

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局(43) 国際公開日
2006 年 6 月 1 日 (01.06.2006)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2006/057422 A1(51) 国際特許分類:
H01L 21/205 (2006.01) H01L 33/00 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2005/021936

(22) 国際出願日: 2005 年 11 月 22 日 (22.11.2005)

(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 2004-338627
2004 年 11 月 24 日 (24.11.2004) JP

(71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 住友化学株式会社 (SUMITOMO CHEMICAL COMPANY, LIMITED) [JP/JP]; 〒1048260 東京都中央区新川二丁目 2 番 1 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): 上田 和正 (UEDA, Kazumasa) [JP/JP]; 〒3000836 茨城県土浦市烏山 1-393-271-203 Ibaraki (JP). 西川直宏 (NISHIKAWA, Naohiro) [JP/JP]; 〒3050821 茨城県つくば市春日 2-40-1-406 Ibaraki (JP).

(74) 代理人: 榎本 雅之, 外 (ENOMOTO, Masayuki et al.); 〒5418550 大阪府大阪市中央区北浜四丁目 5 番 3 3 号 住友化学知的財産センター株式会社内 Osaka (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, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.

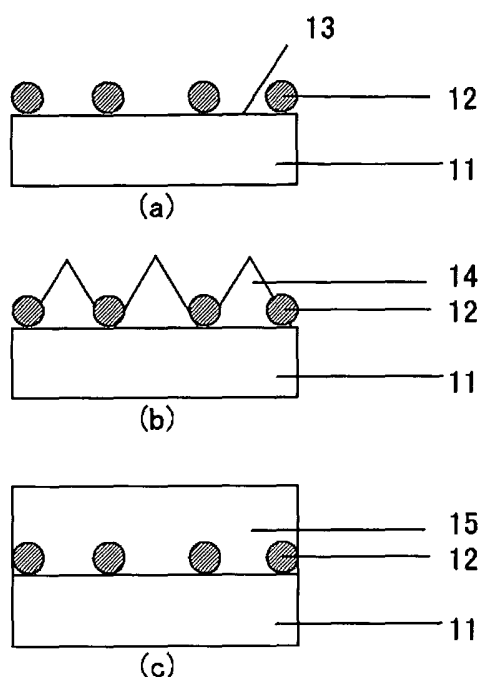
(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:
— 国際調査報告書

2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: SEMICONDUCTOR MULTILAYER SUBSTRATE, METHOD FOR PRODUCING SAME AND LIGHT-EMITTING DEVICE

(54) 発明の名称: 半導体積層基板、その製造方法及び発光素子



(57) Abstract: Disclosed are a semiconductor multilayer substrate, a method for producing the same and a light-emitting device. Specifically disclosed is a semiconductor multilayer substrate which comprises a semiconductor layer containing particles of an inorganic substance (such as silica, alumina, zirconia, titania, ceria, magnesia, zinc oxide, tin oxide and yttrium aluminum garnet) other than metal nitrides. A method for producing such a semiconductor multilayer substrate comprises a step (a) for arranging inorganic particles other than metal nitrides on a substrate, and a step (b) for growing a semiconductor layer. A light-emitting device comprises such a semiconductor multilayer substrate.

(57) 要約: 本発明は半導体積層基板、その製造方法及び発光素子を提供する。金属窒化物を除く無機粒子（シリカ、アルミナ、ジルコニア、チタニア、セリア、マグネシア、酸化亜鉛、酸化スズ、イットリウムアルミニウムガーネット等）を含む半導体層を含む半導体積層基板。半導体積層基板の製造方法は次の工程(a)及び(b)を含む。(a) 基板上に、金属窒化物を除く無機粒子を配置する工程、(b) 半導体層を成長させる工程。発光素子は前記の半導体積層基板を含む。

明細書

半導体積層基板、その製造方法及び発光素子

5

技術分野

本発明は、高い輝度を示す半導体発光素子として使用される半導体積層基板、その製造方法及び発光素子に関する。

背景技術

10 半導体積層基板は、各種表示装置の部品である、窒化物半導体発光素子、高分子LED、低分子有機LEDのような半導体発光素子として用いられている。

例えば、式 $\text{In}_x \text{Ga}_y \text{Al}_z \text{N}$ ($0 \leq x \leq 1$ 、 $0 \leq y \leq 1$ 、 $0 \leq z \leq 1$ 、 $x + y + z = 1$) で示される窒化物半導体層を有する窒化物半導体積層基板が、紫外、青色、緑色の発光ダイオード素子、又は紫外、青色、緑色のレーザダイオード素子のような半導体発光素子として用いられており、これらの半導体発光素子は、表示装置の性能向上の観点から、高い輝度が求められている。

15

発明の開示

本発明の目的は、高い輝度を示す発光素子として用いられる半導体積層基板を提供することにある。

20

本発明者らは、半導体積層基板について鋭意検討した結果、本発明を完成させるに至った。

すなわち本発明は、金属窒化物以外の無機粒子を含む半導体層を含む半導体積層基板を提供する。

25 また、本発明は、次の工程 (a) 及び (b) を含む半導体積層基板の製造方法を提供

する。

(a) 基板上に、金属窒化物を除く無機粒子を配置する工程、

(b) 半導体層を成長させる工程。

さらに、本発明は、前記の半導体積層基板を含む発光素子を提供する。

5

図面の簡単な説明

図1は、窒化物半導体積層基板の製造方法を説明する工程概略図である。

図2は、低温バッファ層及びファセット形成層を含む半導体積層基板を示す。

図3は、半導体積層基板の断面の電子顕微鏡写真である。

10 図4は、低温バッファ層のA1組成とX線回折ロッキングカーブ測定における(302)面のピークの半値幅の関係を示す。

符号の説明

11 基板

12 無機粒子

15 13 窒化物半導体を成長させる成長領域

14 窒化物半導体のファセット構造

15 エピタキシャル成長した窒化物半導体層

21 基板

22 低温バッファ層

20 23 無機粒子

24 ファセット構造

25 半導体層

発明を実施するための形態

25 **〔半導体積層基板〕**

本発明の半導体積層基板は、半導体層を含み、通常、基板、半導体層を含む。

[半導体層]

半導体層は、例えば、金属窒化物、高分子有機化合物、低分子有機化合物である。半導体層が金属窒化物であるとき、半導体積層基板は、窒化物半導体発光素子として使用される。また、半導体層が高分子有機化合物、低分子有機化合物であるとき、半導体積層基板は、それぞれ、高分子有機LED、低分子有機LEDとして使用される。半導体層の組成は、半導体積層素子を切断し、断面をSEM-EDXにより分析することにより求めればよい。

半導体層は、好ましくは金属窒化物であり、例えば、 $\text{In}_x\text{Ga}_y\text{Al}_z\text{N}$ ($0 \leq x \leq 1$ 、 $0 \leq y \leq 1$ 、 $0 \leq z \leq 1$ 、 $x + y + z = 1$) である。半導体層は、例えば、n型伝導層（n型コンタクト層、n型クラッド層等）、発光層、p型伝導層（p型コンタクト層、p型クラッド層等）のような、窒化物半導体発光素子の動作に必要な層を含んでもよい。

また、半導体層は、例えば、窒化物半導体発光素子の動作に必要な層を高品質の結晶にするための、単層あるいは多層（厚膜層、超格子薄膜層等）、又は、バッファ層を含んでもよい。

半導体層は、金属窒化物以外の無機粒子を含む。この半導体層は、発光層と基板の間に存在してもよく、また基板に対して発光層と対向する側に存在してもよい。この半導体層は発光層と基板の間に存在することが好ましく、発光層と基板の間に存在し、かつ基板に接することがさらに好ましい。

また、半導体層は、X線回折ロッキングカーブ測定による（302）面の回折ピークの半値幅FWHMが 650 arc sec 以下であることが好ましい。

[無機粒子]

無機粒子は、例えば、酸化物、窒化物、炭化物、硼化物、硫化物、セレン化物及び金属を含む。これらの含有量は、無機粒子に対して、通常50重量%以上、好ましくは90%以上、より好ましくは95%以上である。半導体層中の無機粒子の組成は、半導体積層素子を切断し、断面をSEM-EDXにより分析することにより求められればよい。

酸化物は、例えば、シリカ、アルミナ、ジルコニア、チタニア、セリア、酸化亜鉛、酸化スズ及びイットリウムアルミニウムガーネット(YAG)である。

窒化物としては、例えば、窒化珪素、窒化硼素である。

炭化物は、例えば、炭化珪素(SiC)、炭化硼素、ダイヤモンド、グラファイト、フラーレン類である。

硼化物は、例えば、硼化ジルコニウム(ZrB_2)、硼化クロム(CrB_2)である。

硫化物は、例えば硫化亜鉛、硫化カドミウム、硫化カルシウム、硫化ストロンチウムである。

セレン化物は、例えば、セレン化亜鉛、セレン化カドミウムである。

酸化物、窒化物、炭化物、硼化物、硫化物、セレン化物は、それに含まれる元素が他元素で部分的に置換されていてもよく、これらの例として、付活剤としてセリウムやユーロピウムを含む、珪酸塩やアルミン酸塩の蛍光体が挙げられる。

金属としては、珪素(Si)、ニッケル(Ni)、タングステン(W)、タンタル(Ta)、クロム(Cr)、チタン(Ti)、マグネシウム(Mg)、カルシウム(Ca)、アルミニウム(Al)、金(Au)、銀(Ag)、亜鉛(Zn)が挙げられる。

無機粒子は、単独で用いてもよく、これらを組合せて用いてもよい。組合せの例としては、窒化物の粒子上に酸化物を有する無機粒子が挙げられる。

これらの中でも、無機粒子は好ましくは酸化物であり、より好ましくはシリカ

である。

無機粒子は、半導体層の成長におけるマスク材料を含むことが好ましく、その表面にマスク材料を有することがさらに好ましい。無機粒子の表面にマスク材料が存在する場合、マスク材料は、無機粒子の表面の30%以上覆うことが好ましく、50%以上を覆うことがより好ましい。マスク材料は、例えば、シリカ、ジルコニア、チタニア、窒化珪素、窒化硼素、タングステン(W)、モリブデン(Mo)、クロム(Cr)、コバルト(Co)、珪素(Si)、アルミニウム(Au)、ジルコニウム(Zr)、タンタル(Ta)、チタン(Ti)、ニオブ(Nb)、ニッケル(Ni)、白金(Pt)、バナジウム(V)、ハフニウム(Hf)、パラジウム(Pd)であり、好ましくはシリカである。これらは単独、又は組合せて用いてもよい。無機粒子のマスク材料の組成は、半導体積層素子を切断し、無機粒子について、断面をSEM-EDXにより分析することに求めればよい。

無機粒子は、形状が球状(例えば、断面が円、楕円であるもの)、板状(例えば、長さLと厚さTのアスペクト比 L/T が1.5~100であるもの)、針状(例えば、幅Wと長さLの比 L/W が1.5~100であるもの。)又は不定形(様々な形状の粒子を含み、全体として形状が不揃いのもの。)であってもよく、好ましくは球状である。また、無機粒子は、平均粒径が通常5nm以上、好ましくは10nm以上、さらに好ましくは0.1 μ m以上であり、また通常50 μ m以下、好ましくは10 μ m以下、さらに好ましくは1 μ m以下である。平均粒径が前記範囲である無機粒子を含むと、高輝度を示す発光素子となる半導体層積層基板が得られる。無機粒子の形状及び平均粒径は、半導体積層素子を切断し、無機粒子について、断面の電子顕微鏡写真から求めればよい。

また無機粒子は、半導体層積層基板を含む発光素子の発光波長を λ (nm)と

し、無機粒子の平均粒径を d (nm) としたとき、 d/λ が通常 0.01 以上、好ましくは 0.02 以上、より好ましくは 0.2 以上であり、また通常 100 以下、好ましくは 30 以下、より好ましくは 3.0 以下である。

- 5 半導体層が窒化物の場合、例えば、半導体積層基板が、特開平 6-260682 号公報、特開平 7-15041 号公報、特開平 9-64419 号公報、特開平 9-36430 号公報記載のように、基板、バッファ層 (GaN、AlN 等)、
n 型伝導層 (n-GaN、n-AlGaIn のような、n 型コンタクト層、n 型クラッド層)、発光層 (InGaIn、GaN 等)、p 型伝導層 (p-GaN、p-
10 AlGaIn のような、p 型コンタクト層、p 型クラッド層) が、この順で有するとき、無機粒子は、上記いずれの層に含まれてもよいが、基板の上に存在することが好ましい。

[基板]

- 15 基板は、例えば、サファイア、SiC、Si、 $MgAl_2O_4$ 、 $LiTaO_3$ 、 ZrB_2 、 CrB_2 、窒化ガリウム、及びこの上に窒化物半導体を成長させた複合体である。

- 複合体は、例えば、基板と、その上に低温バッファ層を含む。低温バッファ層は、例えば、式： $Al_aGa_{1-a}N$ [a は通常 0 以上、1 以下、好ましくは 0.5
20 以下である。] で表される。

さらに、複合体は、低温バッファ層の上に InGaAlN 層を含むものであってもよい。

- サファイア、SiC、Si、 $MgAl_2O_4$ 、 $LiTaO_3$ 、 ZrB_2 、 CrB_2 、窒化ガリウムのような基板を含む半導体積層基板では、基板上に無機粒子が配置
25 されていることから、基板と半導体層の接合面積が少なく、無機粒子が配置され

ていない半導体積層基板に比較して、半導体層から基板を剥離しやすい。剥離は、例えば、レーザーや超音波を用いて行われる。基板を剥離する場合、剥離前に、半導体層に導電性基板又は高熱伝導性基板を接着してもよい。また、半導体積層基板は、発光素子として機能させるため、適切な大きさに切断してから使用し

5 てもよい。

〔発光素子〕

本発明の発光素子は、前記の半導体積層基板と電極を含む。電極は、発光層に電流を供給するものであり、例えば、Au、Pt、Pdのような金属、又はITOである。

10 Oである。

半導体層が金属窒化物である発光素子では、n型伝導層（n型コンタクト層、n型クラッド層等）、発光層、p型伝導層（p型コンタクト層、p型クラッド層等）のような、窒化物半導体発光素子の動作に必要な層を含む。これらの層は、

15 例えば、 $\text{In}_x\text{Ga}_y\text{Al}_z\text{N}$ （ $0 \leq x \leq 1$ 、 $0 \leq y \leq 1$ 、 $0 \leq z \leq 1$ 、 $x + y + z = 1$ ）である。発光素子は、さらに、窒化物半導体発光素子の動作に必要な層を高品質の結晶にするための、単層あるいは多層（厚膜層、超格子薄膜層等）、又は、バッファ層を含んでもよい。このような半導体層が金属窒化物である発光素子は、例えば、Appl. Phys. Lett. Vol.60, p.1403, 1996記載の方法により製造

20 すればよい。

半導体層が高分子有機化合物である発光素子では、半導体層は電子輸送層、正孔輸送層のいずれかとして使用される。発光素子は、半導体積層基板、電極及び発光層を含み、例えば、基板、陽極、正孔輸送層、発光層、電子輸送層、陰極を

25 この順で含み、さらに電極を含む。

基板は、通常、ガラスである。陽極は、例えば、ITOである。正孔輸送層は、ポリビニルカルバゾールもしくはその誘導体、ポリシランもしくはその誘導体、側鎖もしくは主鎖に芳香族アミン化合物基を有するポリシロキサン誘導体、ポリアニリンもしくはその誘導体、ポリチオフェンもしくはその誘導体である。発
5 光層は、例えばポリ(p-フェニレンビニレン)、ポリフルオレン(Jpn. J. App
l. Phys. Vol.30, L1941, 1999)、ポリパラフェニレン誘導体(Adv Mater. Vol.
4, p.36, 1992)、イリジウムを中心金属とする3重項発光錯体Ir(ppy)₃
(Appl. Phys. Lett. Vol.75, p.4, 1999)である。電子輸送層は、オキサジアゾ
ール誘導体、アントラキノジメタンもしくはその誘導体、ベンゾキノンもしくは
10 その誘導体などである。陰極は、仕事関数の小さい材料が好ましく、例えば、リ
チウム、ナトリウム、カリウム、ルビジウム、セシウム、ベリリウム、マグネシ
ウム、カルシウム、ストロンチウム、バリウム、アルミニウムである。電極は、
発光層に電流を供給するものであればよい。半導体層が高分子有機化合物である
発光素子は、例えば、Nature Vol.347, p.539, 1990記載の方法により製造すれば
15 よい。

〔半導体積層基板の製造方法〕

本発明の半導体積層基板の製造方法は、基板上、金属窒化物を除く無機粒子を
配置する工程(a)を含む。

20

基板は、サファイア、SiC、Si、MgAl₂O₄、LiTaO₃、ZrB₂、
CrB₂、窒化ガリウム、及びこの上に窒化物半導体を成長させた複合体である。

複合体は、例えば、基板の上に低温バッファ層を成長させたものである。低温
バッファ層は、例えば、400℃～700℃の温度範囲で成長させればよい。低
25 温バッファ層を成長させる場合、低温バッファ層は1層でも2層以上あってもよ

い。

さらに、複合体は、低温バッファ層の上に InGaAlN 層を成長させたものであってもよい。

- 5 無機粒子は、例えば、酸化物、窒化物、炭化物、硼化物、硫化物、セレン化物及び金属を含む。これらの含有量は、無機粒子に対して、通常 50 重量%以上、好ましくは 90 % 以上、より好ましくは 95 % 以上である。無機粒子の組成は、化学分析、発光分析等により求められればよい。

- 酸化物は、例えば、シリカ、アルミナ、ジルコニア、チタニア、セリア、酸化
10 亜鉛、酸化スズ及びイットリウムアルミニウムガーネット (YAG) である。

窒化物としては、例えば、窒化珪素、窒化硼素である。

炭化物は、例えば、炭化珪素 (SiC)、炭化硼素、ダイヤモンド、グラファイト、フラーレン類である。

- 硼化物は、例えば、硼化ジルコニウム (ZrB_2)、硼化クロム (CrB_2) で
15 ある。

硫化物は、例えば硫化亜鉛、硫化カドミウム、硫化カルシウム、硫化ストロンチウムである。

セレン化物は、例えば、セレン化亜鉛、セレン化カドミウムである。

- 酸化物、窒化物、炭化物、硼化物、硫化物、セレン化物は、それに含まれる元素
20 が他元素で部分的に置換されていてもよく、これらの例として、付活剤としてセリウムやユーロピウムを含む、珪酸塩やアルミン酸塩の蛍光体が挙げられる。

- 金属としては、珪素 (Si)、ニッケル (Ni)、タングステン (W)、タンタル (Ta)、クロム (Cr)、チタン (Ti)、マグネシウム (Mg)、カルシウム (Ca)、アルミニウム (Al)、金 (Au)、銀 (Ag)、亜鉛 (Zn)
25) が挙げられる。

無機粒子は、加熱処理したとき、前記の酸化物、窒化物、炭化物、硼化物、硫化物、セレン化物、金属となる材料であってもよく、例えば、シリコンであってもよい。シリコンは $\text{Si}-\text{O}-\text{Si}$ の無機性結合を主骨格として持ち、 Si に有機置換基を有する構造のポリマーであり、約 500°C に加熱処理すると、シリカとなる。

無機粒子は、単独で用いてもよく、これらを組合せて用いてもよい。組合せの例としては、窒化物の粒子上に酸化物を有する無機粒子が挙げられる。

これらの中でも、無機粒子は好ましくは酸化物であり、より好ましくはシリカである。

10

無機粒子は、半導体層の成長におけるマスク材料を含むことが好ましく、その表面にマスク材料を有することがさらに好ましい。無機粒子の表面にマスク材料が存在する場合、マスク材料は、無機粒子の表面の 30% 以上覆うことが好ましく、 50% 以上を覆うことがより好ましい。マスク材料は、例えば、シリカ、ジルコニア、チタニア、窒化珪素、窒化硼素、タングステン (W)、モリブデン (Mo)、クロム (Cr)、コバルト (Co)、珪素 (Si)、アルミニウム (Al)、ジルコニウム (Zr)、タンタル (Ta)、チタン (Ti)、ニオブ (Nb)、ニッケル (Ni)、白金 (Pt)、バナジウム (V)、ハフニウム (Hf)、パラジウム (Pd) であり、好ましくはシリカである。これらは単独、又は組合せて用いてもよい。表面にマスク材料を有する無機粒子は、例えば、粒子表面にマスク材料を蒸着やスパッタにより覆ったり、粒子表面に化合物を加水分解させるなどの方法により調製すればよい。

無機粒子は、形状が球状（例えば、断面が円、楕円であるもの）、板状（長さ L と厚さ T のアスペクト比 L/T が $1.5 \sim 100$ であるもの。）、針状（例え

ば、幅Wと長さLの比 L/W が1.5～100であるもの。)又は不定形(様々な形状の粒子を含み、全体として形状が不揃いのもの。)であってもよく、好ましくは球状である。従って、無機粒子は球状シリカであることがより好ましい。球状シリカとしては、単分散で、比較的粒径が揃ったものが容易に入手できる観点から、コロイダルシリカの使用が推奨される。コロイダルシリカは、シリカ粒子が溶媒(水等)にコロイド状に分散したものであり、珪酸ナトリウムをイオン交換する方法、テトラエチルオルソシリケート(TEOS)のような有機珪素化合物を加水分解する方法により得られる。また、無機粒子は、平均粒径が通常5 nm以上、好ましくは10 nm以上、さらに好ましくは0.1 μ m以上であり、
5 また通常50 μ m以下、好ましくは10 μ m以下、さらに好ましくは1 μ m以下である。平均粒径が前記範囲である無機粒子を含むと、高輝度を示す発光素子となる半導体層積層基板が得られる。

また無機粒子は、半導体層積層基板を含む発光素子の発光波長を λ (nm)とし、無機粒子の平均粒径を d (nm)としたとき、 d/λ が通常0.01以上、
15 好ましくは0.02以上、より好ましくは0.2以上であり、また通常100以下、好ましくは30以下、より好ましくは3.0以下である。

平均粒径は、遠心沈降法により測定した体積平均粒径である。平均粒径は、遠心沈降法以外の測定法、例えば、動的光散乱法、コールターカウンター法、レーザー回折法、電子顕微鏡により測定してもよいが、その場合には、較正して、遠心沈降法により測定した体積平均粒径に換算すればよい。例えば、標準となる粒子の平均粒径を、遠心沈降法及び他の粒度測定法で求め、これらの相関係数を算出する。相関係数は、粒径の異なる複数の標準粒子について、遠心沈降法により測定した体積平均粒径に対する相関係数を算出して較正曲線を作成することにより求めることが好ましい。較正曲線を使えば、遠心沈降法以外の測定法で得られた平均粒径から、体積平均粒径が求められる。
25

無機粒子の配置は、例えば、無機粒子と媒体を含むスラリー中へ基板を浸漬する方法、又は、スラリーを基板に塗布や噴霧した後、乾燥する方法で行えばよい。媒体は、水、メタノール、エタノール、イソプロパノール、n-ブタノール、エチレングリコール、ジメチルアセトアミド、メチルエチルケトン、メチルイソブチルケトン等であり、好ましくは水である。塗布は、スピコートにより行うことが好ましく、この方法によれば、無機粒子の配置密度を均一にできる。乾燥は、スピナーを用いて行ってもよい。

無機粒子の基板に対する被覆率は、走査型電子顕微鏡（SEM）で無機粒子を配置した基板表面を上から観察したときの測定視野内（面積S）における粒子数Pと、粒子の平均粒径dにより、次式で求めればよい。

$$\text{被覆率 (\%)} = ((d/2)^2 \times \pi \cdot P \cdot 100) / S$$

無機粒子の基板に対する被覆率は、通常0.1%以上、好ましくは5%以上、さらに好ましくは30%以上であり、通常90%以下、好ましくは80%以下、さらに好ましくは80%以下である。

無機粒子は、基板上で2層以上に配置されていてもよいが、1層に配置されていること、例えば、無機粒子の90%以上が1層に配置されることが好ましい。1層である場合、半導体層がエピタキシャル成長して、平坦化が進行する。図1の(a)に、基板上に無機粒子が配置された構造の断面図を示す。

20

本発明の製造方法は、さらに、工程(a)で得られたものの上に、半導体層を成長させる工程(b)を含む。

半導体層としては、例えば、金属窒化物が挙げられ、好ましくは $\text{In}_x\text{Ga}_y\text{Al}_{1-x-y}\text{N}$ (ただし、 $0 \leq x \leq 1$ 、 $0 \leq y \leq 1$ 、 $0 \leq z \leq 1$ 、 $x + y + z = 1$) で示さ

25

れる 3-5 族窒化物である。また、半導体層は 1 層でも 2 層以上あってもよい。

さらに、半導体層は、ファセット構造を形成するもの、又は、形成しないものいずれでもよいが、無機粒子の被覆率が高い場合、ファセット構造を形成するものが好ましい。ファセット構造を形成する半導体層は、平坦化しやすい。

- 5 ファセット構造を形成しながら半導体層を成長させる場合において、3-5 族窒化物半導体層の好ましい組成は、無機粒子の粒径、及び配置状態に依存するが、無機粒子の被覆率が高い場合、通常、高い Al 組成であることが好ましい。しかし、埋め込み層が GaN 層、又はファセット構造の Al 組成に比べて低い Al 組成を有する AlGaIn 層である場合、3-5 族窒化物半導体層の Al 組成があまり高くなると、埋め込み層とファセット構造の間に生じる格子不整合が大きくなり、基板にクラックや転位を生じることがある。

- ファセット構造の Al 組成は、クラックのない結晶品質にすぐれた結晶を得る観点から、無機粒子の粒径、配置状態に応じて調整してもよく、例えば、無機粒子の被覆率が 50% 以上の場合、式： $Al_dGa_{1-d}N$ ($0 < d < 1$) で表される
- 15 ファセット構造を成長させることが好ましく、 $Al_dGa_{1-d}N$ ($0.01 \leq d \leq 0.5$) (AlN 混晶比が 1.0% 以上、50% 以下である。) で表されるファセット構造を成長させることがより好ましい。

- ファセット成長温度は、通常 700℃ 以上、好ましくは 750℃ 以上であり、また通常 1000℃ 以下、好ましくは 950℃ 以下である。低温バッファ層が成長される場合、ファセット構造の成長温度は、低温バッファ層の成長温度と埋め込み層の成長温度の間であることが好ましい。ファセット層は 1 層でも 2 層以上であってもよい。図 2 に、低温バッファ層を含む半導体積層基板の例として、基板 21、低温バッファ層 22、ファセット構造 24、半導体層 25 を含み、かつ無機粒子 23 は基板 21 の上に存在する、半導体積層基板を示す。

- 25 低温バッファ層がある場合、半導体層（例えば、窒化物半導体層）の結晶核が

形成されやすくなり、結晶品質の高い半導体層（例えば、X線回折ロッキングカーブ測定における（302）面の回折ピークの半値幅FWHMが650 arc sec以下、好ましくは550 arc sec以下の半導体層。）が成長する。低温バッファ層は、例えば、式： $Al_aGa_{1-a}N$ 〔aは通常0以上、1以下、好ましくは0.5以下である。〕で表される。

X線回折ロッキングカーブ測定法は、膜の結晶配向性を評価する方法であり、試料の特定の結晶面が回折条件を満たすようにX線入射角と検出角を設定し、その状態で試料の角度を変化させたときの回折光強度の角度依存性を測定して、その広がりから結晶方位のばらつきを評価する。一般的に、結晶方位のばらつきはX線回折ロッキングカーブピークの半値幅で表される。サファイア基板C面上に成長する半導体では、一般的に六角柱状結晶が形成されやすく、その結晶の傾きは（002）面、（004）面等のC面と平行な結晶面の回折測定から評価すればよい。またC面内の結晶ねじれはC面から傾いた結晶面の回折測定から評価すればよく、例えば、（102）面、（302）面等の回折ピークを用いればよい。

成長は、例えば、MOVPE、分子線エピタキシー（MBE）、ハイドライド気相成長（HVPE）のようなエピタキシャル成長方法により行えばよい。

3-5族窒化物半導体層をMOVPEにより成長させる場合、次の3族原料と5族原料をキャリアガスにより、反応炉の導入する方法で行えばよい。

3族原料は、例えば、

トリメチルガリウム〔 $(CH_3)_3Ga$ 、以下TMGという。〕、

トリエチルガリウム〔 $(C_2H_5)_3Ga$ 、以下TEGという。〕のような式：

$R_1R_2R_3Ga$

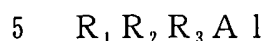
〔 R_1 、 R_2 、 R_3 は、低級アルキル基を示す。〕で表されるトリアルキルガリウム

;

トリメチルアルミニウム $[(CH_3)_3Al]$ 、以下TMAという。]

トリエチルアルミニウム $[(C_2H_5)_3Al]$ 、以下TEAとおい。]

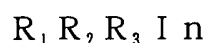
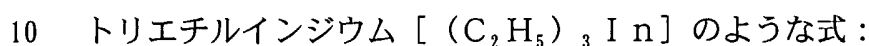
トリイソブチルアルミニウム $[(i-C_4H_9)_3Al]$ のような式:



$[R_1, R_2, R_3]$ は、低級アルキル基を示す。) で表されるトリアルキルアルミニウム;

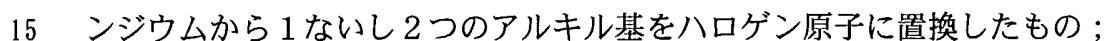
トリメチルアミンアラン $[(CH_3)_3N:AlH_3]$;

トリメチルインジウム $[(CH_3)_3In]$ 、以下TMIという。]

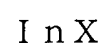


$[R_1, R_2, R_3]$ は、低級アルキル基を示す。) で表されるトリアルキルインジウム;

ジエチルインジウムクロライド $[(C_2H_5)_2InCl]$ のようなトリアルキルイ

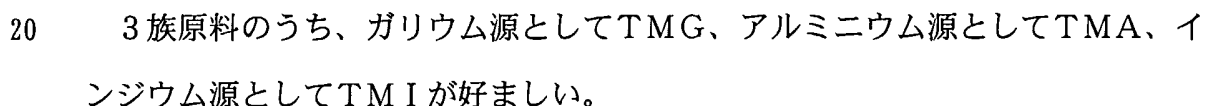


ンジウムから1ないし2つのアルキル基をハロゲン原子に置換したもの;



$[X]$ はハロゲン原子) で表されるハロゲン化インジウム等である。

これらは、単独で用いても組合わせて用いてもよい。



5族原料は、例えば、アンモニア、ヒドラジン、メチルヒドラジン、1, 1-ジメチルヒドラジン、1, 2-ジメチルヒドラジン、t-ブチルアミン、エチレンジアミン等が挙げられる。これらは単独で又は組合わせてもよい。5族原料の

うち、アンモニア、ヒドラジンが好ましく、アンモニアがより好ましい。

成長時の雰囲気ガス及び原料のキャリアガスは、例えば、窒素、水素、アルゴン、ヘリウム、好ましくは水素、ヘリウムが挙げられる。これらは、単独で用い
5 ても組合わせて用いてもよい。

反応炉は、例えば、反応炉、原料を保管容器から反応炉に供給する供給ライン、及び、サセプタを含む。サセプタは、基板を加熱する装置であり、反応炉内に置かれている。またサセプタは、半導体層を均一に成長させるため、通常、動力
10 によって回転する構造となっている。サセプタは、その内部に赤外線ランプのような加熱装置がある。加熱装置により、供給ラインを通じて反応炉に供給される原料が基板上で熱分解し、基板上に半導体層を気相成長させる。反応炉に供給された原料のうち未反応原料は、通常、排気ラインより反応炉から外部に排出され、排ガス処理装置へ送られる。

15

3－5族窒化物半導体層をHVPEにより成長させる場合、次の3族原料と5族原料をキャリアガスにより、前記の反応炉の導入する方法で行えばよい。

3族原料は、例えば、ガリウム金属と塩化水素ガスを高温で反応させることにより生成する塩化ガリウムガス、インジウム金属と塩化水素ガスを高温で反応さ
20 せることにより生成する塩化インジウムガスである。

5族原料は、例えば、アンモニアである。

キャリアガスは、例えば、窒素、水素、アルゴン、ヘリウム、好ましくは水素、ヘリウムである。これらは単独又は組合わせて用いればよい。

25 また、3－5族窒化物半導体層をMBEにより成長させる場合、半導体層の成

長は、次の3族原料と5族原料をキャリアガスにより、前記の反応炉の導入する方法で行えばよい。

3族原料は、例えば、ガリウム、アルミニウム、インジウムのような金属である。

5 5族原料は、例えば、窒素やアンモニアのガスである。

キャリアガスは、例えば、窒素、水素、アルゴン、ヘリウム、好ましくは水素、ヘリウムである。これらは単独、又は組合わせて用いればよい。

本発明の製造方法では、工程(a)及び(b)を繰り返し行ってもよく、また工程(a)
10、(b)及び(c)を繰り返し行ってもよい。繰り返し行うことにより、より高い輝度を示す発光素子として用いられる半導体積層基板が得られる。

工程(b)では、通常、半導体層は、無機粒子の存在しないところを成長領域として成長を開始し(図1(a)の符号13参照)、次いで、ファセット構造が形成される(図1(b)参照)

15

本発明の製造方法は、さらに、工程(b)後に、半導体層を成長させ、その表面を平坦化する工程(c)を含むことが好ましい。

工程(c)では、例えば、横方向成長を促進させることにより、ファセット構造を形成しながら半導体層を成長することで得られた基板のファセット構造を埋め込
20 んで平坦化させる(図1(c)参照)。半導体層をこのように成長させると、ファセットまで到達した転位は横方向に曲げられ、無機粒子は半導体層に埋没する。この結果、半導体層の結晶欠陥が減少する。

半導体層が高分子化合物である半導体積層基板についても、同様に、基板上に
25、無機粒子を配置する工程、その上に半導体層を形成する工程を含む方法により

、製造すればよく、例えば、基板（例えば、ガラス基板）にスパッタ法により陽極（例えば、厚さ100～200nmのITO層）を形成し、陽極上にスピコートにより無機粒子含有ポリ（エチレンジオキシチオフェン）／ポリスチレンスルホン酸溶液（商品名” Baytron” バイエル社製）を塗布、乾燥して正孔輸送層（例えば、厚さ約50nm）を形成した後、スピコートにより高分子発光体のクロロホルム溶液を塗布し、減圧下約80℃で乾燥して発光層（例えば、厚さ約70nm）を形成し、次いで、蒸着により陰極バッファ層（例えば、厚さ0.4nmのフッ化リチウム層）、陰極（例えば、厚さ25nmのカルシウム層）、次いでアルミニウム層（例えば、厚さ40nm）を形成すればよい。

10

実施例

本発明を実施例により説明するが本発明はこれに限定されるものではない。

実施例 1

〔無機粒子の配置〕

15 基板として、C面を鏡面研磨したサファイアを用いた。無機粒子として、コロイダルシリカ（扶桑化学工業(株)製、PL-20（商品名）、平均粒径370nm、粒子濃度24重量%）を用いた。スピナーに基板をセットし、その上に10重量%に希釈したコロイダルシリカを塗布し、スピコーティングした。SEMで観察したところ、コロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は39%であった。

20

〔半導体層の成長〕

窒化物半導体層をエピタキシャル成長させ、コロイダルシリカ粒子を窒化物半導体層に埋没させた。エピタキシャル成長は、常圧MOVPEにより行った。1気圧で、サセプタの温度を485℃、キャリアガスを水素とし、キャリアガス、

25

アンモニア及びTMGを供給して、厚みが約500 ÅのGaN低温バッファ層を成長させた。次に、サセプタの温度を900℃にし、キャリアガス、アンモニア、TMGを供給して、ファセットを形成するためのアンドープGaN層を形成した。次に、サセプタ温度1040℃にして炉圧力を1/4気圧に落とし、キャリアガス、アンモニア及びTMGを供給して厚さ約5 μmのアンドープGaN層を形成して、GaN結晶中にコロイダルシリカ粒子が層状に含有されている窒化物半導体積層基板を得た。窒化物半導体積層基板の断面の電子顕微鏡写真を図3に示す。また、窒化物半導体積層基板の断面透過型電子顕微鏡観察したところ、転位が折れ曲がっていた。

- 10 X線回折ロックアップ測定における(302)面の回折ピークの半値幅は494 arc secであり、(004)面の回折ピークの半値幅は215 arc secであった。

〔発光素子の製造〕

- 15 窒化物半導体積層基板に、n型半導体層、InGaN発光層(MQW構造)、p型半導体層を順に成長させ、n型コンタクト層を露出させるためエッチング加工し、電極を形成し、次いで素子を分離して、発光波長440 nmの青色LEDを得た($d/\lambda = 0.8$)。青色LEDは、通電20 mAでの光出力が8.5 mWであった。

20

実施例2

- 無機粒子として、コロイダルシリカ(日本触媒製、シーホスターKE-W50(商品名)、平均粒径550 nm、粒子濃度20重量%を10重量%に希釈して使用。)を用いた以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕、〔半導体層の成長〕及び〔発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色LEDを得た($d/\lambda = 1.3$)
- 25

）。コロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は36%であった。

X線回折ロックアップ測定における(302)面の回折ピークの半値幅は493 arc secであり、(004)面の回折ピークの半値幅は220 arc secであった。低温バッファ層のAl組成と(302)面のピークの半値幅の
5 関係を図4に示す。

また、青色LEDは、通電20mAでの光出力が9.9mWであった。

実施例3

基板として、C面を鏡面研磨したサファイアの上にGaN層を成長させたもの
10 を用いた以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕、〔半導体層の成長〕及び〔発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色LEDを得た($d/\lambda = 0.8$)。コロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は32%であった。また、青色LEDは、通電20mAでの光出力が7.3mWであった。

15 実施例4

無機粒子として、コロイダルシリカ(日産化学工業製、MP-1040(商品名)、平均粒径100nm、粒子濃度40重量%を10重量%に希釈して使用。
)を用いた以外、実施例1〔無機粒子の配置〕と同じ操作を行った。コロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は55%であった。

20

〔半導体層の成長及び発光素子の製造〕

ファセットを形成を800℃のアンドープAlGaN層(AlN組成1.7%)と900℃のアンドープGaN層の2層構造とした以外、実施例1の〔半導体層の成長〕及び〔発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色LEDを得た($d/\lambda = 0.2$)。
25

青色LEDは、通電20mAでの光出力は、シリカを含有しないものに比較して、2.4倍であった。

実施例5

- 5 無機粒子として、コロイダルシリカ（日産化学工業（株）製、MP-2040（商品名）、平均粒径200nm、粒子濃度40重量%を10重量%に希釈して使用。）を用いた以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕、〔半導体層の成長〕及び〔発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色LEDを得た（ $d/\lambda = 0.5$ ）。コロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は40%であった。青色LED
10 Dは、通電20mAでの光出力は、シリカを含有しないものに比較して、2.2倍であった。

実施例6

- 無機粒子として、コロイダルシリカ（日産化学工業（株）製、MP-2040
15 （商品名）、平均粒径200nm、粒子濃度40重量%を20重量%に希釈して使用。）を用いた以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕と同じ操作を行って。コロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は76%であった。

次いで、実施例4の〔半導体層の成長及び発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色LEDを得た（ $d/\lambda = 0.5$ ）。

- 20 青色LEDは、通電20mAでの光出力は、シリカを含有しないものに比較して、2.7倍であった。

実施例7

- 無機粒子として、コロイダルシリカ（日産化学工業（株）製、MP-3040
25 （商品名）、平均粒径300nm、粒子濃度40重量%を20重量%に希釈して

使用。)を用いた以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕と同じ操作を行った。コロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は37%であった。

次いで、実施例4の〔半導体層の成長及び発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色LEDを得た($d/\lambda = 0.7$)。

- 5 青色LEDは、通電20mAでの光出力は、シリカを含有しないものに比較して、3.5倍であった。

実施例8

- 無機粒子として、コロイダルシリカ(日産化学工業(株)製、MP-3040
10 (商品名)、平均粒径300nm、粒子濃度40重量%を30重量%に希釈して使用。)を用いた以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕と同じ操作を行った。コロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は71%であった。

次いで、実施例4の〔半導体層の成長及び発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色LEDを得た($d/\lambda = 0.7$)。

- 15 青色LEDは、通電20mAでの光出力は、シリカを含有しないものに比較して、3.3倍であった。

実施例9

- 無機粒子として、コロイダルシリカ(日産化学工業(株)製、MP-4540
20 (商品名)、平均粒径450nm、粒子濃度40重量%を20重量%に希釈して使用。)を用いた以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕と同じ操作を行った。コロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は30%であった。

次いで、実施例4の〔半導体層の成長及び発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色LEDを得た($d/\lambda = 1.0$)。

- 25 青色LEDは、通電20mAでの光出力は、シリカを含有しないものに比較し

て、3.0倍であった。

実施例 10

無機粒子として、コロイダルシリカ（日産化学工業（株）製、MP-4540
5 （商品名）、平均粒径450 nm、粒子濃度40重量%を30重量%に希釈して
使用。）を用いた以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕と同じ操作を行った。コ
ロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は48%であった。

次いで、実施例4の〔半導体層の成長及び発光素子の製造〕と同じ操作を行っ
て、青色LEDを得た（ $d/\lambda = 1.0$ ）。

10 青色LEDは、通電20 mAでの光出力は、シリカを含有しないものに比較し
て、4.5倍であった。

実施例 11

無機粒子として、コロイダルシリカ（日産化学工業（株）製、MP-4540
15 （商品名）、平均粒径450 nm、粒子濃度40重量%）を用いた以外、実施例
1の〔無機粒子の配置〕と同じ操作を行った。コロイダルシリカ粒子による基板
表面の被覆率は48%であった。

次いで、実施例4の〔半導体層の成長及び発光素子の製造〕と同じ操作を行っ
て、青色LEDを得た（ $d/\lambda = 1.0$ ）。

20 青色LEDは、通電20 mAでの光出力は、シリカを含有しないものに比較し
て、3.0倍であった。

実施例 12

無機粒子として、コロイダルシリカ（日本触媒製、シーホスターKE-W50
25 （商品名）、平均粒径550 nm、粒子濃度20重量%を10重量%に希釈して

使用。)を用いた以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕と同じ操作を行った。

次いで、実施例4の〔半導体層の成長及び発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色LEDを得た($d/\lambda = 1.3$)。

青色LEDは、通電20mAでの光出力は、シリカを含有しないものに比較して、2.4倍であった。

実施例13

無機粒子として、コロイダルシリカ(日本触媒製、シーホスターKE-W50(商品名)、平均粒径550nm、粒子濃度20重量%)を用いた以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕と同じ操作を行った。コロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は60%であった。

次いで、実施例4の〔半導体層の成長及び発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色LEDを得た($d/\lambda = 1.3$)。

青色LEDは、通電20mAでの光出力は、シリカを含有しないものに比較して、2.9倍であった。

実施例14

無機粒子として、シリカ(宇部日東化成製、ハイプレシカUF(商品名)、平均粒径1.0 μ m、8重量%となるようにエタノールに分散させて使用。)を用いた以外、実施例1〔無機粒子の配置〕と同じ操作を行った。コロイダルシリカ粒子による基板表面の被覆率は56%であった。

次いで、実施例4の〔半導体層の成長及び発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色LEDを得た($d/\lambda = 2.3$)。

青色LEDは、通電20mAでの光出力は、シリカを含有しないものに比較して、2.2倍であった。

比較例 1

無機粒子は使用しなかったこと以外、実施例 1 の〔無機粒子の配置〕、〔半導体層の成長〕及び〔発光素子の製造〕と同じ操作を行って、青色 LED を得た。

- 5 青色 LED は、通電 20 mA での光出力は 5.0 mW であった。

比較例 2

- 下地基板の上に SiO_2 をスパッタ法により 100 nm 成膜し、通常のフォトリソグラフィ法を用いて、開口部 5 μm 、パターン部 5 μm の $\langle 1-100 \rangle$ 方向の
- 10 ストライプ状パターンを作製した。この基板を用いて、無機粒子を使用しなかったこと以外は実施例 1 と同様にして窒化物半導体積層基板、次いで窒化物半導体発光素子を得た。得られた窒化物半導体発光素子の通電 20 mA での光出力を測定したところ、4.5 mW であった。

15 試験例 1

- 無機粒子として、コロイダルシリカ（日本触媒製、シーホスター KE-W50（商品名）、平均粒径 550 nm、粒子濃度 20 重量%を 10 重量%に希釈して使用。）を用いたこと、及び（サセプタ温度 485℃で成長する）低温バッファ層を成長させなかったこと以外、実施例 1 の〔無機粒子の配置〕、〔半導体層の
- 20 成長〕と同じ操作を行った。

得られた半導体積層基板の表面は凹凸が大きく鏡面ではなかった。

試験例 2

- 無機粒子として、コロイダルシリカ（日本触媒製、シーホスター KE-W50（商品名）、平均粒径 550 nm、粒子濃度 20 重量%を 10 重量%に希釈して
- 25

使用。)を用いたこと、及び(サセプタ温度900℃で成長する)ファセットを形成するためのアンドープGaN層を成長させなかったこと以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕、〔半導体層の成長〕と同じ操作を行った。

得られた半導体積層基板の表面は凹凸が大きく鏡面ではなかった。

5

試験例3

無機粒子として、コロイダルシリカ(日本触媒製、シーホスターKE-W50(商品名)、平均粒径550nm、粒子濃度20重量%を10重量%に希釈して使用。)を用いたこと、サセプタの温度が485℃で成長する低温バッファ層が

10 $\text{Al}_{0.3}\text{Ga}_{0.7}\text{N}$ であること以外、実施例1の〔無機粒子の配置〕及び〔半導体層の成長〕と同じ操作を行って、窒化物半導体積層基板を得た。そのX線回折ロックングカーブ半値幅は(004)面に対して194arcsecであり(302)面に対して470arcsecであった。低温バッファ層のAl組成と(302)面のピークの半値幅の関係を図4に示す。

15

試験例4

サセプタの温度が485℃で成長する低温バッファ層が $\text{Al}_{0.4}\text{Ga}_{0.6}\text{N}$ であること以外、試験例3と同じ操作を行って、窒化物半導体基板を得た。そのX線回折ロックングカーブ半値幅は(004)面に対して199arcsecであり

20 (302)面に対して447arcsecであった。この結果を図4に示す。

試験例5

サセプタの温度が485℃で成長する低温バッファ層がAlNであること以外、試験例3と同じ操作を行って、窒化物半導体基板を得た。そのX線回折ロックン

25 グカーブ半値幅は(004)面に対して283arcsecであり(302)

面に対して596 arcsecであった。この結果を図4に示す。

試験例6

- サセプタの温度が485℃で成長する低温バッファ層を成長しないこと以外、
- 5 試験例3と同じ操作を行って、窒化物半導体基板を得た。その結晶表面は凹凸が大きく鏡面が得られなかった。

産業上の利用可能性

- 本発明は、高い輝度を示す半導体発光素子として使用される半導体積層基板を
- 10 提供する。また、本発明は、半導体積層基板の製造方法を提供する。さらに本発明は、半導体積層基板を含む発光素子を提供する。

請求の範囲

1. 金属窒化物を除く無機粒子を含む半導体層を含む半導体積層基板。
2. 半導体層が無機粒子以外の部分に、金属窒化物、高分子有機化合物又は低分子有機化合物を含む請求項 1 記載の半導体積層基板。
3. 半導体層が無機粒子以外の部分に、金属窒化物を含む請求項 2 記載の半導体積層基板。
4. 無機粒子が酸化物、窒化物、炭化物、硼化物、硫化物、セレン化物及び金属からなる群より選ばれる少なくとも 1 つを含む請求項 1 記載の半導体積層基板。
5. 無機粒子が酸化物を含む請求項 4 記載の半導体積層基板。
6. 酸化物がシリカ、アルミナ、ジルコニア、チタニア、セリア、マグネシア、酸化亜鉛、酸化スズ及びイットリウムアルミニウムガーネットからなる群より選ばれる少なくとも 1 つである請求項 5 記載の半導体積層基板。
7. 酸化物がシリカである請求項 6 記載の半導体積層基板。
8. 無機粒子が半導体層の成長におけるマスク材料を含む請求項 1 記載の半導体積層基板。
9. 無機粒子がその表面にマスク材料を有する請求項 8 記載の半導体積層基板。
10. マスク材料が無機粒子の表面の 30% 以上を覆うように存在する請求項 9 記載の半導体積層基板。
11. マスク材料がシリカ、ジルコニア、チタニア、窒化珪素、窒化硼素、W、Mo、Cr、Co、Si、Au、Zr、Ta、Ti、Nb、Pt、V、Hf 及びPdからなる群より選ばれる少なくとも 1 つである請求項 8 記載の半導体積層基板。
12. 無機粒子は、形状が球状、板状、針状である、又は不定形である請求項 1

記載の半導体積層基板。

1 3. 無機粒子は、形状が球状である請求項 1 2 記載の半導体積層基板。

1 4. 無機粒子は、平均粒径が 5 nm 以上 5 0 μ m 以下である請求項 1 記載の半導体積層基板。

5 1 5. 半導体積層基板は、さらに基板を含む請求項 1 記載の半導体積層基板。

1 6. 次の工程 (a) 及び (b) を含む半導体積層基板の製造方法。

(a) 基板上に、金属窒化物を除く無機粒子を配置する工程、

(b) 半導体層を成長させる工程。

1 7. さらに、工程 (b) 後に工程 (c) を含む請求項 1 6 記載の製造方法。

10 (c) 半導体層を成長させて、表面を平坦化する工程。

1 8. 次の工程 (a1)、(a2) 及び (b) を含む半導体積層基板の製造方法。

(a1) 基板上に、金属窒化物を除く無機粒子を配置する工程、

(a2) 低温バフア層を成長させる工程、

(b) 半導体層を成長させる工程。

15 1 9. さらに、工程 (b) 後に工程 (c) を含む請求項 1 8 記載の製造方法。

(c) 半導体層を成長させて、表面を平坦化する工程。

2 0. 工程 (b) の成長温度が工程 (a2) の成長温度と工程 (c) の成長温度の間である請求項 1 9 記載の製造方法

2 1. 半導体層は X 線回折ロッキングカーブ測定における (3 0 2) 面の回折ピーク半値幅が 6 5 0 arc sec 以下である請求項 1 6 ~ 2 0 のいずれかに記載の製造方法

2 2. 半導体層が金属窒化物を含む請求項 1 6 ~ 2 0 のいずれかに記載の製造方法。

2 3. 半導体層が有機金属気相成長、分子線エピタキシー及びハイドライド気相成長からなる群より選ばれる 1 つにより成長させられる請求項 1 6 ~ 2 0

のいずれかに記載の製造方法。

24. 半導体層がファセット構造を有し、式 $\text{In}_x\text{Ga}_y\text{Al}_z\text{N}$ ($0 \leq x \leq 1$, $0 \leq y \leq 1$, $0 \leq z \leq 1$, $x + y + z = 1$) で表される請求項16～20のいずれかに記載の製造方法。

5 25. 半導体層がファセット構造を有し、式 $\text{Al}_d\text{Ga}_{1-d}\text{N}$ ($0 < d < 1$) で表される請求項24記載の製造方法。

26. 無機粒子が基板の成長面の0.1%以上90%以下を覆うように配置される請求項16～20のいずれかに記載の製造方法。

27. 配置は、スピコートにより行われる請求項16～20のいずれかに記載の製造方法。

28. 請求項1記載の半導体積層基板を含む発光素子。

29. 発光素子は、さらに、電極を含む請求項28記載の発光素子。

30. 発光素子の発光波長を λ とし、無機粒子の平均粒径を d とした場合、 d/λ が0.2以上3.0以下である請求項28記載の発光素子。

15 31. 金属窒化物を除く無機粒子を含む半導体層を含む半導体積層基板の発光素子としての使用。

32. 請求項16～20のいずれかに記載の製造方法により得られる半導体積層基板。

図 1

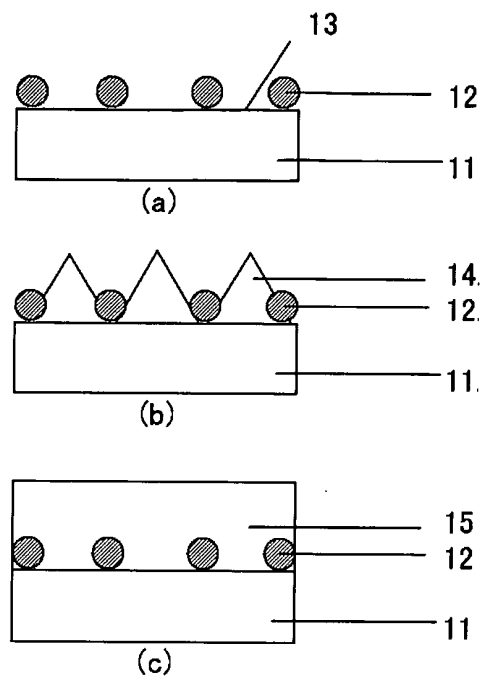


図 2

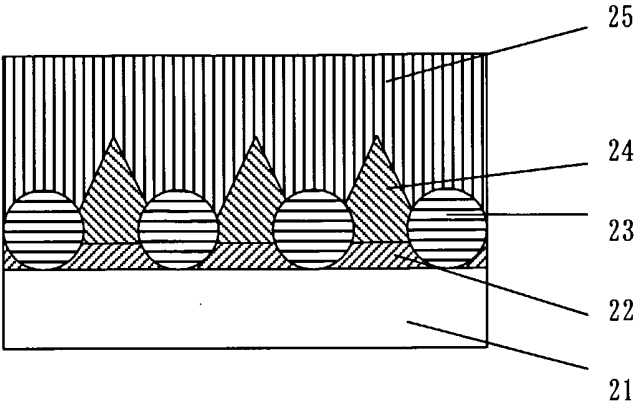


図 3

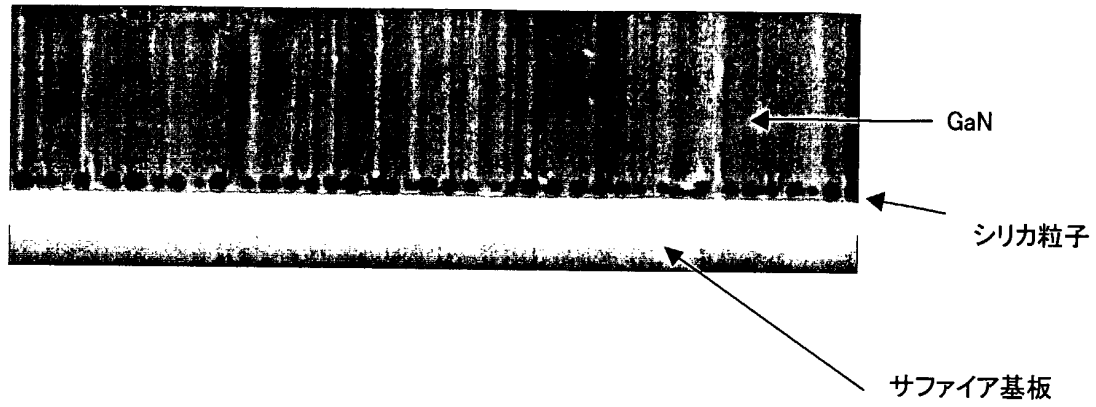
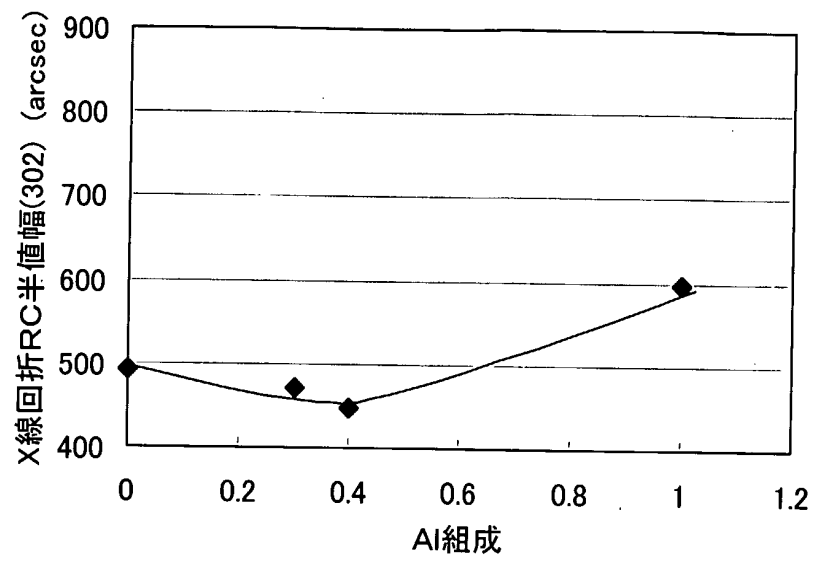


図 4



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/021936

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L21/205(2006.01), **H01L33/00**(2006.01)

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)

H01L21/205, H01L33/00, C23C16/00-16/56

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	1996-2006
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2006	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2006

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.
P, X	JP 2005-259768 A (Sanyo Electric Co., Ltd.), 22 September, 2005 (22.09.05), Par. Nos. [0092] to [0104] (Family: none)	1-17, 22, 23, 28, 29, 31, 32
X	JP 2000-349333 A (Sony Corp.), 15 December, 2000 (15.12.00), Full text	1-6, 12-17, 22, 23, 26-32
A	& US 6639354 B1 & US 2002/0160544 A1 & US 2002/0163005 A1 & EP 0975027 A2	7-11, 18-21, 24, 25
A	JP 2002-270516 A (NEC Corp.), 20 September, 2002 (20.09.02), Par. No. [0028] & US 2002/0168844 A1 & EP 1239062 A2	1-32

☐ 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
27 February, 2006 (27.02.06)

Date of mailing of the international search report
07 March, 2006 (07.03.06)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))
Int.Cl. H01L21/205 (2006.01), H01L33/00 (2006.01)

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. H01L21/205, H01L33/00, C23C16/00-16/56

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	1971-2006年
日本国実用新案登録公報	1996-2006年
日本国登録実用新案公報	1994-2006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 請求の範囲の番号
P, X	JP 2005-259768 A (三洋電機株式会社) 2005.09.22, 段落【0092】 - 【0104】 (ファミリーなし)	1-17, 22, 23, 28, 29, 31, 32
X	JP 2000-349333 A (ソニー株式会社) 2000.12.15, 全文	1-6, 12-17, 22
A	& US 6639354 B1 & US 2002/0160544 A1 & US 2002/0163005 A1	, 23, 26-32
A	& EP 0975027 A2	7-11, 18-21, 24, 25
A	JP 2002-270516 A (日本電気株式会社) 2002.09.20, 段落【0028】	
	& US 2002/0168844 A1 & EP 1239062 A2	1-32

☐ 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

27.02.2006

国際調査報告の発送日

07.03.2006

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)

池淵 立

電話番号 03-3581-1101 内線 3471

4 R

8831