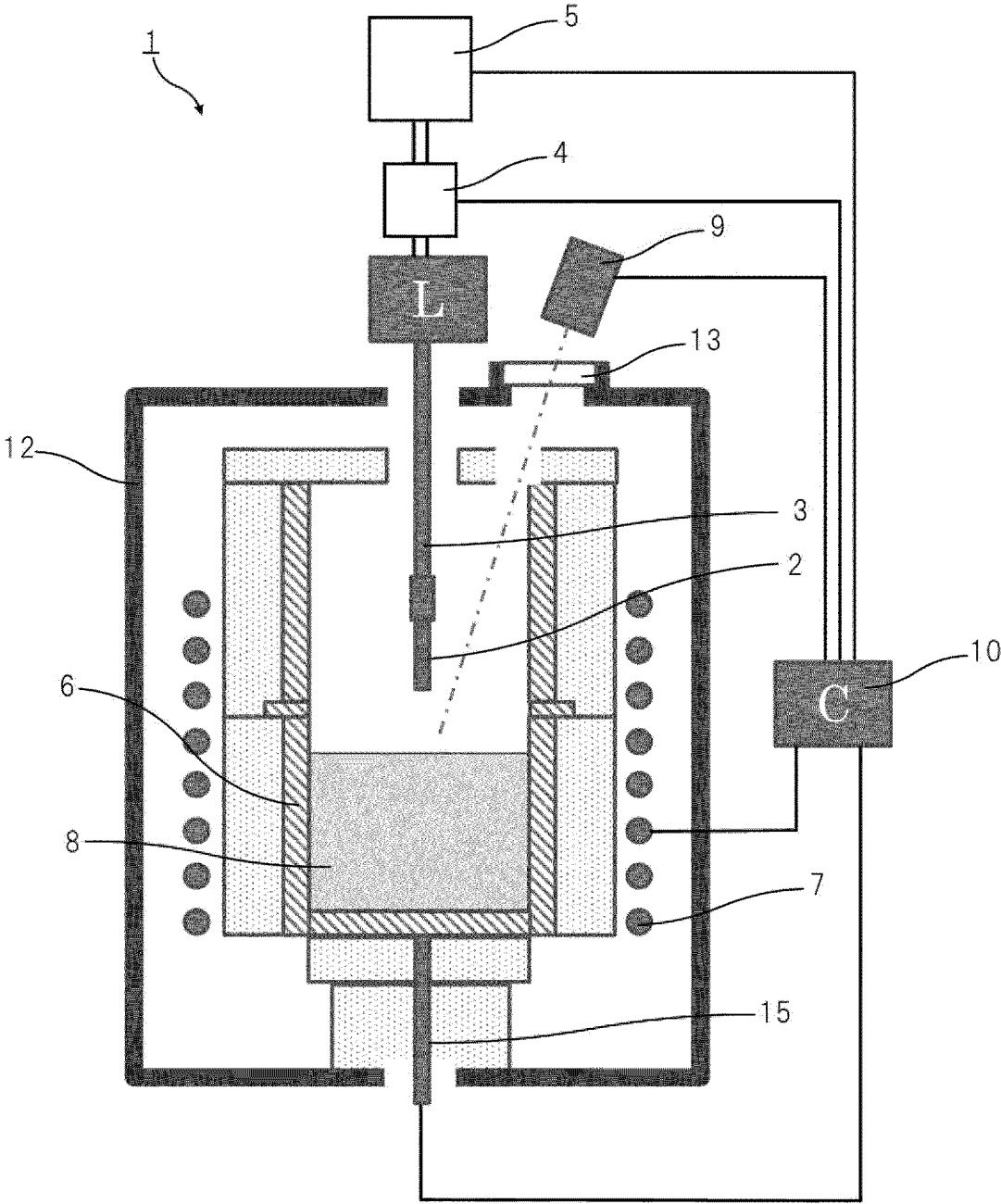
発生するための前記加熱源の出力

[請求項16]

前記制御部は、前記第二の工程において、前記種棒の重量を測定しながら前記種棒を降下させ、前記種棒の重量が0.5 g以上変化したとき、前記原料融液の湯面に前記種結晶が接触したと判断し、

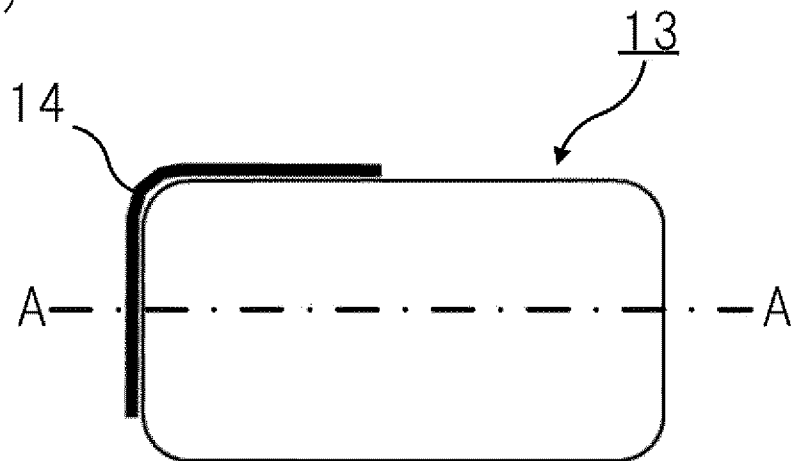
制御部は、さらに、前記第二の工程において、前記原料融液の湯面に前記種結晶を接触させた場合に前記種結晶下の前記原料融液が潜熱を奪われて固化するような第3の温度に、前記原料融液の温度がなるように前記加熱源の出力を調整して前記原料融液を加熱した後、前記原料融液の湯面に種結晶を接触させ、その後、10分間保持したときの重量変化の絶対値が1 g以下である場合、前記第三の工程に移行する請求項9～15のいずれか1項に記載の酸化物単結晶の製造装置。

[図1]

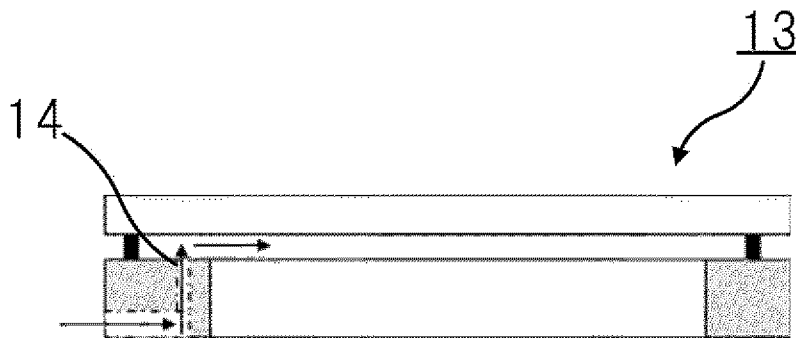


[図2]

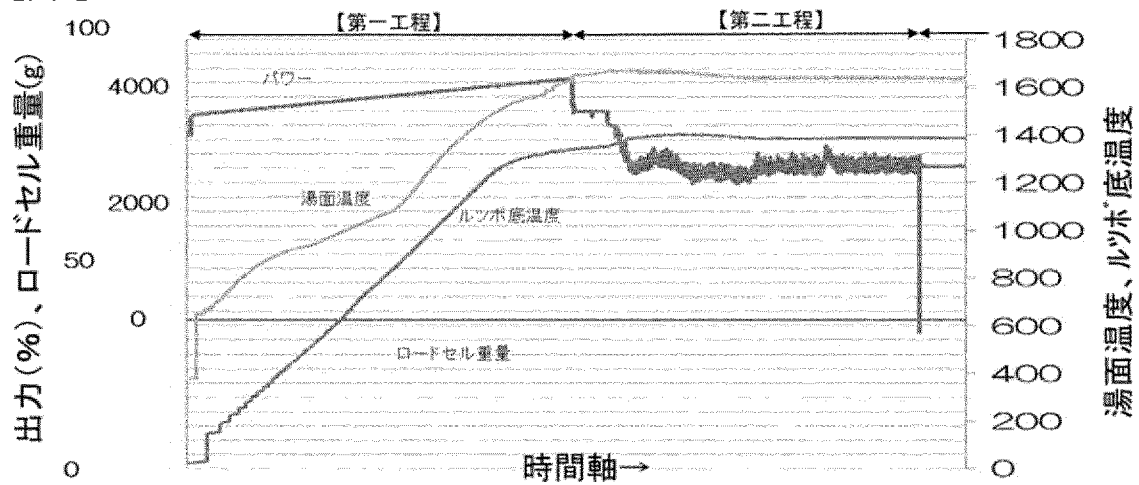
(a)



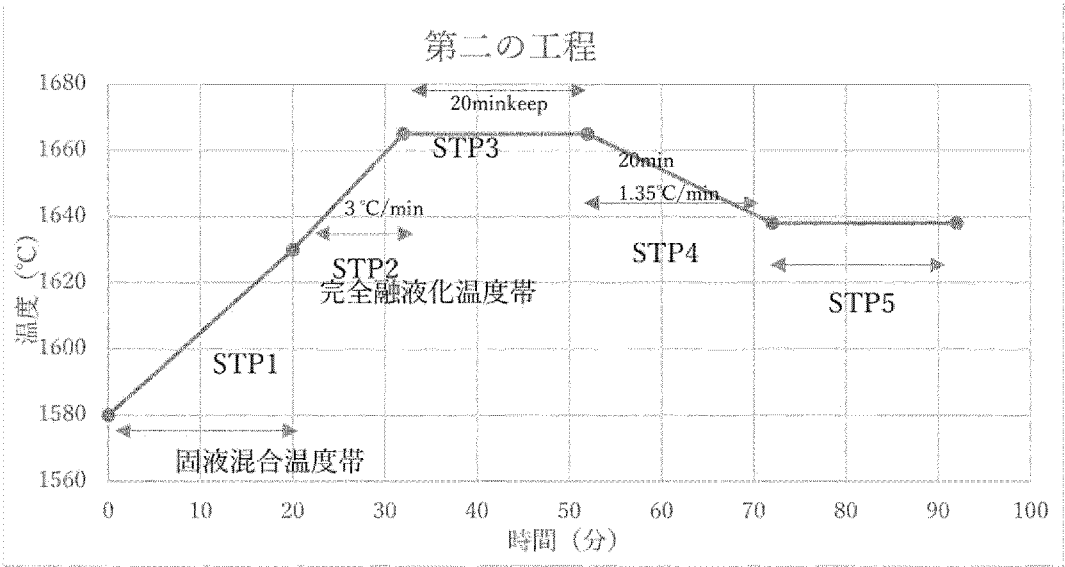
(b)



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/017079

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER**C30B 15/20**(2006.01)i; **C30B 29/16**(2006.01)i

FI: C30B15/20; 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)

C30B15/20; 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 1971-2023
 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023
 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023

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.
Y	JP 2021-109826 A (SUMITOMO METAL MINING CO., LTD.) 02 August 2021 (2021-08-02)	1, 9
A	paragraphs [0003], [0005], [0043], [0047], [0060], fig. 1, 2	2-8, 10-16
Y	JP 2022-1541 A (SUMITOMO METAL MINING CO., LTD.) 06 January 2022 (2022-01-06)	1, 9
A	paragraphs [0020]-[0023], [0029]-[0034]	2-8, 10-16
Y	JP 2020-83714 A (SUMITOMO METAL MINING CO., LTD.) 04 June 2020 (2020-06-04)	1, 9
A	paragraph [0030]	2-8, 10-16
A	JP 2019-112264 A (SUMITOMO METAL MINING CO., LTD.) 11 July 2019 (2019-07-11)	1-16
	entire text, all drawings	



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

05 July 2023

Date of mailing of the international search report

18 July 2023

Name and mailing address of the ISA/JP

Japan Patent Office (ISA/JP)
 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/JP2023/017079

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
JP	2021-109826	A	02 August 2021	(Family: none)	
JP	2022-1541	A	06 January 2022	(Family: none)	
JP	2020-83714	A	04 June 2020	(Family: none)	
JP	2019-112264	A	11 July 2019	(Family: none)	

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC）） C30B 15/20(2006.01)i; C30B 29/16(2006.01)i FI: C30B15/20; 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）） C30B15/20; 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 1971-2023年 日本国実用新案登録公報 1996-2023年 日本国登録実用新案公報 1994-2023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
Y A	JP 2021-109826 A（住友金属鉱山株式会社）02.08.2021（2021-08-02） [0003]、[0005]、[0043]、[0047]、[0060]、図 1、2	1,9 2-8,10-16
Y A	JP 2022-1541 A（住友金属鉱山株式会社）06.01.2022（2022-01-06） [0020] - [0023]、[0029] - [0034]	1,9 2-8,10-16
Y A	JP 2020-83714 A（住友金属鉱山株式会社）04.06.2020（2020-06-04） [0030]	1,9 2-8,10-16
A	JP 2019-112264 A（住友金属鉱山株式会社）11.07.2019（2019-07-11） 全文、全図	1-16
☐ 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、一般的技术水準を示すもの “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 05.07.2023		国際調査報告の発送日 18.07.2023
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） 山本 一郎 4G 8395 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/JP2023/017079

引用文献			公表日	パテントファミリー文献	公表日
JP	2021-109826	A	02.08.2021	(ファミリーなし)	
JP	2022-1541	A	06.01.2022	(ファミリーなし)	
JP	2020-83714	A	04.06.2020	(ファミリーなし)	
JP	2019-112264	A	11.07.2019	(ファミリーなし)	