(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
2010 年 1 月 14 日(14.01.2010)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2010/005035 A1

(51) 国際特許分類:
C01B 21/06 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2009/062470

(22) 国際出願日: 2009 年 7 月 8 日(08.07.2009)

(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 2008-180493 2008 年 7 月 10 日(10.07.2008) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 昭和電工株式会社(SHOWA DENKO K.K.) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目１３番９号 Tokyo (JP).

(72) 発明者; および

(75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 大澤 弘(OSAWA Hiroshi) [JP/JP]; 〒1058518 東京都港区芝大門一丁目１３番９号 昭和電工株式会社内 Tokyo (JP). 横山 泰典(YOKOYAMA Yasunori) [JP/JP]; 〒2900067 千葉県市原市八幡海岸通り５－１ 昭和電工株式会社内 Chiba (JP).

(74) 代理人: 志賀 正武, 外(SHIGA Masatake et al.); 〒1006620 東京都千代田区丸の内一丁目９番２号 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, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PE, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, 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, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (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, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

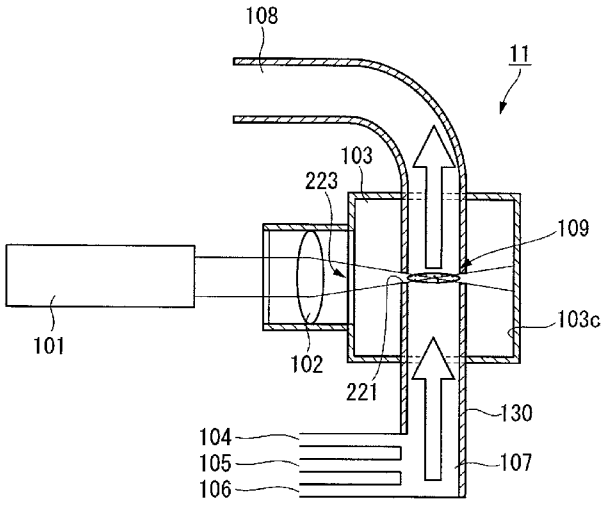
添付公開書類:

— 国際調査報告（条約第 21 条(3)）

(54) **Title**: GALLIUM NITRIDE PARTICLE, AND METHOD AND APPARATUS FOR PRODUCING THE SAME

(54) 発明の名称: 窒化ガリウム系粒子、その製造方法及び製造装置

[図1]



(57) **Abstract**: Disclosed is a method for producing gallium nitride particles, wherein at least an organic gallium compound and a nitrogen source are reacted. The method for producing gallium nitride particles is characterized in that a raw material gas containing the organic gallium compound and the nitrogen source is irradiated with a laser, thereby causing the reaction by using the laser as a heat source. An apparatus used for the method and gallium nitride particles produced by the method are also disclosed.

(57) 要約: 本発明は、少なくとも有機ガリウム化合物と窒素源とを反応させて窒化ガリウム系粒子を製造する方法において、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む原料ガスにレーザを照射して、前記レーザを熱源として前記反応を行うことを特徴とする窒化ガリウム系粒子の製造方法、その製造装置、及びその製造方法により製造された窒化ガリウム系粒子を提供する。

WO 2010/005035 A1

明　細　書

発明の名称 ： 窒化ガリウム系粒子、その製造方法及び製造装置

技術分野

[0001] 本発明は、窒化ガリウム系粒子、その製造方法及び製造装置に関するものである。本願は、２００８年７月１０日に、日本に出願された特願２００８－１８０４９３号に基づき優先権を主張し、その内容をここに援用する。

背景技術

[0002] 窒化ガリウム系および窒化ガリウムインジウム系化合物は発光材料として実用化されており、その単結晶薄膜は紫外から青、緑の短波長領域の発光を行う半導体レーザおよび発光ダイオードに広く利用されている。

たとえば、窒化ガリウム系化合物の単結晶薄膜については、ＭＯＣＶＤ法を用いて、シリコン（Ｓｉ）またはゲルマニウム（Ｇｅ）をｎ型ドーパントとして、また、マグネシウム（Ｍｇ）をｐ型ドーパントとして添加する方法が確立されており、ｎ型半導体およびｐ型半導体の単結晶薄膜を容易に作成することができる。

[0003] また、窒化ガリウムインジウム系化合物の単結晶薄膜についても、ＭＯＣＶＤ法を用いて作成することができる。なお、この窒化ガリウムインジウム系化合物を発光材料として利用する場合には、ガリウムとインジウムの組成比を変化させることにより発光波長を調整することができる。

このように、窒化ガリウム系および窒化ガリウムインジウム系化合物の単結晶薄膜は広く利用されている。

[0004] 一方、窒化ガリウム系および窒化ガリウムインジウム系化合物の粒子については、蛍光体、光触媒、太陽電池、量子ドットなど様々な応用が考えられているが、まだ研究開発段階であり、粒径が小さく、その平均粒径が均一で、粒径分布の広がりが小さい高品質な粒子は得られていない。

[0005] 特許文献１は、金属窒化物ナノ粒子及びその製造方法に関するものであり、液相合成法にて金属窒化物ナノ粒子を製造する方法が開示されている。

しかし、液相合成法で金属窒化物半導体ナノ粒子を製造した場合には、ｎ型ドーパントとしてドープするＳｉまたはＧｅやｐ型ドーパントとしてドープするＭｇなどを不活性にしてしまう酸素源を除去することが難しく、良好なｎ型または／およびｐ型半導体粒子とすることができない。

非特許文献１には、気相法にて窒化ガリウム粒子を作成する方法が開示されている。しかし、この方法では加熱に電気炉を用いているので、急激な温度差をつけることができない。そのため、粒径が大きい窒化ガリウム粒子しか作成することができない。また、その粒径分布も大きくなりがちである。

[0006] 特許文献２は、アルミニウム酸化物粉体に関するものであり、レーザ熱分解法を用いてAl_2O_3ナノ粒子を作成する方法が開示されている。しかし、金属窒化物ナノ粒子の作成についてはなんら開示されていない。

先行技術文献

特許文献

[0007] 特許文献1：特開２００７－１５３６６２号公報

特許文献2：特表２００５－５０４７０１号公報

非特許文献

[0008] 非特許文献1：Ｋａｚｕｈｉｋｏ Ｈａｒａ、Ｙｕｕｋｉ Ｍａｔｓｕｎｏ ａｎｄ Ｙｏｓｈｉｎｏｒｉ Ｍａｔｓｕｏ、“Ｖａｐｏｒ Ｐｈａｓｅ Ｓｙｎｔｈｅｓｉｓ ｏｆ Ｆｌｕｏｒｅｓｃｅｎｔ Ｇａｌｌｉｕｍ Ｎｉｔｒｉｄｅ Ｐｏｗｅｒｓ”、 Ｊｐｎ．Ｊ．Ａｐｐｌ．Ｐｈｙｓ．、Ｖｏｌ．４０、（２００１）、ｐｐ．Ｌ２４２－Ｌ２４４

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0009] 本発明は、上記事情を鑑みてなされたもので、粒径が小さく、均一で、粒径分布の広がりも少ない高品質な窒化ガリウム系粒子、その製造方法及び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

[0010] 本発明者らは、前記課題を解決するために鋭意検討した結果、以下の発明に至った。

（１） 少なくとも有機ガリウム化合物と窒素源とを反応させて窒化ガリウム系粒子を製造する方法において、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む原料ガスにレーザを照射して、前記レーザを熱源として前記反応を行うことを特徴とする窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（２） 前記原料ガスに有機インジウム化合物および／またはｎ型またはｐ型ドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物を更に添加して反応させることを特徴とする（１）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（３） 少なくとも前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスにレーザを照射する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記有機インジウム化合物および／または前記ドーパント源化合物を添加して別のレーザを照射する第２反応工程と、を具備することを特徴とする（２）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（４） 前記第１反応工程で前記原料ガスに有機インジウム化合物および／またはドーパント源化合物を更に添加することを特徴とする（３）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[0011] （５） 少なくとも前記有機インジウム化合物と前記窒素源とを含む別の原料ガスにレーザを照射する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記有機ガリウム化合物および／または前記ドーパント源化合物を添加して別のレーザを照射する第２反応工程と、を具備することを特徴とする（２）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（６） 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスにレーザを照射して窒化ガリウム粒子を製造することを特徴とする（１）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（７） 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記有機インジウム化合物とを含む前記原料ガスに、レーザを照射して窒化ガリウムインジウム粒子を製造することを特徴とする（２）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方

法。

（８） 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記ドーパント源化合物とを含む前記原料ガスに、レーザを照射してｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を製造することを特徴とする（２）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（９） 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記有機インジウム化合物と前記ドーパント源化合物とを含む前記原料ガスに、レーザを照射してｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を製造することを特徴とする（２）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（１０） 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスにレーザを照射して窒化ガリウム粒子を製造する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記有機インジウム化合物を添加して、別のレーザを照射して、窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第２反応工程と、を有することを特徴とする（３）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[0012] （１１） 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスにレーザを照射して窒化ガリウム粒子を製造する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記ドーパント源化合物を添加して、別のレーザを照射して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を製造する第２反応工程と、を有することを特徴とする（３）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（１２） 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスにレーザを照射して窒化ガリウム粒子を製造する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記有機インジウム化合物と前記ドーパント源化合物を添加して、別のレーザを照射して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第２反応工程と、を有することを特徴とする（３）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（１３） 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記有機インジウム化合物とを含む前記原料ガスに、レーザを照射して、窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記ド

ーパント源化合物を添加して、別のレーザを照射して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第２反応工程と、を有することを特徴とする（４）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（１４）　前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記ドーパント源化合物とを含む前記原料ガスに、レーザを照射して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を製造する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記有機インジウム化合物を添加して、別のレーザを照射して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第２反応工程と、を有することを特徴とする（４）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[0013] （１５）　前記原料ガスをキャリアガスとともに上流側から流通させて、前記レーザの照射部で前記反応をさせて得た反応生成物である前記窒化ガリウム系粒子を下流側で回収することを特徴とする（１）～（１４）のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（１６）　前記第１および第２反応工程で用いられるレーザが、それぞれ別のレーザ放射装置から放射されたレーザであることを特徴とする（３）～（５）、（１０）～（１５）のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（１７）　前記第１および第２反応工程で用いられるレーザが、それぞれ１のレーザ放射装置から放射されたレーザから分岐されたレーザであることを特徴とする（３）～（５）、（１０）～（１５）のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（１８）　前記有機ガリウム化合物がトリメチルガリウムまたはトリエチルガリウムであることを特徴とする（１）～（１７）のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（１９）　前記有機インジウム化合物がトリメチルインジウムまたはトリエチルインジウムであることを特徴とする（２）～（５）、（７）、（９）、（１２）～（１８）のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[0014] （２０） 前記窒素源を含むガスがアンモニア、窒素、ヒドラジンのいずれかであることを特徴とする（１）～（１９）のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（２１） 前記ｎ型ドーパントとなる元素がシリコンまたはゲルマニウムであることを特徴とする（２）～（５）、（８）、（９）、（１１）～（２０）のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（２２） 前記ｎ型ドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物を含むガスがモノシラン、ジシラン、ゲルマンガス、テトラメチルゲルマニウム、テトラエチルゲルマニウムのいずれかであることを特徴とする（２１）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（２３） 前記ｐ型ドーパントとなる元素がマグネシウムであることを特徴とする（２）～（５）、（８）、（９）、（１１）～（２０）のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

（２４） 前記ｐ型ドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物を含むガスがビスシクロペンタジエニルマグネシウムまたはビスエチルシクロペンタジエニルマグネシウムであることを特徴とする（２３）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[0015] （２５） （１）～（２４）のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法に用いる窒化ガリウム系粒子の製造装置であって、少なくとも前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスを流通させるガス流通管と、前記原料ガスを前記ガス流通管に導入するガス導入管と、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを反応させて製造した窒化ガリウム系粒子を前記ガス流通管から排出するガス排出管と、が備えられており、前記ガス流通管を流通させる前記原料ガスにレーザを照射するように、前記ガス流通管の外部にレーザ放射装置が配置されていることを特徴とする窒化ガリウム系粒子の製造装置。

（２６） 前記ガス流通管の内部の２箇所にレーザが照射されるように、前記レーザ放射装置が２台配置されていることを特徴とする（２５）に記

載の窒化ガリウム系粒子の製造装置。

（２７） 前記ガス流通管の内部の２箇所にレーザが照射されるように、前記レーザ放射装置から放射されたレーザが２方向に分岐されるようにレーザビームスプリッターが配置されていることを特徴とする（２５）に記載の窒化ガリウム系粒子の製造装置。

（２８） （１）～（２７）のいずれかに記載の製造方法により製造された窒化ガリウム系粒子であって、平均粒径が１～１００ｎｍであることを特徴とする窒化ガリウム系粒子。

発明の効果

[0016] 上記の構成によれば、粒径が小さく、均一で、粒径分布の広がりも少ない高品質な窒化ガリウム系粒子、その製造方法及び製造装置を提供することができる。

図面の簡単な説明

[0017] [図1]本発明の窒化ガリウム系粒子の製造装置の一例を示す模式図である。

[図2]本発明の窒化ガリウム系粒子の製造装置の別の一例を示す模式図である。

[図3]本発明の窒化ガリウム系粒子の製造装置の更に別の一例を示す模式図である。

発明を実施するための形態

[0018] 以下、本発明を実施するための形態について説明する。なお、本発明は、以下の実施形態の各々に限定されるものではなく、例えば、これら実施形態の構成要素同士を適宜組み合わせても良い。

[0019] （実施形態１）

図１は、本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造装置（レーザ熱分解装置）の一例を説明する模式図である。

図１に示すように、本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造装置１１は、レーザを照射して熱反応をさせるレーザ熱分解法を用いたレーザ熱分解装置であって、ガス流通管１３０とガス流通管１３０の一部を取り囲

むように配置されたチャンバー１０３と、チャンバー１０３の外部に備えられたレーザ放射装置１０１と、から概略構成されている。

[0020] ガス流通管１３０の一端側（上流側）はガス導入口１０７とされて、キャリアガス導入管１０４、有機ガリウム化合物ガス導入管１０５、窒素源ガス導入管１０６の３本のガス導入管が接続されている。また、ガス流通管１３０の他端側はガス排出口１０８とされている。

[0021] ガス流通管１３０のガス導入口１０７とガス排出口１０８との間であって、チャンバー１０３の内部には、スリット部２２１が設けられている。スリット部２２１を覆うように、ガス流通管１３０の一部がチャンバー１０３に取り囲まれている。

チャンバー１０３には窓部２２３が設けられている。また、チャンバー１０３の外部にはレーザ放射装置１０１およびレンズ部（集光レンズ）１０２が備えられている。

レーザ放射装置１０１から出射させたレーザは、レンズ部（集光レンズ）１０２により絞り込まれ、窓部２２３とスリット部２２１を介して、ガス流通管１３０の内部に集光させることができる構成とされている。この集光部が照射部（反応部）１０９とされている。

[0022] 図１に示すように、ガス流通管１３０の内部を流れる原料ガスには、照射部（反応部）１０９で集光されたレーザが照射される。照射部（反応部）１０９は、前記原料ガスのレーザが集光され照射される領域である。

[0023] なお、本実施形態では、ガス流通管１３０には、スリット部２２１が設けられている構成としているが、スリット部２２１を設ける代わりに、ガス流通管１３０を２つのダクトとからなる構成として、２つのダクトを一定の間隔をあけて対向配置しても良い。これによっても、２つのダクトの間から、レーザを通過させることができ、照射部（反応部）１０９で、原料ガスに含有される成分を熱反応させることができる。

[0024] なお、ガス排出口１０８にＴ字管などを介してドライポンプやロータリーポンプなどの真空ポンプを接続して、生成物搬出口を確保した状態で反応生

成物を含むキャリアガスを吸引してもよい。これにより、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）をより効率的に取り出すことができる。

[0025] チャンバー１０３は、真空ポンプ（図示略）と接続されており、内部が減圧状態とされている。ガス流通管１３０には、スリット部２２１が設けられているので、チャンバー１０３を減圧状態とすることにより、ガス流通管１３０の内部も減圧状態にすることができる。

なお、チャンバー１０３内はいかなる圧力を取ることが可能であるが、原料ガスを容易にチャンバー１０３内に投入できること、および、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）を容易に取り出すことができることから減圧雰囲気とすることが好ましい。

特に、チャンバー内圧力は１～７００Ｔｏｒｒ（１３３．３～９３３２５．６Ｐａ）であることがより好ましい。チャンバー内圧力が１Ｔｏｒｒ未満の場合には、前記原料ガスの量が十分ではなく、効率的に窒化ガリウム系粒子（反応生成物）を製造することができない。逆に、チャンバー内圧力が７００Ｔｏｒｒを超える場合には、減圧雰囲気を達成することが困難となる。

[0026] レーザには、従来公知のいかなるレーザを用いることもできる。特に、CO_2（炭酸ガス）レーザは低コストで高出力であるので好ましい。また、原料ガスに赤外域に吸収を持つ気体を含有させた場合には、CO_2（炭酸ガス）レーザは赤外発光なので前記気体にレーザエネルギーを効率的に吸収させることができるので好ましい。

[0027] レーザの出力は特に限定されるものではないが、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の作成には高温にすることが必要なこと、および、大量生産するためには高出力なレーザが好ましいことから、レーザ出力は１００Ｗ～１００ｋＷとすることが好ましい。１００ｋＷを超える出力のレーザを用いることは、なんら問題はないが産業用途にはコストが高くついてしまう。

[0028] 図１に示すように、レーザ放射装置１０１から出射させたレーザは、レンズ部（集光レンズ）１０２により絞り込んで集光させることが好ましい。このようにして、照射部（反応部）１０９のみに局所的にエネルギーを集中さ

せることにより、照射部（反応部）１０９の温度を瞬時に上昇させることができる。

[0029] レンズ部（集光レンズ）１０２を用いずレーザを照射して、チャンバー１０３の内壁部１０３ｃや窓部２２３などを高温にした場合には、アンモニア（NH_3）などの高反応性の気体と反応して、チャンバー１０３の内壁部１０３ｃや窓部２２３が損傷を受けるおそれが発生する。

レンズ部（集光レンズ）１０２により照射部（反応部）１０９に絞り込んで集光させることにより、照射部（反応部）１０９以外の領域の温度上昇を防止することができる。これにより、チャンバー１０３の内壁部１０３ｃや窓部２２３が損傷を受けるおそれを低減することができる。

[0030] なお、レーザ放射装置１０１から出射させたレーザは、レンズ部（集光レンズ）１０２により絞り込んで集光させることが上記理由により好ましいが、レンズ部（集光レンズ）１０２を用いず、そのままチャンバー１０３内に入れてもかまわない。

[0031] レンズ部（集光レンズ）１０２の材料としては、レーザとして赤外発光のレーザを用いる場合には、赤外域に透過性を持てばいかなる材料も用いることが可能であり、ＺｎＳｅ、ＧａＡＳまたはＧｅを用いることが好ましい。これらのなかで特に、波長１０．６μｍの光の透過率が最も高いＺｎＳｅがより好ましい。

[0032] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、有機ガリウム化合物と窒素源とを含む原料ガスにレーザを照射して、レーザを熱源として反応を行って、窒化ガリウム系粒子を製造する方法（以下、「レーザ熱分解法」）である。

本実施形態では、有機ガリウム化合物ガス導入管１０５、窒素源ガス導入管１０６から、ガス流通管１３０の一端側（上流側）のガス導入口１０７に、有機ガリウム化合物と窒素源とを含む原料ガスを導入する。

図１の矢印で示すように、この原料ガスは、キャリアガスとともにガス流通管１３０の内部を一端側（上流側）から他端側（下流側）に向けて流れる

。

[0033] そのとき、原料ガスは、照射部（反応部）１０９で熱反応（気相反応）して、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）を生成する。

照射部（反応部）１０９では、原料ガスが瞬時に高温とされ、原料ガスに含有される成分が熱反応に供される。なお、原料ガスは一定の流速で流されているので、次の瞬間には、照射部（反応部）１０９から離れた位置へ移り、瞬時に常温に戻される。

このように照射部（反応部）１０９でのみ局所的に反応させることにより、粒径が小さく、平均粒径が均一で、粒径分布の広がりが小さい窒化ガリウム系粒子（反応生成物）を生成することができる。

その後、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）は、キャリアガスとともに、ガス排出口１０８から排出され、回収される。なお、本実施形態では、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）として、窒化ガリウム粒子が得られる。

[0034] キャリアガス導入管１０４よりガス流通管１３０へ導入されるキャリアガスは、ガス流通管１３０の内部を流通させる原料ガスの流速および流量を調整するためのガスであり、混合ガスの体積の大部分を占めるものである。混合ガスの流速は、キャリアガスの流量を調整することによりコントロールすることができる。キャリアガスの流速は、たとえば、１００００～３００００ｓｃｃｍとする。

[0035] キャリアガスは、窒化ガリウム系粒子の製造方法に用いられる熱反応に関与しないが、その熱反応を促進するガスであることが好ましい。そのため、水素（H_2）または窒素（N_2）あるいはその両方を用いることが好ましい。窒素（N_2）は熱反応の窒素源として利用できる。

[0036] 有機ガリウム化合物ガスは、窒化ガリウム系粒子の一成分を形成する有機ガリウム化合物を含むガスであり、有機ガリウム化合物ガス導入管１０５から導入される。

有機ガリウム化合物としては、具体的には、トリメチルガリウム（ＴＭＧ）またはトリエチルガリウム（ＴＥＧ）を用いることが好ましい。これらの

ガスは、反応性が高いためである。

[0037] 窒素源ガスは、窒化ガリウム系粒子の一成分を形成する窒素または窒素化合物を含むガスであり、窒素源ガス導入管１０６から導入される。

窒素源ガスとしては、具体的には、アンモニア（NH_3）、窒素（N_2）またはヒドラジン（N_2H_4）を用いることが好ましい。特に、アンモニア（NH_3）が最も反応性が高く、さらに比較的安定なことからより好ましい。

[0038] なお、レーザとして赤外発光のレーザを用いる場合には、赤外域に吸収を持つ気体を原料ガスに含有させることが好ましい。これにより、原料ガスにレーザエネルギーを効率的に吸収させて、熱反応をさせることができる。

赤外域に吸収を持つ気体としては、エチレン（C_2H_4）、イソプロピルアルコール（C_3H_8O）、アンモニア（NH_3）、シラン（SiH_4）、オゾン（O_3）、６フッ化硫黄（SF_6）などを挙げることができる。

アンモニア（NH_3）は赤外域に吸収を持つ気体であるとともに、窒素を含むガスでもあるので、窒素源ガスとして特に好ましい。

[0039] 本実施形態で得られた窒化ガリウム系粒子（反応生成物）は、粒径が１～１００ｎｍと粒径が小さく、平均粒径が均一で、粒径分布の広がりが小さいので、光触媒、太陽電池、蛍光体、量子ドットなどの技術分野に優れた特性を発揮させることができる。

例えば、蛍光体については、組成分布を均一にすることにより、蛍光体の発光波長をコントロールすることができる。また、光触媒については、粒径を小さくすることにより、表面積を増大させることができ、光触媒の触媒能を向上させることができる。また、太陽電池については、粒径を小さくすることにより、塗布法にて太陽電池を作ることができるとともに、太陽電池の各層の間の接触面積を大きくできるので、接触抵抗の小さい太陽電池を作ることができる。さらに、組成分布を均一にすることにより、太陽光に対して最も効率のよい受光領域をコントロールすることができる。さらにまた、量子ドットについては、粒径分布を小さくすることにより、量子ドット効果をより効果的に発揮させることができる。

[0040] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、少なくとも前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを反応させて窒化ガリウム系粒子を製造する方法において、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスにレーザを照射して、前記レーザを熱源として前記反応を行う構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0041] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記有機ガリウム化合物がトリメチルガリウム（ＴＭＧ）またはトリエチルガリウム（ＴＥＧ）である構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0042] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記窒素源を含むガスがアンモニア（NH_3）、窒素（N_2）、ヒドラジン（N_2H_4）のいずれかである構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0043] また、本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子は、平均粒径が１～１００ｎｍである構成なので、光触媒、太陽電池、蛍光体、量子ドットなどの技術分野に応用することができる。たとえば、光触媒については、粒径を小さくすることにより、表面積を増大させることができ、光触媒の触媒能を向上させることができる。

[0044] また、本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造装置１１は、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスを流通させるガス流通管１３０と、前記原料ガスをガス流通管１３０に導入するガス導入管１０５、１０６と、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを反応させて製造した窒化ガリウム系粒子をガス流通管１３０から排出するガス排出口１０８と、が備えられており、ガス流通管１３０を流通させる前記原料ガスにレーザを照射するように、ガス流通管１３０の外部にレーザ放射装置１０１が配置されている構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0045] （実施形態２）

図２は、本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造装置（レーザ熱分解装置）の別の一例を説明する模式図である。

図２に示すように、本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造装置１２は、別のレーザ照射装置２０３、別のレンズ部２０４が配置されてガス流通管１３０の内部に別の熱反応領域２１６が形成され、ガス流通管１３０の一端側に有機インジウム化合物ガス導入管２０９が接続されるとともに、２つの熱反応領域１０９、２１６の間にガスを供給するように別のキャリアガス導入管２１１およびドーパントガス導入管２１２が接続されたほかは実施形態１と同様の構成とされている。なお、実施形態１で示した部材と同じ部材については同じ符号をつけて示している。

[0046] 図２に示すように、ガス流通管１３０の一端側はガス導入口１０７とされて、キャリアガス導入管１０４、有機ガリウム化合物ガス導入管１０５、窒素源ガス導入管１０６に加えて、インジウムガス導入管２０９の４本のガス導入管が接続されている。また、ガス流通管１３０の他端側はガス排出口１０８とされている。

[0047] ガス流通管１３０には、２つのスリット部２２１、２２２が設けられている。２つのスリット部２２１、２２２を覆うように、ガス流通管１３０の一部がチャンバー１０３に取り囲まれている。

チャンバー１０３には２つの窓部２２３、２２４が設けられている。また、チャンバー１０３の外部にはレーザ放射装置１０１、２０３およびレンズ部（集光レンズ）１０２、２０４が備えられている。

レーザ放射装置１０１、２０３から出射させたレーザは、レンズ部（集光レンズ）１０２、２０４により絞り込まれ、窓部２２３、２２４とスリット部２２１、２２２を介して、ガス流通管１３０の内部の照射部（反応部）１０９、２１６に集光させることができる構成とされている。

[0048] 図２に示すように、ガス流通管１３０の内部を流れる原料ガスには、照射部（反応部）１０９、２１６で集光されたレーザが照射される。照射部（反

応部）１０９、２１６は、前記原料ガスのレーザが集光され照射される領域である。

[0049] なお、本実施形態では、ガス流通管１３０には、スリット部２２１、２２２が設けられている構成としているが、スリット部２２１、２２２を設ける代わりに、ガス流通管１３０を３つのダクトとからなる構成として、３つのダクトを一定の間隔をあけて対向配置しても良い。これによっても、３つのダクトの間から、レーザを通過させることができ、照射部（反応部）１０９、２１６で、原料ガスに含有される成分を熱反応させることができる。

[0050] 図２に示すように、ガス流通管１３０の２つのスリット部２２１、２２２に挟まれた部分は連結部１３１とされている。連結部１３１には２つの熱反応領域１０９、２１６の間にガスを供給するようにガス導入管２１３が設けられており、ガス導入管２１３にはキャリアガス導入管２１１とｎ型またはｐ型ドーパントを含むガスを導入するドーパントガス導入管２１２が接続されている。

[0051] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記有機インジウム化合物とを含む前記原料ガスに、レーザを照射する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記ドーパント源化合物を添加して別のレーザを照射する第２反応工程と、を具備する。

[0052] 本実施形態では、実施形態１で示した３本のガス導入管１０４、１０５、１０６に加えて、有機インジウム化合物ガス導入管２０９が備えられている。

そのため、ガス導入口１０７に最初に導入されるガスは、有機ガリウム化合物ガス、窒素源ガス、有機インジウム化合物ガスとからなる原料ガスを含むキャリアガスとされる。

[0053] 有機インジウム化合物ガスは、窒化ガリウムインジウム粒子もしくはｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子の一成分を形成する有機インジウム化合物を含むガスであり、有機インジウム化合物ガス導入管２０９から導

入される。

有機インジウム化合物としては、トリメチルインジウム（ＴＭＩ）またはトリエチルインジウム（ＴＥＩ）を用いることが好ましい。これらのガスは、反応性が高いためである。

[0054] 図２の矢印で示すように、原料ガスを含むキャリアガスは、ガス流通管１３０の内部を一端側から他端側に向けて流される。

ガス流通管１３０の内部を流れる原料ガスは、まず、照射部（反応部）１０９で集光されたレーザが照射される。そのとき、原料ガスが瞬時に高温とされ、原料ガスに含まれる成分が熱反応を起こし、窒化ガリウムインジウム粒子（反応生成物）を生成する。なお、原料ガスは一定の流速で流されているので、次の瞬間には、照射部（反応部）１０９から離れた位置へ移り、瞬時に常温に戻される。

[0055] 照射部（反応部）１０９で生成された窒化ガリウムインジウム粒子（反応生成物）は、キャリアガスによって、更に下流側へ運ばれる。

一方、キャリアガス導入管２１１とドーパントガス導入管２１２から導入された各ガスは、ガス導入管２１３でドーパント源化合物を含むキャリアガスとされた後、ガス導入管２１３からガス流通管１３０へ導入される。

そのため、連結部１３１において、窒化ガリウムインジウム粒子（反応生成物）を含むキャリアガスと、ドーパント源化合物を含むキャリアガスとが混合される。

[0056] ドーパントガスは、ｎ型またはｐ型のドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物を含むガスであり、ドーパントガス導入管２１２から導入される。

ｎ型ドーパントとなる元素としては、シリコン（Ｓｉ）またはゲルマニウム（Ｇｅ）であることが好ましい。安定したｎ型窒化ガリウムまたは窒化ガリウムインジウム粒子を形成することができる。

具体的には、ｎ型ドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物を含むガスは、モノシラン（SiH_4）、ジシラン（Si_2H_6）、ゲルマンガス（G

ｅＨ$_4$）、テトラメチルゲルマニウム（（ＣＨ$_3$）$_4$Ｇｅ）、テトラエチルゲルマニウム（（Ｃ$_2$Ｈ$_5$）$_4$Ｇｅ）のいずれかであることが好ましい。ＳｉまたはＧｅ原料を含み、取り扱いしやすく、安定したｎ型窒化ガリウムまたは窒化ガリウムインジウム粒子を形成することができる。

[0057] ｐ型ドーパントとなる元素としては、マグネシウム（Ｍｇ）であることが好ましい。安定したｐ型窒化ガリウムまたは窒化ガリウムインジウム粒子を形成することができる。

具体的には、ｐ型ドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物を含むガスは、ビスシクロペンタジエニルマグネシウム（Ｃｐ$_2$Ｍｇ）またはビスエチルシクロペンタジエニルマグネシウム（ＥｔＣｐ$_2$Ｍｇ）であることが好ましい。Ｍｇ原料を含み、取り扱いしやすく、安定したｐ型窒化ガリウムまたは窒化ガリウムインジウム粒子を形成することができる。

[0058] 別の照射部（熱反応部）２１６で、窒化ガリウムインジウム粒子（反応生成物）とドーパント源化合物を含むキャリアガス（原料ガス）に、集光されたレーザが照射される。そのとき、原料ガスが瞬時に高温とされ、原料ガスに含まれる成分が熱反応を起こし、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子（反応生成物）を生成する。

なお、原料ガスは一定の流速で流されているので、次の瞬間には、照射部（熱反応部）２１６から離れた位置へ移り、瞬時に常温に戻される。

これにより、粒径が小さく、平均粒径が均一で、粒径分布の広がりが小さい窒化ガリウム系粒子（反応生成物）を生成することができる。

照射部（反応部）２１６で生成されたｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子（反応生成物）は、キャリアガスによって、更に下流側へ運ばれて、ガス排出口１０８から排出され、回収される。

[0059] なお、ドーパントとなる元素として用いるシリコン、ゲルマニウム、マグネシウム、および、窒化ガリウムインジウム粒子を作成する場合に添加するインジウム（Ｉｎ）などの材料は、通常の電気（焼成）炉を用いた熱反応ではガリウムと相分離してしまい、通常はガリウム（Ｇａ）にほとんど固溶し

ない物質群（難固溶性材料）である。

[0060] 本実施形態で用いたレーザ熱分解法は、レーザを集光して照射した照射部（反応部）１０９のみを局所的に瞬時に高温とする構成なので、照射部（反応部）１０９以外の領域は低温領域とされている。そのため、生成物は、前照射部（反応部）１０９からそれ以外の領域に移動するだけで、急速冷却される。また、前記生成物の移動はガスの流れの中で行われるので、前記ガスにより熱が奪い取られることによっても、生成物は急速冷却される。この急速冷却は、様々な材料を容易に混合することができるので、シリコン、マグネシウム、インジウムなどの難固溶性材料であってもガリウムに容易に混合させることができる。

そのため、レーザ熱分解法は、シリコン、マグネシウム、インジウムなどの難固溶性材料をガリウムに混合させる効果的な方法である。

[0061] また、窒化ガリウム粒子を作成するときの熱反応条件と、ガリウムにシリコン、マグネシウム、インジウムなどの難固溶性材料を固溶させる熱反応条件との間に相関関係はない。そのため、窒化ガリウムを作成する熱反応と、ガリウムにシリコン、マグネシウム、インジウム）などの難固溶性材料を固溶させる熱反応との熱反応を別々に２段階の熱反応として行うことが好ましい。

[0062] 本実施形態で示した方法は２つの照射部（反応部）１０９、２１６を用いて２つの熱反応を行わせる構成なので、窒化ガリウム粒子を効率的に生成することができるとともに、ガリウムにシリコン、マグネシウム、インジウムなどの難固溶性材料を効率よく固溶させることができる。

これにより、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムまたは窒化ガリウムインジウム粒子（生成物）を効率よく生成することができる。

[0063] さらにまた、照射部（反応部）１０９、２１６の２箇所で異なる熱反応を段階的に行うことにより、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径をより均一化して、その粒度分布の広がりを狭めるとともに、高純度化・高品質化することができる。

[0064] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記有機インジウム化合物とを含む原料ガスに、レーザを照射する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物にドーパント源化合物を添加して別のレーザを照射する第２反応工程と、を具備する構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。また、ガリウムにシリコン、マグネシウム、インジウム）などの難固溶性材料を効率よく固溶させることができる。

[0065] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記第１および第２反応工程で用いられるレーザが、それぞれ別のレーザ放射装置から放射されたレーザである構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0066] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記有機インジウム化合物がトリメチルインジウム（ＴＭＩ）またはトリエチルインジウム（ＴＥＩ）である構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0067] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記ｎ型ドーパントとなる元素がシリコン（Ｓｉ）またはゲルマニウム（Ｇｅ）である構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0068] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記ｎ型ドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物を含むガスがモノシラン（SiH_4）、ジシラン（Si_2H_6）、ゲルマンガス（GeH_4）、テトラメチルゲルマニウム（$(CH_3)_4Ge$）、テトラエチルゲルマニウム（$(C_2H_5)_4Ge$）のいずれかである構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0069] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記ｐ型ドーパントとなる元素がマグネシウム（Ｍｇ）である構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0070] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記ｐ型ドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物を含むガスがビスシクロペンタジエニルマグネシウム（Cp_2Mg）またはビスエチルシクロペンタジエニルマグネシウム（$EtCp_2Mg$）である構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0071] また、本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造装置１２は、ガス流通管１３０の内部の２箇所にレーザが照射されるように、レーザ放射装置１０１、２０３が２台配置されている構成なので、２つの熱反応領域１０９、２１６にそれぞれ別のレーザを照射して熱反応させて、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0072] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造装置１２は、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスを流通させるガス流通管１３０と、前記原料ガスをガス流通管１３０に導入するガス導入管１０５、１０６、２０９と、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを反応させて製造した窒化ガリウム系粒子をガス流通管１３０から排出するガス排出口１０８と、が備えられており、ガス流通管１３０を流通させる前記原料ガスにレーザを照射するように、ガス流通管１３０の外部にレーザ放射装置１０１、２０３が配置されている構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。また、ガリウムにシリコン、マグネシウム、インジウムなどの難固溶性材料を効率よく固溶させることができる。

[0073] （実施形態３）

図３は、本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造装置（レーザ熱分解装置）の別の一例を説明する模式図であって、１台のレーザ放射装置を分岐して使用した場合の模式図である。

図３に示すように、本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造装置１３は、１台のレーザ放射装置１０１をレーザビームスプリッター３０２、３０３により分岐して使用するとともに、分岐後にアッテネーター３０４、３０５を設置したほかは、実施形態２と同様の構成とされている。なお、実施形態２で示した部材と同じ部材については同じ符号をつけて示している。

[0074] レーザビームスプリッター３０２、３０３は、一面側では入射光を透過光と反射光とに分岐し、他面側では入射光を全面反射させる部材である。これにより、レーザビームスプリッター３０２に一面側に入射された光は、透過光と反射光とに分岐され、透過光はアッテネーター３０４へ入射され、反射光は別のレーザビームスプリッター３０３の他面側へ入射される。別のレーザビームスプリッター３０３の他面側へ入射された光は全面反射され、アッテネーター３０５へ入射される。

[0075] アッテネーター３０４、３０５とは、光出力（光信号レベル）を減衰させる減衰器であり、アッテネーター３０４、３０５へ入射された光は、それぞれ光出力を別個に調整されて、レンズ部（集光レンズ）１０２、２０４方向に出射される。これにより、照射部（反応部）１０９、２１６での昇温温度を制御して、そこでの熱反応を別個に調整することができる。

本実施形態は、実施形態２と同様に、２つの照射部（反応部）１０９、２１６で熱反応を行わせる構成なので、実施形態２と同様の効果を得ることができる。たとえば、インジウム、シリコン、マグネシウムなどをガリウムに容易に添加することができる。

さらに、レーザ放射装置を１台しか用いない構成なので、製造コストを低く抑えることができる。

[0076] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記第１およ

び第２反応工程で用いられるレーザが、それぞれ１のレーザ放射装置から放射されたレーザから分岐されたレーザである構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。また、レーザ放射装置を１台しか用いない構成なので、製造コストを低く抑えることができる。

[0077] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造装置１３は、ガス流通管１３０の内部の２箇所にレーザが照射されるように、レーザ放射装置１０１から放射されたレーザが２方向に分岐されるようにレーザビームスプリッター３０２、３０３が配置されている構成なので、２つの熱反応領域１０９、２１６に別の経路でレーザを照射して熱反応させて、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに、均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。また、レーザ放射装置を１台しか用いない構成なので、製造コストを低く抑えることができる。

[0078] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造装置１３は、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスを流通させるガス流通管１３０と、前記原料ガスをガス流通管１３０に導入するガス導入管１０５、１０６、２０９、２１２と、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを反応させて製造した窒化ガリウム系粒子をガス流通管１３０から排出するガス排出口１０８と、が備えられており、ガス流通管１３０を流通させる前記原料ガスにレーザを照射するように、ガス流通管１３０の外部にレーザ放射装置１０１が配置されている構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。また、ガリウムにシリコン、マグネシウム、インジウムなどの難固溶性材料を効率よく固溶させることができる。

[0079] （実施形態４）

実施形態１では、図１に示すように、３本のガス導入管をガス導入口１０７に接続してガス流通管１３０に原料ガスを導入する例について説明したが、ガス導入口１０７に、３本のガス導入管に並べて、ｎ型またはｐ型ドーパ

ントを含むガスを導入するドーパントガス導入管を設置してもよい。

ドーパントガス導入管を設置することにより、原料ガスは有機ガリウム化合物ガス、窒素源ガス、ドーパントガスとからなるので、有機ガリウム化合物と窒素とｎ型またはｐ型ドーパントとを反応させて、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子（生成物）を生成することができる。

[0080] （実施形態５）

また、図１において、ガス導入口１０７に、３本のガス導入管に並べて、有機インジウム化合物を含むガスを導入する有機インジウム化合物ガス導入管を接続してもよい。

有機インジウム化合物ガス導入管を設置することにより、原料ガスは有機ガリウム化合物ガス、窒素源ガス、有機インジウム化合物ガスとからなるので、有機ガリウム化合物と窒素と有機インジウム化合物とを反応させて、窒化ガリウムインジウム粒子（生成物）を生成することができる。

[0081] （実施形態６）

さらにまた、図１において、ガス導入口１０７に、３本のガス導入管に並べて、ドーパントガス導入管および有機インジウム化合物ガス導入管の両方を接続してもよい。

これにより、原料ガスは有機ガリウム化合物ガス、窒素源ガス、ドーパントガス、有機インジウム化合物ガスとからなるので、有機ガリウム化合物と窒素とｎ型またはｐ型ドーパントと有機インジウム化合物とを反応させて、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子（生成物）を生成することができる。

[0082] （実施形態７）

実施形態２では、図２に示すように、３本のガス導入管に加えて有機インジウム化合物ガス導入管２０９をガス導入口１０７に接続してガス流通管１３０に原料ガスを導入し、２つの熱反応領域１０９、２１６の間にガスを供給するように別のキャリアガス導入管２１１およびドーパントガス導入管２１２を接続した例について説明したが、有機インジウム化合物ガス導入管と

ドーパントガス導入管の配置を逆にして、ドーパントガス導入管をガス導入口１０７に接続し、有機インジウム化合物ガス導入管を２つの熱反応領域１０９、２１６の間にガスを供給するように接続してもよい。

この構成では、まず、照射部（反応部）１０９において、有機ガリウム化合物ガスと窒素源ガスとドーパントガスとを含む原料ガスを導入して、窒化ガリウム粒子にｎ型またはｐ型ドーパントを固溶させて、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を効率よく作成する。

次に、照射部（熱反応部）２１６において、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を含有したガスに前記有機インジウム化合物を導入して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子にインジウムを固溶させることができ、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を効率よく作成することができる。

[0083] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記ドーパントガスとを含む前記原料ガスに、レーザを照射して、前記ガスに含まれる成分を反応させることにより、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を製造する第１反応工程と、前記窒化ガリウムインジウム粒子と前記有機インジウム化合物とを含むガスに、レーザを照射して、前記ガスに含まれる成分を反応させることにより、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第２反応工程と、を有する構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0084] （実施形態８）

また、図２において、ドーパントガス導入管２１２の代わりに有機ガリウム化合物ガス導入管を２つの熱反応領域１０９、２１６の間にガスを供給するように接続して、第１の熱反応工程では有機インジウム化合物ガス導入管と窒素源ガス導入管からのみガスを流通させて窒化インジウム粒子を生成した後、第２の熱反応工程で有機ガリウム化合物ガスを導入して、窒化ガリウムインジウム粒子を生成してもよい。

[0085] （実施形態９）

また、図２において、ドーパントガス導入管２１２の代わりに有機インジウム化合物ガス導入管を２つの熱反応領域１０９、２１６の間にガスを供給するように接続して、第１の熱反応工程では有機ガリウム化合物ガス導入管と窒素源ガス導入管からのみガスを流通させて窒化ガリウム粒子を生成した後、第２の熱反応工程で有機インジウム化合物ガスを導入して、窒化ガリウムインジウム粒子を生成してもよい。

この場合には、熱反応において高温状態が必要な窒化ガリウム粒子の生成工程と、窒化ガリウム粒子の生成温度に近い高温では分解されてしまう窒化ガリウムインジウム粒子の生成工程と、を別にして行うことができるので好ましい。これにより、より高品質な窒化ガリウムインジウム粒子を作成することができる。

[0086] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスに、レーザを照射して、前記ガスに含まれる成分を反応させることにより、窒化ガリウム粒子を製造する第１反応工程と、前記窒化ガリウム粒子と前記有機インジウム化合物とを含むガスに、レーザを照射して、前記ガスに含まれる成分を反応させることにより、窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第２反応工程と、を有する構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0087] （実施形態１０）

また、図２において、第１の熱反応工程で有機ガリウム化合物ガス導入管と窒素源ガス導入管からのみガスを流通させて窒化ガリウム粒子を生成した後、第２の熱反応工程でｎ型またはｐ型ドーパントガスを導入して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を生成してもよい。これにより、より高品質なｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を作成することができる。

[0088] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む原料ガスに、レーザを照射して、前記ガスに含まれる成分を反応させることにより、窒化ガリウム粒子を製造する第１

反応工程と、前記窒化ガリウム粒子とｎ型またはｐ型ドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物とを含むガスに、レーザを照射して、前記ガスに含まれる成分を反応させることにより、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を製造する第２反応工程と、を有する構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0089] （実施形態１１）

また、図２において、ドーパントガス導入管２１２に並べて有機インジウム化合物ガス導入管も２つの熱反応領域１０９、２１６の間にガスを供給するように接続して、第１の熱反応工程では有機ガリウム化合物ガス導入管と窒素源ガス導入管からのみガスを流通させて窒化ガリウム粒子を生成した後、第２の熱反応工程でｎ型またはｐ型ドーパントガスと有機インジウム化合物ガスを導入して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を生成してもよい。これにより、より高品質なｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を作成することができる。

[0090] 本発明の実施形態である窒化ガリウム系粒子の製造方法は、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスに、レーザを照射して、前記ガスに含まれる成分を熱反応させることにより、窒化ガリウム粒子を製造する第１反応工程と、前記窒化ガリウム粒子を含有したガスに、有機インジウム化合物を含むガスとｎ型またはｐ型ドーパントを含むガスとを混入させた状態で、レーザを照射して、前記ガスに含まれる成分を熱反応させることにより、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第２反応工程と、を有する構成なので、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径を小さくするとともに均一にして粒径分布の広がりを狭めることができる。

[0091] （実施形態１２）

さらにまた、図２において、ドーパントガス導入管２１２の代わりに有機インジウム化合物ガス導入管を２つの熱反応領域１０９、２１６の間にガスを供給するように接続して、照射部（反応部）１０９、２１６の２箇所で同

じ熱反応を行って、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径をより均一化して、その粒度分布の広がりを狭めるとともに、高純度化・高品質化してもよい。

この構成では、まず、照射部（反応部）１０９において、有機ガリウム化合物ガスと窒素源ガスと有機インジウム化合物ガスからなる原料ガスを導入して、窒化ガリウム粒子にインジウムを固溶させて、窒化ガリウムインジウム粒子を効率よく作成する。

次に、照射部（熱反応部）２１６において、窒化ガリウムインジウム粒子を含有したガスに有機インジウム化合物ガスを導入して、窒化ガリウムインジウム粒子にインジウムをさらに固溶させて、窒化ガリウムインジウム粒子を効率よく作成することができる。これにより、窒化ガリウム系粒子（反応生成物）の粒径をより均一化して、その粒度分布の広がりを狭めるとともに、高純度化・高品質化することができる。

[0092] また、逆に、有機インジウム化合物ガス導入管２０９の代わりに、ドーパントガス導入管をガス導入口１０７に接続してもよい。これにより、より高品質なｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を作成することができる。

熱反応は１回または２回に限定されるものではなく、多数の熱反応を段階的に行う構成としても良い。たとえば、３台のレーザ放射装置を用いて３箇所の熱反応領域を設定し、１段階目の熱反応で窒化ガリウム粒子を生成した後、２段階目の熱反応で窒化ガリウムインジウム粒子を生成し、３段階目の熱反応でｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を作成するようにしても良い。

[0093] なお、照射部（熱反応部）は３箇所以上形成した場合には、例えば、２箇所の照射部で形成した窒化ガリウムインジウム粒子の表面をｐ型あるいはｎ型窒化ガリウム粒子で被覆することが可能になる。

[0094] 以下、本発明を実施例に基づいて具体的に説明する。しかし、本発明はこれらの実施例にのみ限定されるものではない。

実施例

[0095] （実施例１）

図１に示す窒化ガリウム系粒子の製造装置を用いて、窒化ガリウム系粒子の製造を行った。

まず、ドライポンプがつながれた排出管からガスを排気することにより、チャンバー容積０．１m^3のチャンバー内を減圧状態とした。

次に、導入管から、キャリアガスとしてH_2を２００００ｓｃｃｍ、窒素源ガスとしてNH_3を１４０００ｓｃｃｍ、有機ガリウム化合物ガスとしてＴＭＧを３００ｓｃｃｍでチャンバー内に導入した。このとき、チャンバー圧力は２００Ｔｏｒｒであった。

この状態で、CO_2レーザを備えたレーザ放射装置から１２００Wの出力で放射したレーザを、集光レンズを介して、チャンバー内の照射部（反応部）へ一定時間集光した。

その後、排出管で窒化ガリウム粒子を捕集した。捕集された窒化ガリウム粒子は、平均粒径３０ｎｍであり、粒径分散はσ＝２ｎｍであった。

[0096] （実施例２）

図２に示す窒化ガリウム系粒子の製造装置を用いて、ｎ型窒化ガリウム系粒子の製造を行った。

まず、ドライポンプがつながれた排出管からガスを排気することにより、チャンバー容積０．２m^3のチャンバー内を減圧状態とした。

次に、導入管から、キャリアガスとしてH_2を３００００ｓｃｃｍ、窒素源ガスとしてNH_3を２１０００ｓｃｃｍ、有機ガリウム化合物ガスとしてＴＭＧを４５０ｓｃｃｍでチャンバー内に導入した。

この状態で、CO_2レーザを備えたレーザ放射装置から１２００Wの出力で放射したレーザを、集光レンズを介して、チャンバー内の照射部（反応部）へ一定時間集光した。

[0097] また、同時に、別の導入管から、キャリアガスとしてH_2を１００００ｓｃｃｍ、ｎ型ドーパントとしてSiH_4（５０ｐｐｍ）を１００ｓｃｃｍでチャンバー内に導入した。

この状態で、CO_2レーザを備えた別のレーザ放射装置から１１００Wの出力で放射したレーザを、集光レンズを介して、チャンバー内の別の照射部（反応部）へ一定時間集光した。このとき、チャンバー圧力は２００Ｔｏｒｒであった。

その後、排出管でｎ型窒化ガリウム粒子を捕集した。捕集されたｎ型窒化ガリウム粒子は、平均粒径３５ｎｍであり、粒径分散はσ＝３ｎｍであった。

[0098] （実施例３）

図２に示す窒化ガリウム系粒子の製造装置を用いて、ｐ型窒化ガリウム系粒子の製造を行った。

まず、ドライポンプがつながれた排出管からガスを排気することにより、チャンバー容積０．２m^3のチャンバー内を減圧状態とした。

次に、導入管から、キャリアガスとしてH_2を３００００ｓｃｃｍ、窒素源ガスとしてNH_3を２１０００ｓｃｃｍ、有機ガリウム化合物ガスとしてＴＭＧを４５０ｓｃｃｍでチャンバー内に導入した。

この状態で、CO_2レーザを備えたレーザ放射装置から１２００Wの出力で放射したレーザを、集光レンズを介して、チャンバー内の照射部（反応部）へ一定時間集光した。

[0099] また、同時に、別の導入管から、キャリアガスとしてH_2を１００００ｓｃｃｍ、ｐ型ドーパントとしてCp_2Mgを７００ｓｃｃｍでチャンバー内に導入した。

この状態で、CO_2レーザを備えた別のレーザ放射装置から１１００Wの出力で放射したレーザを、集光レンズを介して、チャンバー内の別の照射部（反応部）へ一定時間集光した。このとき、チャンバー圧力は２００Ｔｏｒｒであった。

その後、排出管でｐ型窒化ガリウム粒子を捕集した。捕集されたｐ型窒化ガリウム粒子は、平均粒径３５ｎｍであり、粒径分散はσ＝３ｎｍであった。

[0100] （実施例４）

図２に示す窒化ガリウム系粒子の製造装置を用いて、窒化ガリウムインジウム粒子の製造を行った。

まず、ドライポンプがつながれた排出管からガスを排気することにより、チャンバー容積０．２m^3のチャンバー内を減圧状態とした。

次に、導入管から、キャリアガスとしてH_2を３００００ｓｃｃｍ、窒素源ガスとしてNH_3を２１０００ｓｃｃｍ、有機ガリウム化合物ガスとしてＴＭＧを４５０ｓｃｃｍでチャンバー内に導入した。

この状態で、CO_2レーザを備えたレーザ放射装置から１２００Wの出力で放射したレーザを、集光レンズを介して、チャンバー内の照射部（反応部）へ一定時間集光した。

[0101] また、同時に、別の導入管から、キャリアガスとしてH_2を１００００ｓｃｃｍ、有機インジウム化合物としてＴＭＩを１００ｓｃｃｍでチャンバー内に導入した。

この状態で、CO_2レーザを備えた別のレーザ放射装置から８００Wの出力で放射したレーザを、集光レンズを介して、チャンバー内の別の照射部（反応部）へ一定時間集光した。このとき、チャンバー圧力は２００Ｔｏｒｒであった。

その後、排出管で窒化ガリウムインジウム粒子を捕集した。捕集された窒化ガリウムインジウム粒子は、平均粒径３０ｎｍであり、粒径分散はσ＝２ｎｍであった。

以上の結果を表１にまとめた。

[0102] [表1]

	生成物	平均粒径(nm)	粒径分散 σ(nm)
実施例1	窒化ガリウム粒子	30	2
実施例2	n型窒化ガリウム粒子	35	3
実施例3	p型窒化ガリウム粒子	35	3
実施例4	窒化ガリウムインジウム粒子	30	2

産業上の利用可能性

[0103] 本発明は、窒化ガリウム系粒子、その製造方法及び製造装置に関するものである。本発明の窒化ガリウム系粒子の製造方法および製造装置を用いることにより、光触媒、太陽電池、蛍光体、量子ドットなどの技術分野に適用することができる高品質の窒化ガリウム系粒子を形成できることができる。従って、光触媒を用いる石油化学産業、太陽光発電などのエネルギー産業、蛍光体を用いるディスプレイ産業、量子ドットを用いるコンピュータ産業などにおいて利用可能性がある。

符号の説明

[0104] １１、１２、１３…窒化ガリウム系粒子の製造装置、１０１…レーザ放射装置、１０２…レンズ部（集光レンズ）、１０３…チャンバー、１０３ｃ…内壁面、１０４…キャリアガス導入管、１０５…有機ガリウム化合物ガス導入管、１０６…窒素源ガス導入管、１０７…ガス導入口、１０８…ガス排出口（生成物搬出口）、１０９…照射部（熱反応部）、１３０…ガス流通管、１３１…連結部、２０３…レーザ放射装置、２０４…レンズ部（集光レンズ）、２０９…有機インジウム化合物ガス導入管、２１１…キャリアガス導入管、２１２…ドーパントガス導入管、２１３…ガス導入口、２１６…照射部（熱反応部）、２２１、２２２…スリット部、２２３、２２４…窓部、３０２、３０３…レーザビームスプリッター、３０４、３０５…アッテネーター。

請求の範囲

[請求項1] 少なくとも有機ガリウム化合物と窒素源とを反応させて窒化ガリウム系粒子を製造する方法において、

前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む原料ガスにレーザを照射して、前記レーザを熱源として前記反応を行うことを特徴とする窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項2] 前記原料ガスに有機インジウム化合物および／またはｎ型またはｐ型ドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物を更に添加して反応させることを特徴とする請求項１に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項3] 少なくとも前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスにレーザを照射する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記有機インジウム化合物および／または前記ドーパント源化合物を添加して別のレーザを照射する第２反応工程と、を具備することを特徴とする請求項２に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項4] 前記第１反応工程で前記原料ガスに有機インジウム化合物および／またはドーパント源化合物を更に添加することを特徴とする請求項３に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項5] 少なくとも前記有機インジウム化合物と前記窒素源とを含む別の原料ガスにレーザを照射する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記有機ガリウム化合物および／または前記ドーパント源化合物を添加して別のレーザを照射する第２反応工程と、を具備することを特徴とする請求項２に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項6] 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスにレーザを照射して窒化ガリウム粒子を製造することを特徴とする請求項１に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項7] 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記有機インジウム化合物とを含む前記原料ガスに、レーザを照射して窒化ガリウムインジウム

粒子を製造することを特徴とする請求項２に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項8] 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記ドーパント源化合物とを含む前記原料ガスに、レーザを照射してｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を製造することを特徴とする請求項２に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項9] 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記有機インジウム化合物と前記ドーパント源化合物とを含む前記原料ガスに、レーザを照射してｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を製造することを特徴とする請求項２に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項10] 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスにレーザを照射して窒化ガリウム粒子を製造する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記有機インジウム化合物を添加して、別のレーザを照射して、窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第２反応工程と、を有することを特徴とする請求項３に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項11] 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスにレーザを照射して窒化ガリウム粒子を製造する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記ドーパント源化合物を添加して、別のレーザを照射して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を製造する第２反応工程と、を有することを特徴とする請求項３に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項12] 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスにレーザを照射して窒化ガリウム粒子を製造する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記有機インジウム化合物と前記ドーパント源化合物を添加して、別のレーザを照射して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第２反応工程と、を有することを特徴とする請求項３に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項13] 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記有機インジウム化合物とを含む前記原料ガスに、レーザを照射して、窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記ドーパント源化合物を添加して、別のレーザを照射して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第２反応工程と、を有することを特徴とする請求項４に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項14] 前記有機ガリウム化合物と前記窒素源と前記ドーパント源化合物とを含む前記原料ガスに、レーザを照射して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウム粒子を製造する第１反応工程と、前記第１反応工程の反応生成物に前記有機インジウム化合物を添加して、別のレーザを照射して、ｎ型またはｐ型の窒化ガリウムインジウム粒子を製造する第２反応工程と、を有することを特徴とする請求項４に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項15] 前記原料ガスをキャリアガスとともに上流側から流通させて、前記レーザの照射部で前記反応をさせて得た反応生成物である前記窒化ガリウム系粒子を下流側で回収することを特徴とする請求項１～１４のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項16] 前記第１および第２反応工程で用いられるレーザが、それぞれ別のレーザ放射装置から放射されたレーザであることを特徴とする請求項３～５、１０～１４のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項17] 前記第１および第２反応工程で用いられるレーザが、それぞれ１のレーザ放射装置から放射されたレーザから分岐されたレーザであることを特徴とする請求項３～５、１０～１４のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項18] 前記有機ガリウム化合物がトリメチルガリウムまたはトリエチルガリウムであることを特徴とする請求項１～１４のいずれかに記載の窒

化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項19] 前記有機インジウム化合物がトリメチルインジウムまたはトリエチルインジウムであることを特徴とする請求項２～５、７、９、１０、１２～１４のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項20] 前記窒素源を含むガスがアンモニア、窒素、ヒドラジンのいずれかであることを特徴とする請求項１～１４のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項21] 前記ｎ型ドーパントとなる元素がシリコンまたはゲルマニウムであることを特徴とする請求項２～５、８、９、１１～１４のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項22] 前記ｎ型ドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物を含むガスがモノシラン、ジシラン、ゲルマンガス、テトラメチルゲルマニウム、テトラエチルゲルマニウムのいずれかであることを特徴とする請求項２１に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項23] 前記ｐ型ドーパントとなる元素がマグネシウムであることを特徴とする請求項２～５、８、９、１１～１４のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項24] 前記ｐ型ドーパントとなる元素を含むドーパント源化合物を含むガスがビスシクロペンタジエニルマグネシウムまたはビスエチルシクロペンタジエニルマグネシウムであることを特徴とする請求項２３に記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法。

[請求項25] 請求項１～２４のいずれかに記載の窒化ガリウム系粒子の製造方法に用いる窒化ガリウム系粒子の製造装置であって、

少なくとも前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを含む前記原料ガスを流通させるガス流通管と、前記原料ガスを前記ガス流通管に導入するガス導入管と、前記有機ガリウム化合物と前記窒素源とを反応させて製造した窒化ガリウム系粒子を前記ガス流通管から排出するガス排出管と、が備えられており、

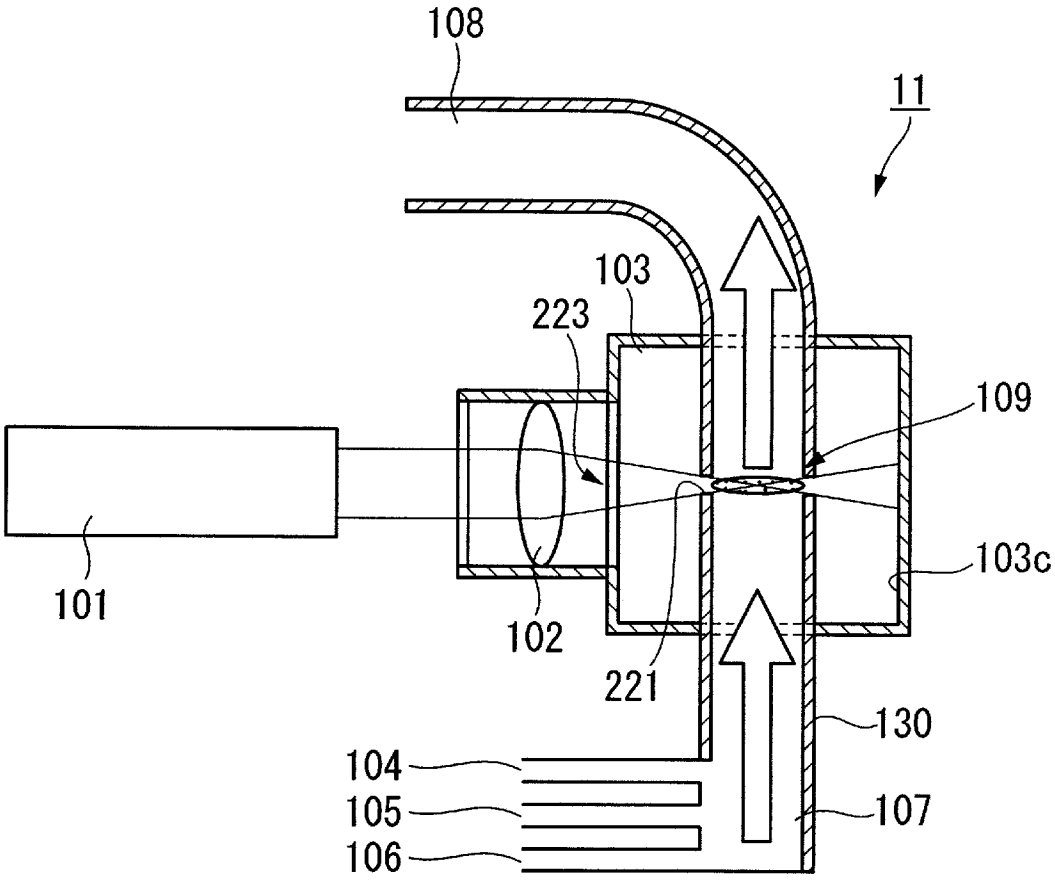
前記ガス流通管を流通させる前記原料ガスにレーザを照射するように、前記ガス流通管の外部にレーザ放射装置が配置されていることを特徴とする窒化ガリウム系粒子の製造装置。

[請求項26] 前記ガス流通管の内部の２箇所にレーザが照射されるように、前記レーザ放射装置が２台配置されていることを特徴とする請求項２５に記載の窒化ガリウム系粒子の製造装置。

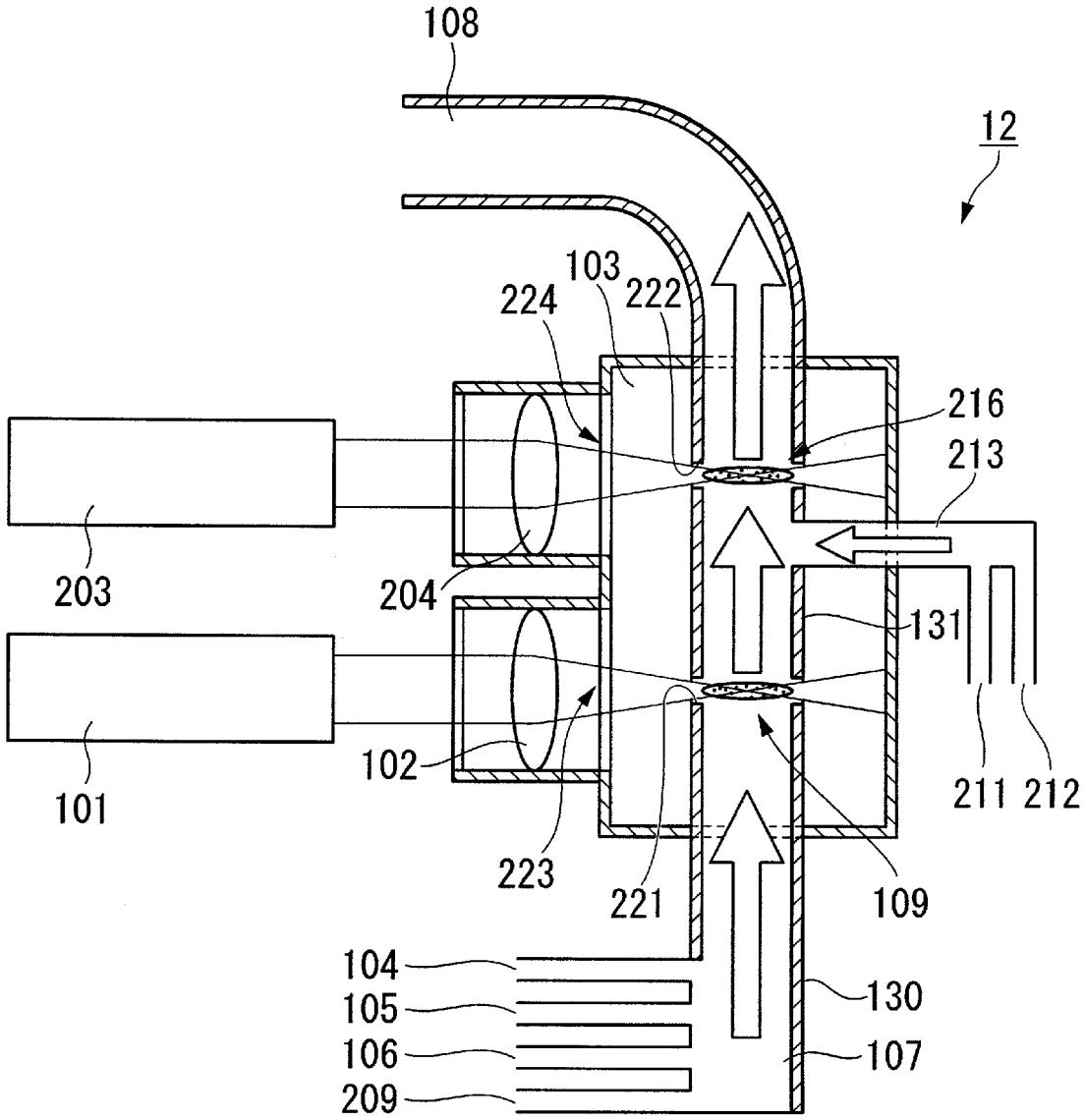
[請求項27] 前記ガス流通管の内部の２箇所にレーザが照射されるように、前記レーザ放射装置から放射されたレーザが２方向に分岐されるようにレーザビームスプリッターが配置されていることを特徴とする請求項２５に記載の窒化ガリウム系粒子の製造装置。

[請求項28] 請求項１～２４のいずれかに記載の製造方法により製造された窒化ガリウム系粒子であって、平均粒径が１～１００ｎｍであることを特徴とする窒化ガリウム系粒子。

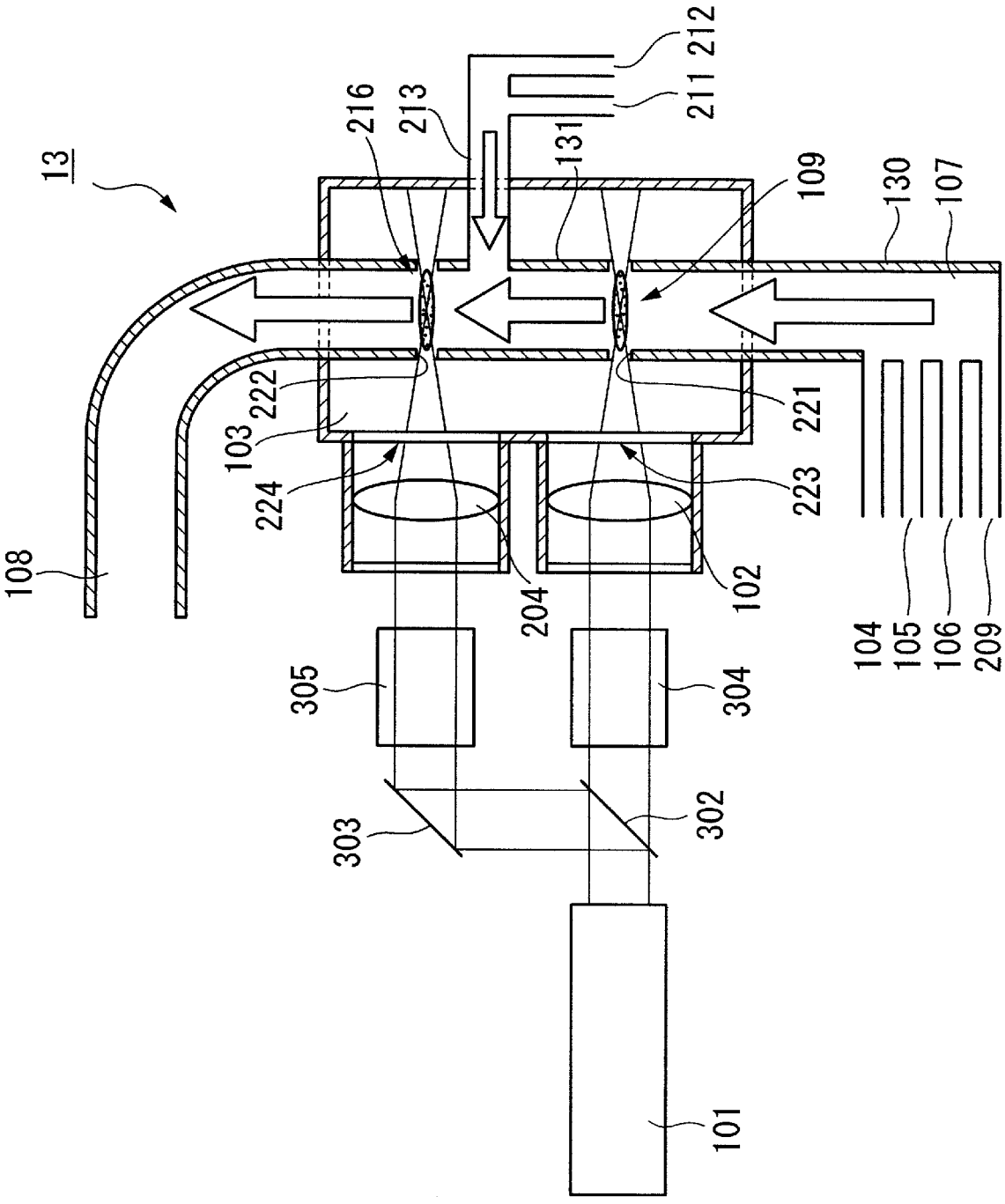
[図1]



[図2]


108
12
103
224
222
216
213
203
204
131
102
101
211
212
223
221
109
104
105
106
209
130
107

[図3]


13
212
211
216
213
131
109
130
107
222
221
103
224
223
108
204
102
104
105
106
209
305
304
303
302
101

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/062470

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C01B21/06(2006.01)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)
C01B21/00-21/50, C01G15/00-17/04

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)
JSTPlus(JDreamII), JST7580(JDreamII)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	Timonhy J.GOODWIN et al., "Synthesis of gallium nitride quantum dots through reactive laser ablation", Applied Physics Letters, 1997, Vol.70, No.23, p.3122-3124	28 1-27
X A	Valerie J.LEPPERT et al., "Observation of quantum confined excited states of GaN nanocrystals", Applied Physics Letters, 1998, Vol.72, No.23, p.3035-3037	28 1-27
X A	JP 2004-224674 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 12 August, 2004 (12.08.04), Claims 1, 4, 6; Par. Nos. [0015], [0016]; examples 1 to 16; table 2 (Family: none)	28 1-27

☒ 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 19 August, 2009 (19.08.09)	Date of mailing of the international search report 01 September, 2009 (01.09.09)
Name and mailing address of the ISA/ Japanese Patent Office Facsimile No.	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2009/062470

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X A	P 2004-224675 A (Fuji Photo Film Co., Ltd.), 12 August, 2004 (12.08.04), Par. Nos. [0016] to [0018]; examples 1 to 16; table 2 (Family: none)	28 1-27
X A	JP 2007-153662 A (Fujifilm Corp.), 21 June, 2007 (21.06.07), Par. No. [0018]; example 3 (Family: none)	28 1-27
A	JP 2005-529484 A (Macquarie University), 29 September, 2005 (29.09.05), & US 2006/0174815 A1 & US 2008/0282978 A1 & WO 2003/097532 A1	1-28
A	JP 2007-173745 A (Showa Denko Kabushiki Kaisha), 05 July, 2007 (05.07.07), (Family: none)	1-28
A	JP 2004-284876 A (The Circle for the promotion of science and engineering), 14 October, 2004 (14.10.04), (Family: none)	1-28

国際調査報告

国際出願番号　ＰＣＴ／ＪＰ２００９／０６２４７０

Ａ．　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

Int.Cl.　C01B21/06(2006.01)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.　C01B21/00-21/50, C01G15/00-17/04

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	１９７１－２００９年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２００９年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２００９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）

JSTPlus(JDreamII), JST7580(JDreamII)

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 A	Timonhy J.GOODWIN et al., "Synthesis of gallium nitride quantum dots through reactive laser ablation", Applied Physics Letters, 1997, Vol.70, No.23, p.3122-3124	28 1-27
X A	Valerie J.LEPPERT et al., "Observation of quantum confined excited states of GaN nanocrystals", Applied Physics Letters, 1998, Vol.72, No.23, p.3035-3037	28 1-27

☑　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、一般的技術水準を示すもの

「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

「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 １９．０８．２００９	国際調査報告の発送日 ０１．０９．２００９
国際調査機関の名称及びあて先 日本国特許庁（ＩＳＡ／ＪＰ） 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）　４Ｇ　３８３６ 廣野　知子 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
X A	JP 2004-224674 A (富士写真フイルム株式会社) 2004.08.12, 請求項 1,4,6, 段落【0015】, 【0016】, 実施例 1-16, 表 2 (ファミリーなし)	28 1-27
X A	JP 2004-224675 A (富士写真フイルム株式会社) 2004.08.12, 段落【0016】-【0018】, 実施例 1-16, 表 2 (ファミリーなし)	28 1-27
X A	JP 2007-153662 A (富士フイルム株式会社) 2007.06.21, 段落【0018】, 実施例 3 (ファミリーなし)	28 1-27
A	JP 2005-529484 A (マッコーリー　ユニバーシティ) 2005.09.29, & US 2006/0174815 A1 & US 2008/0282978 A1 & WO 2003/097532 A1	1-28
A	JP 2007-173745 A (昭和電工株式会社) 2007.07.05, (ファミリーなし)	1-28
A	JP 2004-284876 A (財団法人理工学振興会) 2004.10.14, (ファミリーなし)	1-28