

(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
2019年3月14日(14.03.2019)



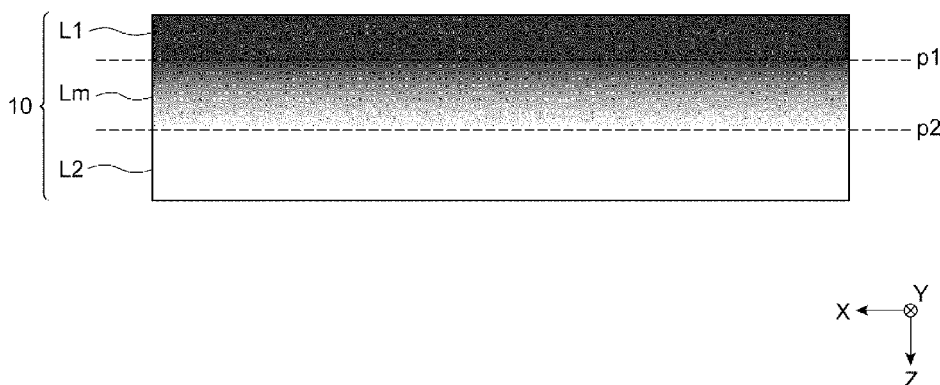
(10) 国際公開番号

WO 2019/049653 A1

- (51) 国際特許分類:
C30B 29/20 (2006.01) *H01L 21/86* (2006.01)
C30B 33/02 (2006.01) *H01L 33/16* (2010.01)
H01L 21/318 (2006.01) *H01L 33/32* (2010.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2018/030857
- (22) 国際出願日: 2018年8月21日(21.08.2018)
- (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 2017-174046 2017年9月11日(11.09.2017) 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: 大井戸 敦(**OHIDO Atsushi**); 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9番1号 T D K株式会社内 Tokyo (JP). 山沢 和人(**YAMASAWA Kazuhito**); 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9番1号 T D K株式会社内 Tokyo (JP). 川崎 克己(**KAWASAKI Katsumi**); 〒1080023 東京都港区芝浦三丁目9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 (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,

(54) **Title:** SUBSTRATE AND LIGHT-EMITTING ELEMENT

(54) 発明の名称: 基板及び発光素子



(57) **Abstract:** This substrate 10 comprises a first layer L1 containing crystalline aluminum nitride, a second layer L2 containing crystalline α -alumina, and an intermediate layer Lm interposed between the first layer L1 and the second layer L2 and containing aluminum, nitrogen, and oxygen, wherein the nitrogen content of the intermediate layer Lm decreases from the first layer L1 toward the second layer L2 in direction Z, and the oxygen content of the intermediate layer Lm increases from the first layer L1 toward the second layer L2 in direction Z.

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, JP, 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))

(57) 要約: 基板10は、結晶質の窒化アルミニウムを含む第一層L1と、結晶質の α -アルミナを含む第二層L2と、第一層L1と第二層L2とによって挟まれ、アルミニウム、窒素及び酸素を含む中間層Lmと、を備え、中間層Lmにおける窒素の含有量が、第一層L1から第二層L2に向かう方向Zに沿って減少し、中間層Lmにおける酸素の含有量が、第一層L1から第二層L2に向かう方向Zに沿って増加する。

明 細 書

発明の名称： 基板及び発光素子

技術分野

[0001] 本発明は、基板及び発光素子に関する。

背景技術

[0002] 窒化アルミニウム（AlN）等の窒化物半導体の結晶は、青色帯から紫外帯にわたる短波長光を発する発光デバイス、又はパワートランジスタの材料として注目されている。例えば、下記特許文献1に記載の通り、紫外線発光ダイオードは、窒化アルミニウムからなるバッファ層を備える。バッファ層が、GaN等の窒化物半導体層と、サファイアの単結晶基板との間に介在することにより、窒化物半導体とサファイアとの格子不整合とこれに起因する貫通転位が低減され、発光層等の窒化物半導体層の結晶性が向上する。その結果、発光層の発光効率も向上する。

先行技術文献

特許文献

[0003] 特許文献1：国際公開第2013/005789号

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0004] 上記のように、サファイアの結晶基板と窒化アルミニウムのバッファ層とを備える紫外線発光ダイオードの場合、発光層から発せられた光はバッファ層及び結晶基板を介して全方位へ照射される。しかし、バッファ層を構成する窒化アルミニウムの屈折率は、結晶基板を構成するサファイアの屈折率と大きく異なる。この屈折率差に起因して、バッファ層の上に位置する発光層から発せられた光の一部は、バッファ層と結晶基板との間の界面（境界）において反射されてしまう。この反射光は、結晶基板を透過しないため、発光ダイオードの外へ取り出されない。つまり、バッファ層と結晶基板との間の界面における光の反射によって、光の取り出し効率が低下してしまう。

[0005] 本発明は、上記事情に鑑みてなされたものであり、光を反射し難い基板、及び当該基板を備える発光素子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] 本発明の一側面に係る基板は、結晶質の窒化アルミニウムを含む第一層と、結晶質の α -アルミナを含む第二層と、第一層と前記第二層とによって挟まれ、アルミニウム、窒素及び酸素を含む中間層と、を備え、中間層における窒素の含有量が、第一層から第二層に向かう方向に沿って減少し、中間層における酸素の含有量が、第一層から第二層に向かう方向に沿って増加する。

[0007] 中間層の厚さが、10nm以上1000nm以下であってよい。

[0008] 基板内に位置し、且つ第一層及び第二層に略平行である任意の一つの面内に存在する窒素原子の数は、 $[N]$ と表記され、任意の一つの面内に存在する酸素原子の数は、 $[O]$ と表記され、第一面は、 $[N] / ([O] + [N])$ が0.9である面と定義され、第二面は、 $[N] / ([O] + [N])$ が0.1である面と定義され、中間層は、第一面と第二面との間にある領域であってよい。

[0009] 中間層が、希土類元素、アルカリ土類元素及びアルカリ金属元素からなる群より選ばれる少なくとも一種を含んでよい。中間層が、ユウロピウム及びカルシウムのうち少なくともいずれかを含んでよい。

[0010] 本発明の一側面に係る発光素子は、上記の基板を有する。

発明の効果

[0011] 本発明によれば、光を反射し難い基板、及び当該基板を備える発光素子が提供される。

図面の簡単な説明

[0012] [図1]図1は、本発明の一実施形態に係る基板の模式的な斜視図である。

[図2]図2は、図1に示される基板の模式的な断面図である。

[図3]図3は、本発明の一実施形態に係る基板を有する発光素子の模式的な断面図である。

[図4]図4は、本発明の実施例1の基板における窒素、酸素及びユウロピウム其々の分布を示す。

発明を実施するための形態

[0013] 以下、図面を参照しながら、本発明の好適な実施形態について説明する。図面において、同等の構成要素には同等の符号を付す。本発明は下記実施形態に限定されるものではない。各図に示されるX、Y及びZは、互いに直交する3つの座標軸を意味する。各座標軸が示す方向は、全図に共通する。

[0014] (基板)

本実施形態に係る基板は、図1及び図2に示される。図2は、図1に示される基板10のZX面方向における断面である。換言すれば、図2は、基板10の厚さ方向Zに平行な基板10の断面であり、基板10の表面(XY面方向)に対して垂直な基板10の断面である。基板10の厚さ方向Zとは、基板10の表面からの深さ方向と言い換えられてよい。

[0015] 図2に示されるように、基板10は、第一層L1と、第二層L2と、第一層L1と第二層L2とによって挟まれた中間層Lmと、を備える。第一層L1は中間層Lmに直接している。第二層L2も中間層Lmに直接接している。

[0016] 第一層L1は、結晶質の窒化アルミニウム(AlN)を含む。第一層L1は、結晶質の窒化アルミニウムのみからなっていてよい。第一層L1は、窒化アルミニウムの単結晶のみからなっていてよい。ただし、第一層L1は、窒化アルミニウムの結晶性が損なわれない限りにおいて、アルミニウム及び窒素以外の元素(不純物等)を含んでよい。例えば、第一層L1において中間層Lmに面する領域の近傍は、窒化アルミニウムの結晶性を損なわない程度の微量の酸素を含んでよい。

[0017] 第二層L2は、結晶質の α -アルミナ($\alpha-Al_2O_3$)を含む。 α -アルミナは、コランダム構造を有する酸化アルミニウムと言い換えてよい。第二層L2は、結晶質の α -アルミナのみからなっていてよい。第二層L2は、サファイアのみからなっていてよい。サファイアとは、 α -アルミナの単結

晶と言い換えてもよい。第二層L 2は、 α -アルミナの結晶性が損なわれな
い限りにおいて、アルミニウム及び酸素以外の元素（不純物等）を含んでよ
い。例えば、第二層L 2において中間層L mに面する領域の近傍は、 α -ア
ルミナの結晶性を損なわない程度の微量の窒素を含んでよい。

[0018] 中間層L mは、アルミニウム（Al）、窒素（N）及び酸素（O）を含む
。中間層L mは、アルミニウム、窒素及び酸素からなっていてよい。

[0019] 図4に示されるように、中間層L mにおける窒素の含有量は、第一層L 1
から第二層L 2に向かう方向（基板10の厚さ方向Z）に沿って減少する。
対照的に、中間層L mにおける酸素の含有量は、第一層L 1から第二層L 2
に向かう方向（基板10の厚さ方向Z）に沿って増加する。アルミニウムは
中間層L mの全体に分布及び分散してよい。

[0020] 中間層L mは、第一面p 1と第二面p 2との間にある領域であってよい。
第一面p 1及び第二面p 2のいずれも、決して層間の界面（境界）ではなく
、以下のように化学的組成に基づいて定義される。基板10内に位置し、且
つ第一層L 1及び第二層L 2に略平行である任意の一つの面内に存在する窒
素原子の数は、 $[N]$ と表記され、同じ面内に存在する酸素原子の数は、 $[O]$
と表記される。これらの表記に基づき、第一面p 1は、 $[N] / ([O] + [N])$ が0.9である面と定義され、第二面p 2は、 $[N] / ([O] + [N])$ が0.1である面と定義される。第一面p 1は、 $[N] / ([O] + [N])$ に基づいて、第一層L 1と中間層L mとを画する面と言い換
えられてよい。第二面p 2は、 $[N] / ([O] + [N])$ に基づいて、第
二層L 2と中間層L mとを画する面と言い換えられてよい。 $[N]$ 及び $[O]$
其々の単位は、例えば、モルであってよい。

[0021] 図4に示されるように、中間層L mにおける窒素の分布 $[N] / ([O] + [N])$ は、第一層L 1から第二層L 2に向かう方向（基板10の厚さ方
向Z）に沿った勾配を有し、且つ第一層L 1から第二層L 2に向かう方向に
沿って徐々に減少する。中間層L mにおける酸素の分布 $[O] / ([O] + [N])$ は、第一層L 1から第二層L 2に向かう方向（基板10の厚さ方向

Z) に沿った勾配を有し、且つ第一層 L 1 から第二層 L 2 に向かう方向に沿って徐々に増加する。図 2 及び図 3 に示される中間層 L m の断面において、色が濃い部分ほど、 $[N] / ([O] + [N])$ が大きい。換言すれば、図 2 及び図 3 に示される中間層 L m の断面において、色が濃い部分ほど、 $[O] / ([O] + [N])$ が小さい。

[0022] 図 4 に示されるように、中間層 L m の組成は、第一層 L 1 から第二層 L 2 に向かう方向に沿って、第二層 L 2 の組成（つまり、 α -アルミナ）へ徐々に近づく。換言すれば、中間層 L m の組成は、第二層 L 2 から第一層 L 1 に向かう方向に沿って、第一層 L 1 の組成（つまり、窒化アルミニウム）へ徐々に近づく。このように、中間層 L m は、 α -アルミナと窒化アルミニウムとが混在する層といえる。

[0023] 仮に中間層 L m がなく、第一層 L 1 が第二層 L 2 に直接接している場合、第一層 L 1 及び第二層 L 2 の屈折率差に起因して、第一層 L 1 及び第二層 L 2 の界面において、光が反射され易い。一方、本実施形態では、中間層 L m が第一層 L 1 と第二層 L 2 との間に介在することにより、第一層 L 1 と第二層 L 2 との間の屈折率差に光の反射が低減される。その理由は以下の通りである。

[0024] 上記のように、基板 10 の組成は、中間層 L m において徐々に（緩やかに）且つ連続的に変化する。換言すれば、窒素及び酸素其々の分布が、第一層 L 1、中間層 L m 及び第二層 L 2 にわたって連続的に変化する点において、第一層 L 1 の組成は中間層 L m の組成と連続しており、中間層 L m の組成は第二層 L 2 の組成と連続している。したがって、第一層 L 1 と中間層 L m との間の界面（結晶構造上の境界）は存在せず、中間層 L m と第二層 L 2 との間の界面も存在しない。例えば、基板 10 の厚さ方向 Z に平行に切断された基板 10 の断面において、第一面 p 1 及び第二面 p 2 に対応するような界面は観察されない。そして基板 10 の組成が、中間層 L m において徐々に（緩やかに）且つ連続的に変化するため、基板 10 の内部の屈折率も、中間層 L m において徐々に（緩やかに）且つ連続的に変化する。換言すれば、基板 10

の内部において、化学的組成及び屈折率のいずれも臨界的に（急激に）変化し難い。したがって、基板 10 の内部において、組成が異なる層間の界面における光の反射が起き難い。換言すれば、基板 10 の内部において、層間の屈折率差に起因する光の反射が起き難い。

[0025] 仮に中間層 L_mではなく、酸窒化アルミニウム（AlON）を主成分として含む第三層が、第一層 L₁と第二層 L₂との間に介在する場合、以下の通り、基板 10 内における光の反射を抑制することは困難である。なお、第三層とは、主成分である酸窒化アルミニウムが均一に分布している層、又は結晶質の酸窒化アルミニウムからなる層である。

[0026] 第三層に含まれる酸窒化アルミニウムは、第一層 L₁に含まれる窒化アルミニウム（AlN）と全く異なる化合物であるので、第一層 L₁と第三層との間に界面（結晶構造上の境界）があり、この界面において光が反射され易い。換言すれば、第三層の屈折率は第一層 L₁の屈折率と全く異なるので、第一層 L₁と第三層との間の屈折率差に起因して、第一層 L₁と第三層との間の界面において光が反射され易い。

[0027] また、第三層に含まれる酸窒化アルミニウムは、第二層 L₂に含まれるα-アルミナと全く異なる化合物であるので、第三層と第二層 L₂との間に界面（結晶構造上の境界）があり、この界面において光が反射され易い。換言すれば、第三層の屈折率は第二層 L₂の屈折率と全く異なるので、第三層と第二層 L₂との間の屈折率差に起因して、第三層と第二層 L₂との間の界面において光が反射され易い。

[0028] 上記のような酸窒化アルミニウムを含む第三層ではなく、組成が連続的に変化する中間層 L_mを備える基板 10 によれば、酸窒化アルミニウムに起因する光の反射を低減することができる。中間層 L_mは、酸窒化アルミニウムを全く含まないほうがよい。ただし、上述の本発明に係る効果が阻害されない程度の微量の酸窒化アルミニウムが中間層 L_mに含まれていてもよい。

[0029] 図 4 に示されるように、第一層 L₁に属し、且つ中間層 L_mに面する領域近傍における $[N] / ([O] + [N])$ は、0.9 より大きく 1.0 以下

であってよい。換言すれば、第一層L 1に属し、且つ中間層L mに面する領域近傍における $[O] / ([O] + [N])$ は、0以上0.1未満であってよい。また図4に示されるように、第二層L 2に属し、且つ中間層L mに面する領域近傍における $[N] / ([O] + [N])$ は、0以上0.1未満であってよい。換言すれば、第二層L 2に属し、且つ中間層L mに面する領域近傍における $[O] / ([O] + [N])$ は、0.9より大きく1.0以下であってよい。

[0030] 中間層L mの厚さは、例えば、10 nm以上1000 nm以下、又は25 nm以上1000 nm以下であってよい。中間層L mの厚さが10 nm以上である場合、基板10における光の反射率が低減され易く、特に波長が200 nm以上である光の反射率が低減され易い。200 nm以上である光とは、例えば、波長が200 nm程度であるD UV（深紫外線）、波長が約200 nm以上280 nm以下であるUV - C、波長が約280 nm以上315 nm以下であるUV - B、又は波長が約315 nm以上380 nm以下であるUV - Aであってよい。ただし、これらの波長領域を外れる光の場合であっても、基板10での光の反射は抑制され得る。中間層L mの厚さが1000 nm以下である場合、結晶質の窒化アルミニウムを含む第一層L 1における亀裂（クラック）が抑制され易く、第一層L 1の平滑な表面が形成され易い。その結果、第一層L 1の表面に形成される他の層（窒化物半導体層等）の構造的欠陥が抑制され層が易い。つまり、第一層L 1における亀裂が抑制され、第一層L 1の表面が平滑であることにより、基板10を発光素子等のデバイスを構成する部材として利用し易い。中間層L mの厚さは、10 nm以上750 nm以下、又は25 nm以上750 nm以下であってもよい。中間層L mの厚さが750 nm以下である場合、結晶質の窒化アルミニウムを含む第一層L 1における亀裂（クラック）が、より抑制され易く、第一層L 1の平滑な表面が、より形成され易い。中間層L mの厚さが上記範囲外である場合であっても、本発明の効果は達成され得る。

[0031] 基板10の厚さは、例えば、50 μ m以上3000 μ m以下であってよい

。第一層L 1の厚さは、例えば、50 nm以上1000 nm以下であってよい。第二層L 2の厚さは、例えば、50 μm以上3000 μm以下であってよい。

[0032] 中間層L mは、希土類元素、アルカリ土類元素及びアルカリ金属元素からなる群より選ばれる少なくとも一種の添加元素Mを含んでよい。つまり、中間層L mは、スカンジウム（Sc）、イットリウム（Y）、ランタン（La）、セリウム（Ce）、プラセオジウム（Pr）、ネオジウム（Nd）、プロメチウム（Pm）、サマリウム（Sm）、ユウロピウム（Eu）、ガドリウム（Gd）、テルビウム（Tb）、ジスプロシウム（Dy）、ホルミウム（Ho）、エルビウム（Er）、ツリウム（Tm）、イッテルビウム（Yb）、ルテチウム（Lu）、カルシウム（Ca）、ストロンチウム（Sr）、バリウム（Ba）、リチウム（Li）、ナトリウム（Na）、カリウム（K）、ルビジウム（Rb）、セシウム（Cs）及びラジウム（Ra）からなる群より選ばれる少なくとも一種の添加元素Mを含んでよい。中間層L mが複数所の添加元素Mを含んでもよい。中間層L mが添加元素Mを含むことにより、中間層L mにおける窒素及び酸素其々の分布が徐々に変化し易く、中間層L mにおいて酸窒化アルミニウムが存在し難い。このような添加元素Mに起因する効果は、中間層L mが添加元素MとしてEu及びCaのうち少なくとも一種を含む場合に顕著であり、中間層L mがEuを含む場合に特に顕著である。また、アルミニウム、酸素及び窒素に比べてイオン半径が大きい添加元素M（Eu等）が、第一層L 1と第二層L 2との間の中間層L mに位置することにより、添加元素Mに応力が集中し易く、第一層L 1の反りが解消され易い。中間層L mにおける添加元素Mの含有量は、例えば、0原子%よりも大きく1.0原子%以下であってよい。中間層L mにおける添加元素Mの含有量が上記の範囲内である場合、添加元素Mに起因する上記効果が得られ易い。中間層L mは、アルミニウム、窒素、酸素及び添加元素Mからなっていてよい。

[0033] （基板の製造方法）

α - アルミナの単結晶からなる基板を窒素ガス中で加熱して、窒素を基板の片方の表面から基板の内部へ熱拡散させる窒化処理によって、基板 10 は製造される。以下では、 α - アルミナの単結晶からなる基板を、「サファイア基板」と表記する。

[0034] サファイア基板の表面からの深さが大きい箇所ほど、窒素は拡散及び到達することが困難であるので、サファイア基板の表面からの深さ方向に沿って、窒素の含有量が徐々に減少する。その結果、サファイア基板の表面からの深さが所定の値以上である領域において中間層 L_m が形成される。そして、窒素が拡散せず到達しなかった領域は、結晶質の α - アルミナを含む第二層として残存する。一方、窒素が導入されたサファイア基板の表面近傍は十分に窒化されて、結晶質の窒化アルミニウムを含む第一層 L₁ になる。

[0035] サファイア基板を窒素ガス中で加熱する前に、希土類元素、アルカリ土類元素及びアルカリ金属元素からなる群より選ばれる少なくとも一種の添加元素 M を、サファイア基板の表面の一部又は全体に付着させたほうがよい。例えば、添加元素 M を含む有機金属化合物の溶液をサファイア基板の表面に塗布してよい。さらに、溶液が塗布されたサファイア基板を大気中で加熱することにより、有機成分のみを分解及び焼失させてよい。添加元素 M を含む有機金属化合物の溶液として、例えば、有機金属分解法 (Metal Organic Decomposition: MOD) に用いられる有機金属化合物の溶液を用いてよい。

[0036] 添加元素 M が付着したサファイア基板を窒素ガス中で加熱したほうがよい。その結果、添加元素 M がサファイア基板の表面から酸素 (O^{2-}) を引き抜き、酸素欠陥がサファイア基板の表面に形成される。窒素は酸素欠陥に導入され易く、酸素欠陥を通じてサファイア基板の表面からサファイア基板の内部へ熱拡散し易い。その結果、第一層 L₁、中間層 L_m 及び第二層 L₂ それぞれが、基板 10 の表面に平行な方向において均一に形成され易い。

[0037] 上記の添加元素 M のうち、ユウロピウム及びカルシウムのうち少なくとも一方が好ましく、ユウロピウムが最も好ましい。ユウロピウム又はカルシウ

ムは、電気陰性度が比較的小さい元素である。したがって、ユウロピウム又はカルシウムをサファイア基板の表面に付着させることにより、ユウロピウム又はカルシウムがサファイア基板の表面から酸素 (O^{2-}) を引き抜き易く、酸素欠陥がサファイア基板の表面に形成され易い。その結果、窒素が酸素欠陥を介してサファイア基板内へ熱拡散し易く、第一層 L 1、中間層 L m 及び第二層 L 2 が形成され易い。また、ユウロピウム又はカルシウムは、添加元素 M の中でも比較的融点が高い元素である。したがって、ユウロピウム又はカルシウムは、低温においても、半ば液相としてサファイア基板の表面全体へ拡散し易い。その結果、第一層 L 1、中間層 L m 及び第二層 L 2 それぞれが、基板 10 の表面に平行な方向において均一に形成され易い。

[0038] 窒素ガス中で加熱される基板の温度が 1630°C 以上になると、光の反射の一因である酸窒化アルミニウムが基板中で生成し始め、 1700°C 以上で特に酸窒化アルミニウムが生成し易い。しかし、サファイア基板の温度が 1680°C 以下である場合、添加元素 M が付着したサファイア基板を窒素ガス中で加熱することにより、酸窒化アルミニウムの生成を十分に抑制しながら、第一層 L 1、中間層 L m 及び第二層 L 2 を形成することができる。特に添加元素 M がサファイア基板に付着している場合、酸窒化アルミニウムが生成しない 1630°C 以下の温度で、第一層 L 1、中間層 L m 及び第二層 L 2 を形成することができる。

[0039] 上述の通り、ユウロピウム及びカルシウムは、比較的低温においても、サファイア基板の表面全体へ十分に拡散し易く、サファイア基板の表面から酸素を引き抜き易い。したがって、窒素ガス中で加熱される基板の温度が、窒化アルミニウムが生成し難い低温（例えば、 1630°C 未満又は 1600°C 以下）である場合であっても、ユウロピウム及びカルシウムのうち少なくとも一方を用いることにより、サファイア基板における窒素の熱拡散が起き易く、第一層 L 1、中間層 L m 及び第二層 L 2 を容易に形成することができる。

[0040] ユウロピウム及びカルシウムよりも融点が高い添加元素 M を用いた場合、

添加元素Mをサファイア基板の表面全体へ拡散させるために、ユウロピウム又はカルシウムを用いる場合よりも高温で、添加元素Mが付着したサファイア基板を加熱しなければならない。しかし、サファイア基板の温度が高いほど、光の反射の一因である酸窒化アルミニウムが生成し易い。

[0041] 窒素ガス中で加熱されるサファイア基板の温度（窒化处理温度）は、1550℃以上1700℃以下、1600℃以上1680℃以下、又は1600℃以上1630℃未満であってよい。上述の通り、添加元素Mを用いる場合であっても、窒素ガスをサファイア基板内へ熱拡散させるためには、窒化处理温度が少なくとも1550℃以上であることが好ましい。添加元素Mを用いない場合、1630℃以上の窒化处理温度においてサファイアの窒化が進むと共に、酸窒化アルミニウムが基板中で生成される。しかし、窒化处理温度が1630℃以下であっても、添加元素M（特にユウロピウム及びカルシウムのうち少なくともいずれか）を用いることにより、基板中における酸窒化アルミニウムを生成させずにサファイアを窒化させることができる。窒化处理温度が1700℃未満、より好ましくは1630℃以下である場合、基板中における酸窒化アルミニウムの生成を抑制することができる。窒化处理温度が1630℃未満又は1600℃以下である場合、添加元素Mを用いることによって、基板の表面において窒化アルミニウムを生成させることができる。窒化处理温度が1600℃以上1630℃未満である場合、結晶質の窒化アルミニウムを含む第一層L1の表面の平滑性が向上し易い。

[0042] 窒化处理の温度、時間、添加元素Mの使用量、及び窒素ガスの分圧又は供給量によって、第一層L1及び中間層Lm其々の厚さ及び組成が制御されてよい。窒素ガス中で加熱されるサファイア基板の温度が高いほど、サファイア基板中での窒素の拡散、及びサファイアの窒化が促進され、第一層L1及び中間層Lm其々の厚さが増加し易く、第二層L2の厚さが減少し易い。窒素ガス中でサファイア基板を加熱する時間が長いほど、サファイア基板中での窒素の拡散、及びサファイアの窒化が促進され、第一層L1及び中間層Lm其々の厚さが増加し易く、第二層L2の厚さが減少し易い。サファイア基

板の表面に付着して拡散する添加元素Mが多いほど、サファイア基板中での窒素の拡散、及びサファイアの窒化が促進され、第一層L 1 及び中間層L m 其々の厚さが増加し易く、第二層L 2 の厚さが減少し易い。窒素ガスの分圧又は供給量が多いほど、サファイア基板中での窒素の拡散、及びサファイアの窒化が促進され、第一層L 1 及び中間層L m 其々の厚さが増加し易く、第二層L 2 の厚さが減少し易い。

[0043] 窒化処理では、サファイア基板を窒素ガス中で複数回（例えば二回）加熱してよい。例えば、添加元素Mが付着したサファイア基板を上記の窒化処理温度で短時間加熱した後、より長時間にわたってサファイア基板を上記の窒化処理温度で加熱してよい。1 度目の加熱により、添加元素Mがサファイア基板の表面全体に均一に拡散し易い。換言すれば、1 度目の加熱により、添加元素Mがサファイア基板の表層へ均一に拡散し易い。続く2 度目の長時間の加熱により、窒素がサファイア基板の表面から内部へ斑なく拡散し易い。その結果、第一層L 1 の表面の平滑性が向上し易い。窒化処理を二度のステップに分けずにサファイア基板を長時間加熱した場合、第一層L 1 の表面の平滑性が損なわれ易い。ただし、窒化処理を二度のステップに分けない場合であっても、本実施形態に係る基板10を製造することは可能である。

[0044] 窒素ガス中でのサファイア基板の窒化処理は、炭素粉末の存在下で実施されてよい。添加元素Mによってサファイア基板から引き抜かれた酸素が、雰囲気中の炭素と反応して一酸化炭素が生成する。

[0045] （発光素子）

本実施形態に係る発光素子は、上記の基板10を備える。例えば、本実施形態に係る発光素子は発光ダイオードであってよい。つまり、本実施形態に係る基板10は、UVC LED又はDUV LED等の深紫外線発光ダイオードが備える基板であってよい。以下では、基板10を備える発光素子の一例として、図3に示される発光ダイオード100を説明する。ただし、本実施形態に係る発光ダイオード100の構造は、図3に示される積層構造に限定されない。

[0046] 図3に示されるように、本実施形態に係る発光ダイオード100は、基板10と、基板10の片面において露出する第一層L1に直接重なるn型半導体層40と、n型半導体層40に重なる発光層42と、発光層42に重なるp型半導体層44と、n型半導体層40の表面の一部に設置された第一電極48と、p型半導体層44の表面の一部に設置された第二電極46と、を備える。図3には示されていないが、電子ブロック層が発光層42とp型半導体層44との間に介在していてもよい。

[0047] n型半導体層40は、例えば、n型の窒化ガリウム(n-GaN)又はn型の窒化アルミニウムガリウム(n-AlGaN)を含んでよい。n型半導体層40は、更にケイ素(Si)を含んでよい。n型半導体層40は、複数の層から構成されていてよい。発光層42は、例えば、窒化ガリウム(GaN)、窒化アルミニウムガリウム(AlGaN)又は窒化インジウムガリウム(InGaN)を含んでよい。発光層42は、複数の層から構成されていてよい。p型半導体層44は、例えば、p型の窒化ガリウム(p-GaN)又はp型の窒化アルミニウムガリウム(p-AlGaN)を含んでよい。p型半導体層44は、更にマグネシウム(Mg)を含んでよい。p型半導体層44は、複数の層から構成されていてよい。n型半導体層40に設置された第一電極48は、例えばインジウム(In)を含んでよい。p型半導体層44に設置された第二電極46は、例えばニッケル(Ni)及び金(Au)のうち少なくともいずれかを含んでよい。

[0048] 発光層42から発せられた光はn型半導体層40及び基板10を介して全方位へ照射される。上述の通り、基板10が中間層Lmを含むため、発光層42から発せられた光は、基板10によって反射され難い。したがって、サファイアのみからなる基板を備える従来の発光ダイオードに比べて、発光層42から発せられた光が基板10を透過し易く、光の取り出し効率が向上する。

[0049] 以上、本発明の一実施形態について説明したが、本発明は上記実施形態に何ら限定されるものではない。

[0050] 例えば、本実施形態に係る基板10の用途は、発光ダイオードに限定されない。本実施形態に係る発光素子は半導体レーザー発振器であってもよい。つまり、本実施形態に係る基板10は、紫外線レーザー等の半導体レーザー発振器が備える基板であってもよい。実施形態に係る基板10は、パワートランジスタに用いられてもよい。

実施例

[0051] 以下では実施例及び比較例により本発明をさらに詳細に説明するが、本発明はこれらの例によって何ら限定されるものではない。

[0052] (実施例1)

Euの化合物（有機化合物）を含有するMOD用溶液を、サファイア基板のc面全体に、スピコートにより塗布した。サファイア基板の直径 ϕ は2インチであった。MOD用溶液におけるEuの化合物の濃度は、0.02質量%であった。スピコートは、2000rpmで20秒間実施した。MOD用溶液が塗布されたサファイア基板を、150℃のホットプレート上で10分間乾燥させた後、空气中において600℃で2時間加熱した。

[0053] 加熱後の基板を100mm角のアルミナ板に載せて、基板の周囲の4か所其々に5mgのカーボンの粉末（計20mgのカーボン）を配置した。続いて、基板の全体をアルミナ匣鉢（Saggars）で覆った後、基板を窒化処理炉内の試料設置台に設置した。アルミナ匣鉢の寸法は縦75mm×横75mm×高さ70mmであった。窒化処理炉としては、カーボンをヒーターとする抵抗加熱型の電気炉を用いた。窒化処理炉内で基板を加熱する前に、回転ポンプと拡散ポンプを用いて0.03Paまで炉内を脱気した。次いで、炉内の気圧が100kPa（大気圧）になるまで、窒素ガスを炉内へ流した後、窒素ガスの供給を停止した。続いて、一回目の窒化処理では、炉内の基板を1600℃で2時間加熱した。窒化処理における炉内の昇降温速度は600℃/時間に調整した。窒化処理後、基板を室温まで冷却した後、基板を炉外へ取り出した。

[0054] 一回目の窒化処理後の基板を、100mm角のアルミナ板に載せて、基板

の周囲4か所其々に20mgのカーボンの粉末（計80mgのカーボン）を配置した。続いて、基板の全体を上記のアルミナ匣鉢（S a g g a r）で覆った後、基板を上記の窒化処理炉内の試料設置台に設置した。回転ポンプと拡散ポンプを用いて0.03Paまで炉内を脱気した。次いで、炉内の気圧が100kPa（大気圧）になるまで、窒素ガスを炉内へ流した後、窒素ガスの供給を停止した。続いて、二回目の窒化処理では、炉内の基板を1600℃で8時間加熱した。二回目の窒化処理における炉内の昇降温速度は600℃／時間に調整した。二回目の窒化処理後、基板を室温まで冷却した後、基板を炉外へ取り出した。

[0055] 以上の手順で実施例1の基板を作製した。

[0056] （実施例2～5）

実施例2～5其々の基板の作製では、二回目の窒化処理の時間を下記表1に示される値に調整した。二回目の窒化処理の時間を除いて実施例1と同様の方法で、実施例2～5其々の基板を作製した。

[0057] （比較例1）

直流マグネトロンスパッタリング法を用いて、窒化アルミニウムの薄膜をサファイア基板のc面全体に成膜した。サファイア基板の直径φは2インチであった。窒化アルミニウムの薄膜の厚さは200nmであった。スパッタリングターゲットとしては金属アルミニウムを用いた。原料ガスとしては、窒素ガスとアルゴンの混合ガス（N₂の体積：Arの体積＝3：1）を用いた。スパッタリングのパワーは700Wであった。成膜時のサファイア基板の温度は650℃であり、成膜時間は30分であった。

[0058] 上記のスパッタリング後、基板を100mm角のアルミナ板に載せて、基板の周囲4か所其々に5mgのカーボンの粉末（計20mgのカーボン）を配置した。続いて、基板の全体を上記のアルミナ匣鉢（S a g g a r）で覆った後、基板を上記の窒化処理炉内の試料設置台に設置した。窒化処理炉内で基板を加熱する前に、回転ポンプと拡散ポンプを用いて0.03Paまで炉内を脱気した。次いで、炉内の気圧が100kPa（大気圧）になるまで

、窒素ガスを炉内へ流した後、窒素ガスの供給を停止した。続いて、一回目の窒化処理では、炉内の基板を1600℃で4時間加熱した。窒化処理における炉内の昇降温速度は600℃/時間に調整した。窒化処理後、基板を室温まで冷却した後、基板を炉外へ取り出した。

[0059] 以上の手順で比較例1の基板を作製した。

[0060] [X線回折パターンの測定]

実施例1の基板の中心部付近から、10mm角の試料を切り出した。Cuをターゲットに用いたX線回折(XRD)法により、実施例1の試料のXRDパターンを測定した。試料のXRDパターンは、AlNの(002)面に由来する回折線ピークを有していた。またAlNの(112)面の極図をXRD法で測定した。極図は、6回回転軸を有する対称性を示す6つのピークを有していた。したがって、試料が六方晶系のAlNの単結晶を含むことを確認できた。一方、試料のXRDパターンは、Euを含有する結晶相に由来する回折線ピークを有していなかった。また試料のXRDパターンは、酸窒化アルミニウム(AlON)の結晶相に由来するピークも有していなかった。以上のことから、サファイア基板のc軸に沿って配向したAlNの単結晶層が、サファイア基板の一方の表面に形成されていることが確認された。なお、「サファイア基板の一方の表面」とは、窒化処理においてアルミナ板と接することなく窒素ガス中に露出していた基板の表面であり、窒化された表面を意味する。以下に記載の「試料の表面」も、窒化処理においてアルミナ板と接することなく窒素ガス中で露出した基板の表面であり、窒化された表面を意味する。

[0061] 実施例1の場合と同様の方法で、実施例2～5及び比較例1其々の基板を、XRD法によって個別に分析した。

[0062] 実施例2～5及び比較例1のいずれの基板の場合も、サファイア基板のc軸に沿って配向したAlNの単結晶層が、サファイア基板の一方の表面に形成されていることが確認された。実施例2～5及び比較例1のXRDパターンのいずれも、Euを含有する結晶相に由来する回折線ピークを有していな

かった。また実施例2～5及び比較例1のXRDパターンのいずれも、酸化アルミニウム（Al₂O₃）の結晶相に由来するピークも有していなかった。

[0063] [表面の観察]

実施例1の試料の表面を、金属顕微鏡で観察した。試料の表面全体は平滑であった。実施例1の場合と同様の方法で、実施例2～5及び比較例1其々の基板を、金属顕微鏡で観察した。実施例2～4及び比較例1の試料の表面のいずれも、実施例1の場合と同様に平滑であった。実施例5の試料の表面も平滑であったが、実施例5の表面には数本のクラックが形成されていた。二回目の窒化処理の時間が最も長い実施例5の場合、後述される中間層が厚くなり、第一層（窒化アルミニウム）と第二層（ α -アルミナ）と間の熱膨張率の差に起因する応力が大きくなったため、クラックが形成されたことが推察される。中間層が実施例5の中間層よりも厚い場合、より多数のクラックが形成され、基板を発光素子等の部材として使用することは困難となることが推測される。

[0064] 実施例1の試料の表面を、原子間力顕微鏡（AFM）で分析した。実施例1の試料の表面の自乗平均面粗さ（RMS）は、0.2nmであった。実施例1の場合と同様の方法で、実施例2～5及び比較例1其々の試料の表面をAFMで分析した。実施例2～5及び比較例1其々の試料の表面の自乗平均面粗さ（RMS）も、0.2nmであった。AFMを用いた分析に基づけば、実施例1～5及び比較例1其々の試料の表面はいずれも平滑であった。

[0065] [光の反射率の測定]

実施例1の試料における光の反射率を分光光度計により測定した。反射率の測定では、波長が250nmである紫外線を、実施例1の試料の表面へ入射した。以下に記載の「紫外線」のいずれも、波長が250nmである紫外線を意味する。実施例1の反射率の測定値は、紫外線の反射率が98%であるミラーを基準板に採用した場合の相対反射率である。

[0066] 紫外線に対する窒化アルミニウムの屈折率（2.406）から、窒化アル

ミニウムと空気との界面における相対反射率（相対反射率１）を算出した。紫外線に対するサファイアの屈折率（１．８３）から、サファイアと空気との界面における相対反射率（相対反射率２）を算出した。

[0067] 実施例１の反射率の測定値から、相対反射率１及び２を引くことにより、実施例１の基板の内部における光の反射率を算出した。以下では、基板の内部における光の反射率を、「内部反射率」と表記する。実施例１の内部反射率は、下記表１に示される。

[0068] 実施例１と同様の方法で、実施例２～５及び比較例１其々の内部反射率を算出した。実施例２～５及び比較例１其々の内部反射率は、下記表１に示される。

[0069] [基板の内部の組成及び構造の分析]

実施例１の試料を割って、試料の破断面を走査型電子顕微鏡（ＳＥＭ）及び透過型電子顕微鏡（ＴＥＭ）で観察した。窒化アルミニウムの単結晶層（第一層）と、窒化されていないサファイア層（第二層）との間の界面（明確な境界）は破断面内に発見されなかった。

[0070] 実施例１と同様の方法で、実施例２～５及び比較例１其々の基板をＳＥＭ及びＴＥＭで観察した。実施例２～５のいずれの場合も、窒化アルミニウムの単結晶層（第一層）と、窒化されていないサファイア層（第二層）との間の界面（明確な境界）は破断面内に発見されなかった。一方、比較例１では、窒化アルミニウムの単結晶層（第一層）と、窒化されていないサファイア層（第二層）との間の界面（明確な境界）があることが確認された。比較例１の高い内部反射率は、窒化アルミニウムの単結晶層（第一層）と、サファイア層（第二層）との間の界面に起因すると推察される。

[0071] 実施例１の試料の表面を、スパッタリングで徐々に掘りながら、試料の組成を試料の表面からの深さ方向に沿って分析した。深さ方向とは、図１及び図２に示されるＺ軸方向（基板１０の表面に垂直な方向）を意味する。深さ方向に沿った分析とは、掘り出された試料の断面（深さ方向に垂直な試料の断面）の組成の分析を意味する。組成の分析には、ＥＳＣＡ（Ｅｌｅｃｔｒｏ

n Spectroscopy for Chemical Analysis)及びSIMS (Secondary Ion Mass Spectrometry)を用いた。試料中のアルミニウム、窒素及酸素其々の含有量は、ESCAによって測定された。試料中のユウロピウムの含有量は、SIMSによって測定された。深さ方向に沿った $[N] / ([O] + [N])$ 及び $[O] / ([O] + [N])$ 其々のプロファイルは、表2及び図4に示される。深さ方向に沿ったユウロピウムの検出量 $\langle Eu \rangle$ も、表2及び図4に示される。ユウロピウムの検出量 $\langle Eu \rangle$ の単位 (Cts/sec) は、1秒間に検出されたEu原子 (二次イオン) の数である。

[0072] 分析の結果、実施例1の基板は、窒化アルミニウムの単結晶からなる第一層と、結晶質の α -アルミナからなる第二層と、第一層と第二層とによって挟まれる中間層と、を備えることが確認された。中間層は、アルミニウム、窒素、酸素及びユウロピウムからなることが確認された。深さ方向に沿った分析では、第一層の検出後に中間層が検出され、中間層の検出後に第二層が検出された。図4に示されるように、中間層L_mにおける $[N] / ([O] + [N])$ は、第一層L₁から第二層L₂に向かう方向 (深さ方向) に沿って減少することが確認された。また中間層L_mにおける $[O] / ([O] + [N])$ は、第一層L₁から第二層L₂に向かう方向 (深さ方向) に沿って増加することも確認された。 $[N] / ([O] + [N])$ が0.9である深さがD₁であり、 $[N] / ([O] + [N])$ が0.1である深さがD₂であるとき、中間層L_mの厚さは、D₂ - D₁と表される。図2及び図4に示されるように、中間層L_mの厚さは、第一面p₁と第二面p₂との距離と言い換えられる。実施例1の中間層の厚さは、下記表1に示される。

[0073] 実施例1と同様の方法で、実施例2～5及び比較例1其々の基板をESCA及びSIMSを用いて分析した。

[0074] 分析の結果、実施例2～5其々の基板は、実施例1と同様に、窒化アルミニウムの単結晶からなる第一層と、結晶質の α -アルミナからなる第二層と、第一層と第二層とによって挟まれる中間層と、を備えることが確認された。

。実施例 2～5 其々の中間層は、実施例 1 と同様に、アルミニウム、窒素、酸素及びユウロピウムからなることが確認された。実施例 2～5 のいずれの場合も、実施例 1 と同様に、深さ方向に沿った分析において、第一層の検出後に中間層が検出され、中間層の検出後に第二層が検出された。実施例 2～5 のいずれの場合も、実施例 1 と同様に、中間層 L m における $[N] / ([O] + [N])$ が、第一層 L 1 から第二層 L 2 に向かう方向（深さ方向）に沿って減少することが確認された。また実施例 2～5 のいずれの場合も、実施例 1 と同様に、中間層 L m における $[O] / ([O] + [N])$ が、第一層 L 1 から第二層 L 2 に向かう方向（深さ方向）に沿って増加することも確認された。実施例 2～5 其々の中間層の厚さは、下記表 1 に示される。

[0075] 一方、比較例 1 の基板は、窒化アルミニウムの単結晶からなる第一層と、結晶質の α - アルミナからなる第二層と、を備えており、第一層と第二層との間に他の層は存在しないことが確認された。つまり、第一層が第二層に直接重なっていた。

[0076]

[表1]

表1	二回目の窒化処理の時間	中間層の厚さ (nm)	内部反射率 (%)	表面形状
実施例1	8	100	0.1	平滑
実施例2	40	500	0.2	平滑
実施例3	2	10	0.1	平滑
実施例4	60	750	0.2	平滑
実施例5	80	1000	0.2	平滑、クラックあり
比較例1	—	0	1.9	平滑

[0077]

[表2]

表2			
深さ (nm)	$[N]/([N]+[O])$	$[O]/([N]+[O])$	$\langle Eu \rangle$ (Cts/sec)
50	1.0	0.0	0
100	1.0	0.0	0
150	1.0	0.0	0
200	1.0	0.0	0
250	1.0	0.0	0
300	1.0	0.0	0
350	1.0	0.0	0
400	1.0	0.0	0
430	1.0	0.0	133
450	0.9	0.1	667
452	0.9	0.1	800
462	0.9	0.1	1333
470	0.8	0.2	2667
500	0.6	0.4	9333
520	0.5	0.5	16000
530	0.4	0.6	14500
550	0.3	0.7	6500
570	0.2	0.8	3000
600	0.1	0.9	1400
605	0.1	0.9	1100
620	0.1	0.9	750
626	0.1	0.9	650
650	0.0	1.0	330
700	0.0	1.0	133
750	0.0	1.0	0
800	0.0	1.0	0
900	0.0	1.0	0

産業上の利用可能性

[0078] 本発明に係る基板は、例えば、紫外線発光ダイオードの基板に用いられる。

符号の説明

[0079] 1 0…基板、4 0…n型半導体層、4 2…発光層、4 4…p型半導体層、4 6…第二電極、4 8…第一電極、1 0 0…発光ダイオード、L 1…第一層、L 2…第二層、L m…中間層、p 1…第一面、p 2…第二面。

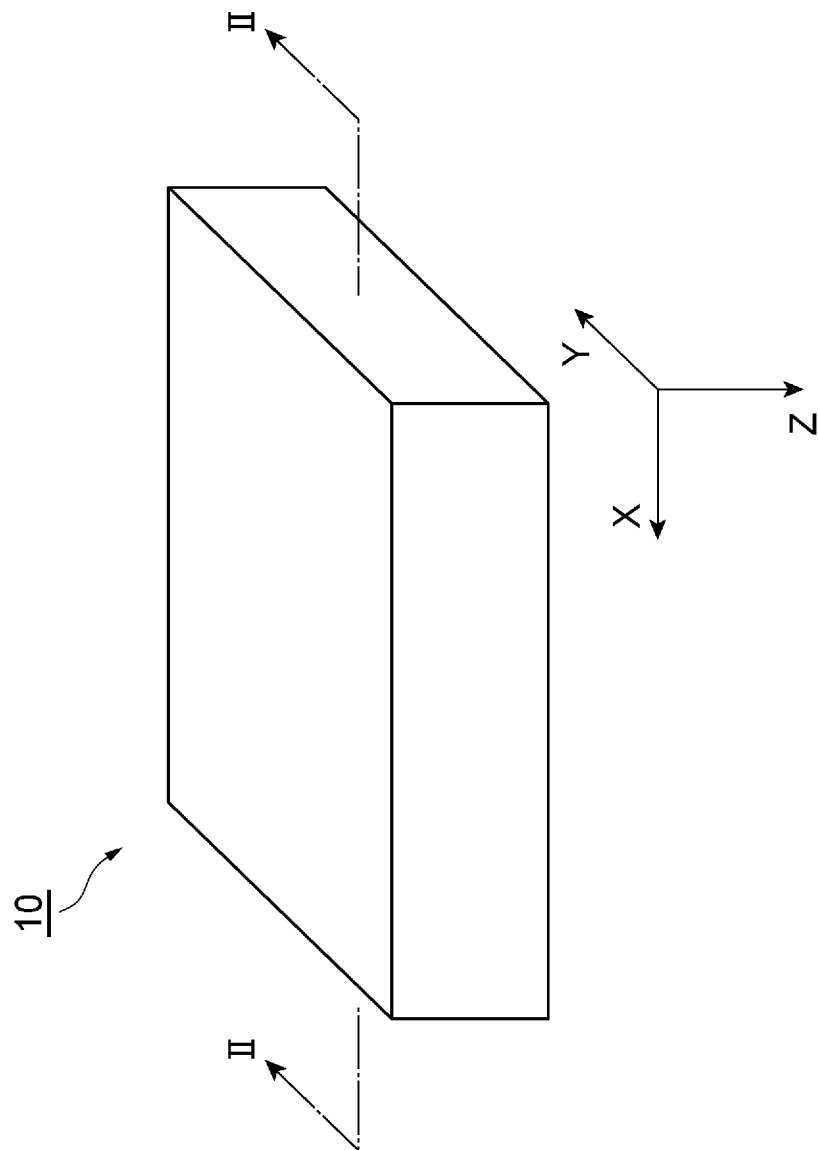
請求の範囲

- [請求項1] 結晶質の窒化アルミニウムを含む第一層と、
結晶質の α -アルミナを含む第二層と、
前記第一層と前記第二層とによって挟まれ、アルミニウム、窒素及び酸素を含む中間層と、
を備え、
前記中間層における窒素の含有量が、前記第一層から前記第二層に向かう方向に沿って減少し、
前記中間層における酸素の含有量が、前記第一層から前記第二層に向かう方向に沿って増加する、
基板。
- [請求項2] 前記中間層の厚さが、10 nm以上1000 nm以下である、
請求項1に記載の基板。
- [請求項3] 前記基板内に位置し、且つ前記第一層及び前記第二層に略平行である任意の一つの面内に存在する窒素原子の数は、[N]と表記され、
前記任意の一つの面内に存在する酸素原子の数は、[O]と表記され、
第一面は、 $[N] / ([O] + [N])$ が0.9である面と定義され、
第二面は、 $[N] / ([O] + [N])$ が0.1である面と定義され、
前記中間層は、前記第一面と前記第二面との間にある領域である、
請求項1又は2に記載の基板。
- [請求項4] 前記中間層が、希土類元素、アルカリ土類元素及びアルカリ金属元素からなる群より選ばれる少なくとも一種を含む、
請求項1～3のいずれか一項に記載の基板。
- [請求項5] 前記中間層が、ユウロピウム及びカルシウムのうち少なくともいずれかを含む、

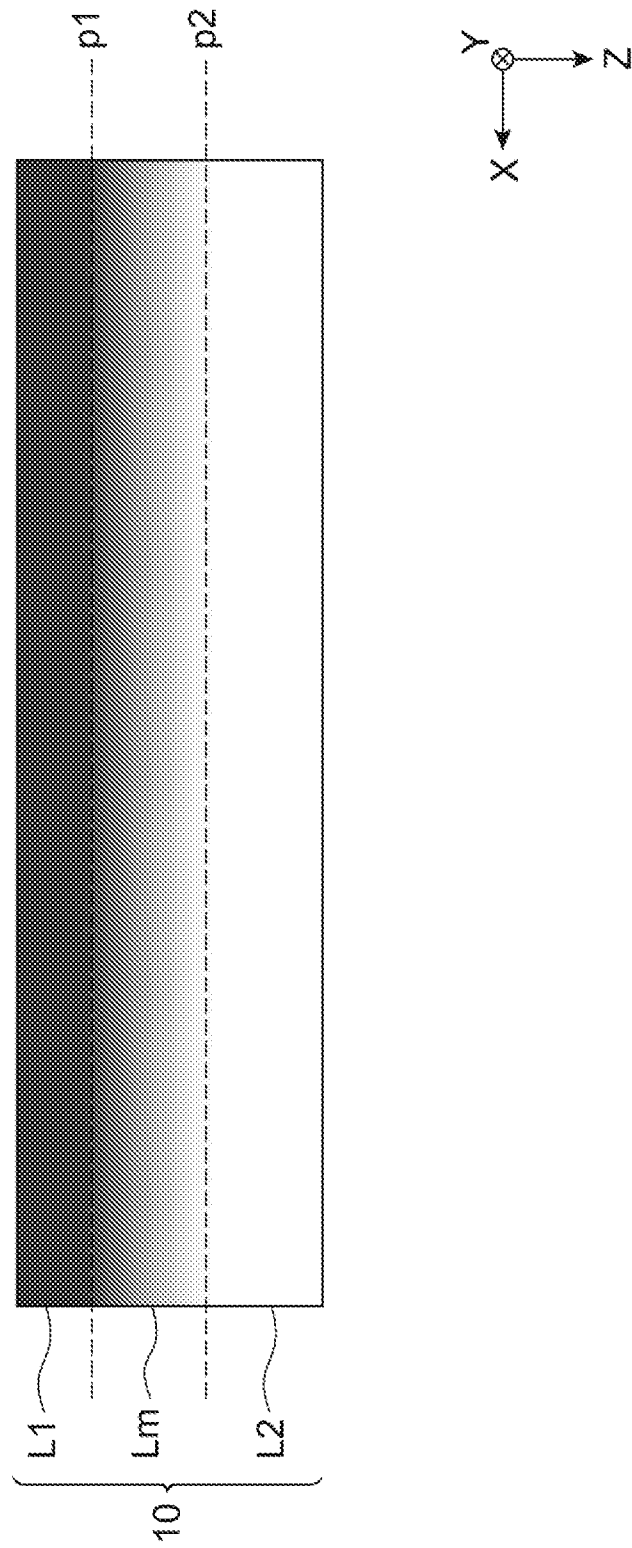
請求項 1 ～ 4 のいずれか一項に記載の基板。

[請求項6] 請求項 1 ～ 5 のいずれか一項に記載の基板を有する、
発光素子。

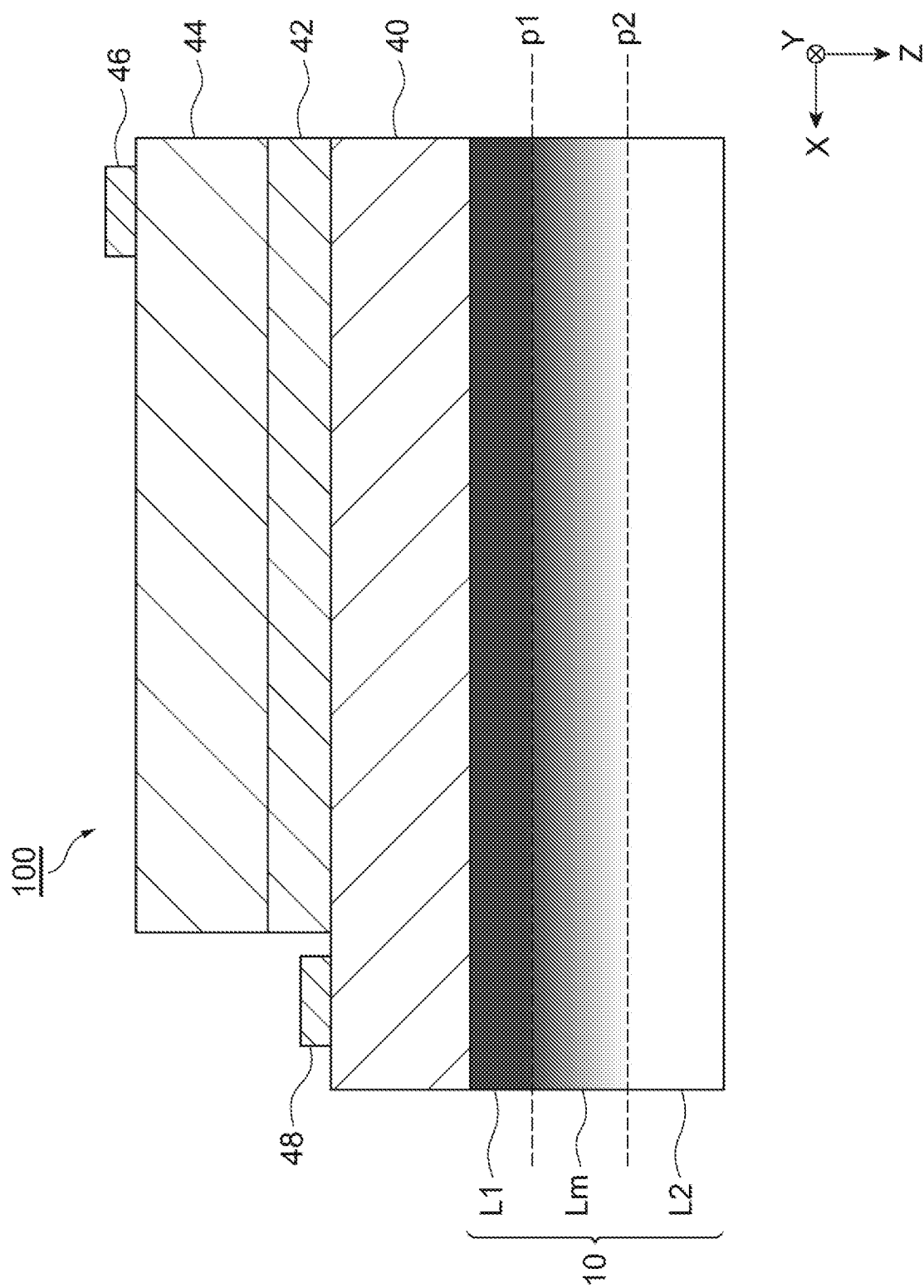
[図1]



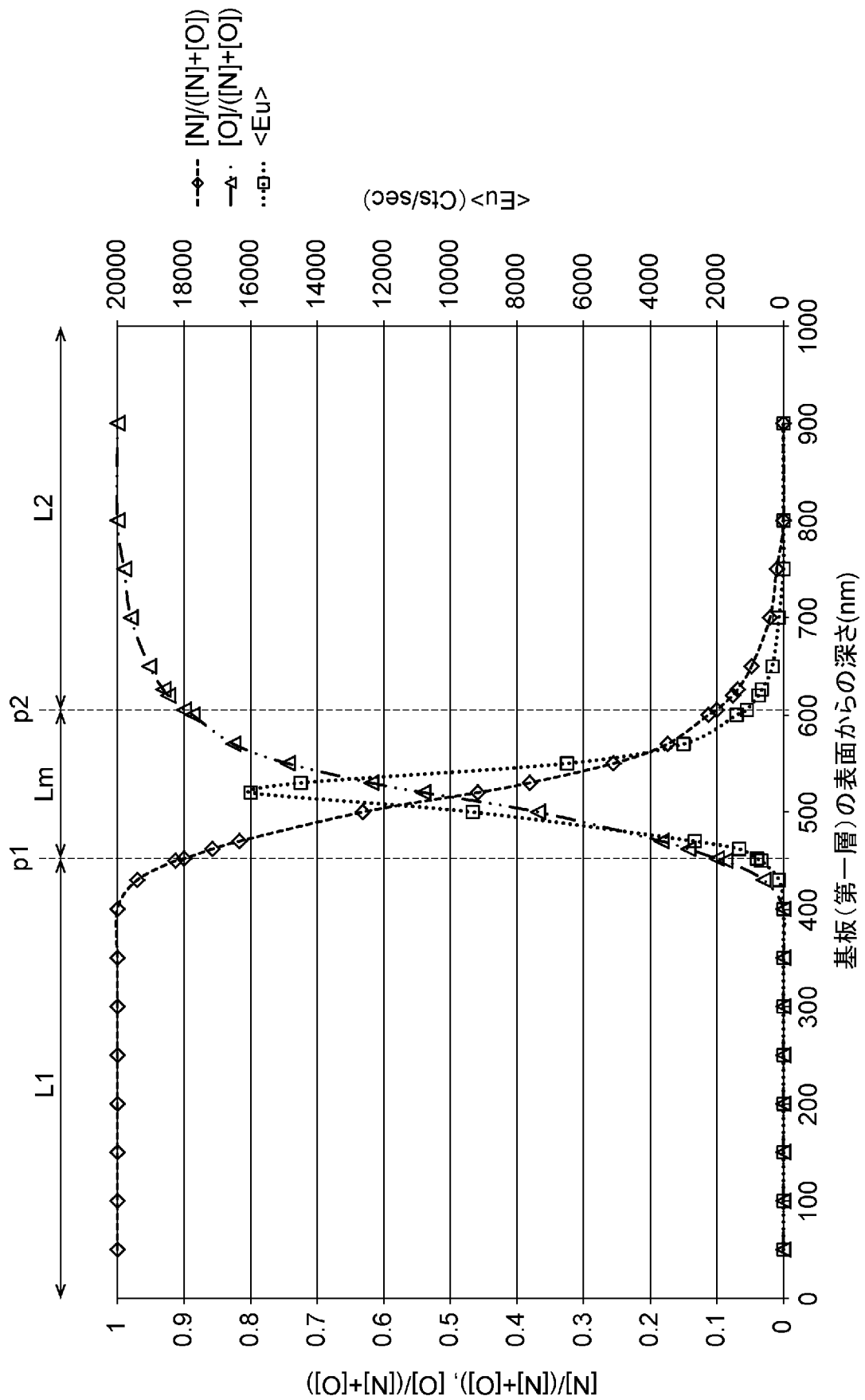
[図2]



[図3]



[図4]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2018/030857

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl. C30B29/20 (2006.01) i, C30B33/02 (2006.01) i, H01L21/318 (2006.01) i,
H01L21/86 (2006.01) i, H01L33/16 (2010.01) i, H01L33/32 (2010.01) i

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)

Int.Cl. C30B29/20, C30B33/02, H01L21/318, H01L21/86, H01L33/16, H01L33/32

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	1971-2018
Registered utility model specifications of Japan	1996-2018
Published registered utility model applications of Japan	1994-2018

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.
X Y	JP 2005-104829 A (TOKUYAMA CORPORATION) 21 April 2005, claims 1-3, paragraphs [0002], [0009], [0023], [0083]-[0085], [0089], [0096], fig. 8 & US 2005/0059257 A1, claims 1-3, paragraphs [0002], [0008], [0018]-[0019], [0082], [0093], fig. 8	1-3, 6 4-5
X Y	WO 2005/015618 A1 (NIPPON TELEGRAPH AND TELEPHONE CORP.) 17 February 2005, claims 1-4, paragraphs [0002], [0019]-[0026], [0036]-[0039], fig. 1 & US 2006/0051554 A1, claims 5-10, paragraphs [0002], [0030]-[0038], [0050]-[0053], fig. 1 & EP 1655766 A1	1-3, 6 4-5



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

"I" 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
06 November 2018 (06.11.2018)

Date of mailing of the international search report
20 November 2018 (20.11.2018)

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

International application No.

PCTJP2018030857

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	WO 2016/024514 A1 (TDK CORPORATION) 18 February 2016, paragraphs [0026], [0041]-[0050], [0062]-[0063], fig. 1 & US 2017/0211204 A1, paragraphs [0038], [0053]-[0062], [0074]-[0075], fig. 1 & EP 3181737 A1	4-5
A	WO 2017/145810 A1 (NGK INSULATORS, LTD.) 31 August 2017, claims 1-11, fig. 1 & US 2018/0179664 A1, claims 1-8, fig. 3	1-6

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C30B29/20(2006.01)i, C30B33/02(2006.01)i, H01L21/318(2006.01)i, H01L21/86(2006.01)i, H01L33/16(2010.01)i, H01L33/32(2010.01)i

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))

Int.Cl. C30B29/20, C30B33/02, H01L21/318, H01L21/86, H01L33/16, H01L33/32

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	1971-2018年
日本国実用新案登録公報	1996-2018年
日本国登録実用新案公報	1994-2018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
X Y	JP 2005-104829 A (株式会社トクヤマ) 2005.04.21, 請求項 1-3, 段落[0002], [0009], [0023], [0083]-[0085], [0089], [0096], 図 8 & US 2005/0059257 A1, 請求項 1-3, 段落[0002], [0008], [0018]-[0019], [0082], [0093], 図 8	1-3, 6 4-5
X Y	WO 2005/015618 A1 (日本電信電話株式会社) 2005.02.17, 請求の範囲 1-4, 段落[0002], [0019]-[0026], [0036]-[0039], 図 1 & US 2006/0051554 A1, 請求項 5-10, 段落[0002], [0030]-[0038], [0050]-[0053], 図 1 & EP 1655766 A1	1-3, 6 4-5

☑ 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	の日の後に公表された文献
「A」特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの	「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矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「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	「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
「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)	「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
「O」口頭による開示、使用、展示等に言及する文献	「&」同一パテントファミリー文献
「P」国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願	

国際調査を完了した日

06.11.2018

国際調査報告の発送日

20.11.2018

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/J P)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

森坂 英昭

4 G

4760

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

C (続き) . 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	WO 2016/024514 A1 (TDK株式会社) 2016.02.18, 段落[0026], [0041]-[0050], [0062]-[0063], 図1 & US 2017/0211204 A1, 段落[0038], [0053]-[0062], [0074]-[0075], 図1 & EP 3181737 A1	4-5
A	WO 2017/145810 A1 (日本碍子株式会社) 2017.08.31, 請求の範囲 1-11, 図1 & US 2018/0179664 A1, 請求項 1-8, 図3	1-6