

(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  
2024年7月18日(18.07.2024)



(10) 国際公開番号

WO 2024/150428 A1

(51) 国際特許分類:

C30B 29/38 (2006.01) C30B 25/20 (2006.01)  
C23C 16/34 (2006.01) H01L 21/205 (2006.01)

(21) 国際出願番号: PCT/JP2023/000869

(22) 国際出願日: 2023年1月13日(13.01.2023)

(25) 国際出願の言語: 日本語

(26) 国際公開の言語: 日本語

(71) 出願人: 日本碍子株式会社(NGK INSULATORS, LTD.) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋瑞穂区須田町2番56号 Aichi (JP).

(72) 発明者: 中村 江利 (NAKAMURA, Eri); 〒4678530 愛知県名古屋瑞穂区須田町2番56号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 阿閉 恭平(ATSUJI, Kyohei); 〒4678530 愛知県名古屋瑞穂区須田町2番56号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 竹内 勝之(TAKEUCHI, Katsuyuki); 〒4678530 愛知県名古屋瑞穂区須田町2番56号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 小林 博治(KOBAYASHI, Hiroharu); 〒4678530 愛知県名古屋瑞穂区須田町2番56号 日本碍子株式会社内 Aichi (JP).

(74) 代理人: 弁理士法人サンネクスト国際特許事務所(SUNNEXT INTERNATIONAL PATENT OFFICE); 〒1400002 東京都品川区東品川二丁目3番12号 シーフォートスクエア センタービルディング16階 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN,

HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, ME, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第21条(3))

(54) Title: ALN SINGLE CRYSTAL SUBSTRATE AND DEVICE

(54) 発明の名称: A I N単結晶基板およびデバイス

(57) Abstract: This AlN single crystal substrate contains carbon and boron as impurities, wherein when a carbon concentration and a boron concentration are expressed in terms of atoms per cm<sup>3</sup>, the ratio of the boron concentration to the carbon concentration is  $0.22 \leq [\text{boron concentration}] / [\text{carbon concentration}] \leq 6.85$ . Provided is an AlN single crystal substrate and the like capable of achieving high transmittance in an ultraviolet region by adjusting the impurity concentration.

(57) 要約: 炭素およびホウ素を不純物として含み、炭素の濃度およびホウ素の濃度を  $1 \text{ cm}^3$  当たりの原子数で表したとき、炭素の濃度およびホウ素の濃度の比率が、 $0.22 \leq [\text{ホウ素の濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 6.85$  である A I N単結晶基板。不純物の濃度を調整することで、紫外域において高透過率を達成することができる A I N単結晶基板等を提供する。

WO 2024/150428 A1

## 明 細 書

発明の名称： A I N単結晶基板およびデバイス

### 技術分野

[0001] 本発明は、A I N単結晶基板、デバイスに関する。特に、紫外域で発光するL E D (Light Emitting Diode) を製造するのに用いられるA I N単結晶基板等に関する。

### 背景技術

[0002] 近年、紫外域で発光するL E Dが求められている。このようなL E Dとして、深紫外で発光するものは、殺菌などに用途に利用することができる。そして、この下地基板として、A I N単結晶基板が用いられる。

[0003] 特許文献1では、A I N結晶のA I原子の一部を、I I I a族元素 (S c, Y, L a等) 又は/及びI I I b族元素 (B, G a, I n等) で置換し、隣接する窒素 (N) 1原子を酸素 (O) 原子で置換することにより、浅い不純物準位が形成され、低抵抗n型A I N結晶を得ることができるとが開示されている。特にI I I a族元素又は/及びI I I b族元素の合計濃度 ( $C_{3A}$ ) が  $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ 以上であり、O濃度 ( $C_O$ ) が、 $0.01 C_{3A} < C_O < 1.5 C_{3A}$ であることが開示されている。また、A I N結晶の製造方法としては、C V D法、M B E法や昇華法等の方法を採用できることが開示されている。

特許文献2では、酸素原子、及び炭素原子を含む窒化アルミニウム単結晶であって、酸素原子の濃度を  $[O] \text{ cm}^{-3}$ 、炭素原子の濃度を  $[C] \text{ cm}^{-3}$  としたときに、 $[O] - [C] > 0$  の式の条件を満足することを特徴とする窒化アルミニウム単結晶が開示されている。

### 先行技術文献

#### 特許文献

[0004] 特許文献1：特開2007-261883号公報

特許文献2：特開2012-188344号公報

## 発明の概要

### 発明が解決しようとする課題

[0005] 紫外域で発光するLEDとしてAlN単結晶基板を用いる場合、紫外域において高い透過率を有することが求められる。紫外域で高い透過率になるAlN単結晶基板を得るには、例えば、AlN単結晶基板に含まれる不純物濃度を低くすればよい。

しかしながら、不純物濃度が低いAlN単結晶基板を得るには、不純物濃度を減らすために、単結晶成長時に高度な制御および特別な製造装置が必要である。このような製造装置は、一般的に高価であり、AlN単結晶基板の製造コストが高額になる要因となる。したがって、紫外域で高い透過率を有するAlN単結晶基板を得るための不純物濃度の制御方法として、改良の余地があるものであった。

本発明は、不純物の濃度を調整することで、紫外域において高透過率を達成することができるAlN単結晶基板等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] 上記の課題を解決するため本発明は、炭素およびホウ素を不純物として含み、炭素の濃度およびホウ素の濃度を $1\text{ cm}^3$ 当たりの原子数で表したとき、炭素の濃度およびホウ素の濃度の比率が、 $0.22 \leq [\text{ホウ素の濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 6.85$ であるAlN単結晶基板を提供するものである。

[0007] また、本発明は、炭素およびホウ素を不純物として含み、炭素の濃度およびホウ素の濃度を、 $265\text{ nm}$ の波長を有する紫外光での吸収係数が、 $60 / \text{cm}$ 未満となるようにしたAlN単結晶基板を提供するものである。

さらに、本発明は、上記AlN単結晶基板を備えたデバイスを提供するものである。

### 発明の効果

[0008] 不純物の濃度を調整することで、紫外域において高透過率を達成することができるAlN単結晶基板等を提供することができる。

## 図面の簡単な説明

[0009] [図1] A I N多結晶粉末の熱処理で用いる装置について示した図である。

[図2] A I N単結晶層の成膜で用いる成膜装置について示した図である。

## 発明を実施するための形態

[0010] 以下、添付図面を参照し、本発明の実施の形態について詳細に説明する。

### < A I N単結晶基板 >

本実施の形態で、「A I N単結晶基板」とは、窒化アルミニウム（A I N）の単結晶からなる基板のことである。なおここで、「単結晶」とは、全てが単結晶からなることを意味するものではなく、例えば、結晶欠陥などを含んでいてもよい。

[0011] 本実施の形態のA I N単結晶基板は、炭素（C）およびホウ素（B）を不純物として含む。そして、炭素の濃度およびホウ素の濃度を $1\text{ cm}^3$ 当たりの原子数で表したとき、炭素の濃度およびホウ素の濃度の比率が、 $0.22 \leq [\text{ホウ素の濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 6.85$ である。 $[\text{ホウ素の濃度}] / [\text{炭素の濃度}]$ が、 $0.22$ 未満であると、深外域に吸収を持つとされるC不純物量が相対的に多くなる点が好ましくない。また、 $[\text{ホウ素の濃度}] / [\text{炭素の濃度}]$ が、 $6.85$ を超えると、極小さな気孔が生成しやすくなり光が散乱してしまう点が好ましくない。

なお、紫外域での透過率の観点から、この比率は、 $1.17 \leq [\text{ホウ素の濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 5.09$ であることが好ましい。また、この比率は、 $1.45 \leq [\text{ホウ素の濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 3.33$ であることがさらに好ましい。

[0012] さらに、シリコン（S i）を不純物として含んでいてもよい。この場合、シリコンの濃度を $1\text{ cm}^3$ 当たりの原子数で表したとき、炭素の濃度およびシリコンの濃度の比率が、 $0.005 \leq [\text{シリコンの濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 0.27$ であってよい。

なお、この比率は、 $0.01 \leq [\text{シリコンの濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 0.2$ であることが好ましい。また、この比率は、 $0.02 \leq [\text{シリコンの濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 0.1$ であることがさらに好ましい。

度] / [炭素の濃度]  $\leq 0.08$  であることがさらに好ましい。

[0013] AlN単結晶基板に含まれる不純物を、このような元素となるように選択し、かつその濃度を上記比率とすることで、AlN単結晶基板の紫外域における透過率を向上させることができる。つまり、不純物が含まれていてもAlN単結晶基板の紫外域における透過率を向上させることができる。また、AlN単結晶基板の単結晶成長時に高度な制御および特別な製造装置を使用することなく、AlN単結晶基板の紫外域における透過率を向上させることができる。その結果、AlN単結晶基板の製造コストが低廉になりやすい。

また従来技術と比較する観点からは、炭素の濃度が、 $4 \times 10^{17} \sim 3 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ より多く含んでいる場合でも、炭素の濃度とホウ素の濃度とを上記の範囲内で制御することにより、紫外域（例えば、265 nm）で、高透過率のAlN単結晶を得ることができる。

[0014] なお、本実施の形態では、265 nmの波長を有する紫外光での吸収係数が、 $60 / \text{cm}$ 未満となることが要求される。また、吸収係数が、 $50 / \text{cm}$ 未満となることがさらに好ましい。この吸収係数は、以下の方法で測定することができる。

[0015] AlN単結晶の全光線透過率 $T_a$ を、分光光度計を用いて測定する。この測定値およびAlN単結晶の理論透過率 $T_t$ を用い、以下の(1)式により、AlN単結晶の吸収係数 $\alpha$ を求めた後に、以下の(11)式により、 $100 \mu\text{m}$ 換算の透過率 $T_{100 \mu\text{m}}$ を計算する。なお、ここで $t$ は、サンプルの実厚み（cm）である。

$$[0016] \quad \alpha = -\ln(T_a / T_t) / t \quad \dots (1)$$

$$T_{100 \mu\text{m}} = \exp(-\alpha / 100) \quad \dots (11)$$

[0017] また、炭素の濃度、ホウ素およびシリコンの濃度は、以下の(1)式～(3)式の範囲内となることが好ましい。

$$3.7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3} \leq [\text{炭素濃度}] \leq 5.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \quad \dots (1)$$

$$9.4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3} \leq [\text{ホウ素濃度}] \leq 8.4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \quad \dots (2)$$

)

$$1. 0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3} \leq [\text{シリコン濃度}] \leq 2. 0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \quad \dots (3)$$

3)

そして、炭素の濃度、ホウ素およびシリコンの濃度は、以下の(4)式～(6)式の範囲内となることがさらに好ましい。

$$6. 5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3} \leq [\text{炭素濃度}] \leq 1. 3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \quad \dots (4)$$

$$1. 3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \leq [\text{ホウ素濃度}] \leq 2. 3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \quad \dots (5)$$

)

$$2. 0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3} \leq [\text{シリコン濃度}] \leq 4. 9 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3} \quad \dots (6)$$

6)

[0018] 炭素の濃度、ホウ素およびシリコンの濃度を、(1)式～(3)式の範囲とすることで、A I N単結晶基板の紫外域での吸収係数が小さくなりやすい。

[0019] 本実施の形態におけるA I N単結晶基板は、c軸方向及びa軸方向の両方に配向している配向層であるのが好ましく、モザイク結晶を含んでいてもよい。モザイク結晶とは、明瞭な粒界は有しないが、結晶の配向方位がc軸及びa軸の一方又は両方とわずかに異なる結晶の集まりになっているものをいう。このような配向層は、略法線方向(c軸方向)、及び面内方向(a軸方向)に結晶方位が概ね揃った構成を有している。このような構成とすることで、その上に、優れた品質、特に配向性に優れた半導体層を形成することが可能となる。すなわち、配向層上に半導体層を形成する際、半導体層の結晶方位は配向層の結晶方位に概ね倣ったものとなる。したがって、A I N単結晶基板上に形成される半導体膜を配向膜としやすい。

[0020] <A I N単結晶基板の製造方法>

本実施の形態のA I N単結晶基板は、様々な方法により製造することがで

きる。種基板を用意しその上にエピタキシャル成膜させてもよいし、種基板を用いずに自発核形成によって直接AlN単結晶基板を製造させてもよい。また、用いる種基板はホモエピタキシャル成長となるようにAlN基板を用いてもよいし、それ以外の基板を用いてヘテロエピタキシャル成長させてもよい。単結晶の成長には気相成膜法、液相成膜法及び固相成膜法のいずれの方法を用いてもよいが、好ましくは気相成膜法を用いてAlN単結晶を成膜し、その後に必要に応じ種基板部分を研削除去することによって、所望のAlN単結晶基板を得る。気相成膜法の例としては、各種CVD（化学気相成長）法（例えば、熱CVD法、プラズマCVD法、MOVPE法等）、スパッタリング法、ハイドライド気相成長（Hydride vapor phase epitaxy：HVPE）法、分子線エピタキシー（Molecular beam epitaxy：MBE）法、昇華法、パルスレーザーデポジション（Pulsed Laser Deposition：PLD）法等が挙げられ、好ましくは昇華法又はHVPE法である。液相成膜法の例としては、溶液成長法（例えばフラックス法）等が挙げられる。また、種基板上に直接AlN単結晶を成膜せずとも、配向前駆体層を形成する工程、熱処理により配向前駆体層をAlN単結晶層とする工程、及び種基板を研削除去する工程によりAlN単結晶基板を得ることも可能である。その時の配向前駆体層を成膜する製法としてAD（エアロゾルデポジション）法、HPPD（超音速プラズマ粒子堆積）法等が挙げられる。

#### [0021] <デバイス>

本実施の形態のAlN単結晶基板を用いてデバイスを作製することもできる。すなわち、好ましくはAlN単結晶基板を備えたデバイスが提供される。このようなデバイスの例としては、深紫外線レーザーダイオード、深紫外線ダイオード、パワー電子デバイス、高周波デバイス、ヒートシンク等が挙げられる。AlN単結晶基板を使用したデバイスの製造方法は、特に限定されず、公知の手法により製造することができる。

#### 実施例

## [0022] &lt; A I N 単結晶基板の作製 &gt;

以下の表 1 に示す組成にて A I N 単結晶基板を作製した。即ち、不純物である、炭素 (C)、ホウ素 (B)、シリコン (S i) のそれぞれ濃度 (C 量、B 量、S i 量) を表 1 に示す濃度になるように A I N 単結晶基板を作製した。またこのとき、〔ホウ素の濃度〕 / 〔シリコンの濃度〕 (S i / C)、および〔ホウ素の濃度〕 / 〔炭素の濃度〕 (B / C) は、表 1 に示したようになる。なお、濃度 (C 量、B 量、S i 量) は、小数点第 2 桁を四捨五入して記載している。またその関係で、表 1 に記載の濃度 (C 量、B 量、S i 量) では、S i / C、B / C は、表 1 に記載の数値とはならない場合があるが、表 1 では、小数点第 2 桁以降まで考慮した正確な濃度で算出した S i / C、B / C を記載している。

## [0023]

[表1]

	C量	B量	Si量	Si/C	B/C	吸収係数
	/cm <sup>3</sup>	/cm <sup>3</sup>	/cm <sup>3</sup>			
実施例 1	8.0E+18	1.4E+19	<1.0E+17	0.00	1.77	A
実施例 2	1.2E+19	1.8E+19	4.2E+17	0.03	1.46	A
実施例 3	6.6E+18	2.2E+19	4.8E+17	0.07	3.32	A
実施例 4	8.2E+18	1.6E+19	3.3E+17	0.04	2.01	A
実施例 5	6.6E+18	1.6E+19	3.3E+17	0.05	2.48	A
実施例 6	1.1E+19	1.6E+19	2.1E+17	0.02	1.44	B
実施例 7	1.2E+19	1.6E+19	3.3E+17	0.03	1.36	B
実施例 8	1.2E+19	1.4E+19	1.5E+17	0.01	1.18	B
実施例 9	3.7E+18	1.4E+19	1.0E+18	0.27	3.65	B
比較例 1	4.5E+19	9.3E+18	4.4E+17	0.01	0.21	C
比較例 2	1.6E+20	1.2E+17	4.4E+19	0.28	0.00	C
比較例 3	1.2E+19	8.5E+19	3.4E+17	0.03	6.86	C

## [0024] (実施例 1)

実施例 1 では、昇華法により AlN 単結晶基板を作製した。実施例 1 で用いた昇華法は、(a) AlN 多結晶粉末の熱処理、および (b) AlN 単結晶層の成膜、の工程からなる。

## [0025] (a) AlN 多結晶粉末の熱処理

図 1 は、AlN 多結晶粉末の熱処理で用いる装置について示した図である。

BN サヤ 10 内に、AlN 単結晶の原料として用いる市販の平均粒径 1 μm の AlN 粉末 12 を配置した。市販の平均粒径 1 μm の黒鉛粉末 14 を、

A I N粉末100重量部としたときに6重量部となる割合にてB N坩堝17に入れた。また、平均粒径 $3\mu\text{m}$ のB N粉末15を、A I N粉末100重量部に対し3重量部となる割合にてB N坩堝18に入れた。さらに、平均粒径 $0.1\mu\text{m}$ の $\text{Si}_3\text{N}_4$ 粉末16を、A I N粉末100重量部に対し1重量部となる割合にてB N坩堝19に入れた。これらのB N坩堝17~19を、A I N粉末12に直接触れないようにB Nサヤ10内に配置した。B N坩堝17~19は、B Nサヤ10内に収納可能な大きさである。このB Nサヤ10を、黒鉛ヒーター炉内にて、 $\text{N}_2$ 雰囲気中で、 $0.1\text{気圧}\sim 10\text{気圧}$ 、 $2200^\circ\text{C}$ にて熱処理した。こうして、A I N多結晶粉末であるA I N粉末12を熱処理して、A I N原料粉末を作製した。

[0026] (b) A I N単結晶層の成膜

図2は、A I N単結晶層の成膜で用いる成膜装置20について示した図である。

図示する成膜装置20は、結晶成長容器である坩堝22を断熱するための断熱材24と、坩堝22を加熱するコイル26とを備える。

そして、上記(a)で作製したA I N原料粉末28を内部に入れた坩堝22を、成膜装置20の内部に配置した。さらに、坩堝22と接触しないように、成膜装置20内の上部に、A I N原料粉末28の昇華物を析出させる種基板30として、S i C基板を配置した。

[0027] 次に、坩堝22を $\text{N}_2$ 雰囲気下で $50\text{kPa}$ にて加圧し、コイル26を用いた高周波誘導加熱により、坩堝22内のA I N原料粉末付近の部分を $100^\circ\text{C}$ に加熱した。一方、坩堝22内のS i C基板付近の部分をそれよりも低い温度（温度差が $200^\circ\text{C}$ ）に加熱して保持することにより、S i C基板上にA I N単結晶層32を再析出させた。保持時間は10時間とした。

[0028] その結果、炭素(C)、ホウ素(B)、シリコン(S i)のそれぞれ濃度(C量、B量、S i量)が表1で示した組成のA I N単結晶基板を作製できた。なお、各元素の濃度は、ダイナミックS I M S (Secondary Ion Mass Spectrometry : 二次イオン質量分析)を測定装置として用いて測定した。具体

的には、測定装置は、アメテック株式会社製のCAMECA IMS-7fであり、一次イオン種Cs<sup>+</sup>、一次加速電圧：15kV、検出領域20μm×20μmとした。なお、この測定装置による炭素(C)、ホウ素(B)、シリコン(Si)の測定下限は、全て $1.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ である。

[0029] (実施例2～9、比較例1～3)

黒鉛粉末14、BN粉末15、Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>粉末16の量を変更したこと以外は、実施例1と同様の方法により、AlN単結晶基板を作製した。その結果、炭素(C)、ホウ素(B)、シリコン(Si)のそれぞれ濃度(C量、B量、Si量)が表1で示した組成となるAlN単結晶基板を作製できた。

[0030] <評価方法>

実施例1～9、比較例1～3で作製したAlN単結晶基板について、上述した(1)式、(11)式により、吸収係数を算出した。このとき、全光線透過率Taを測定する分光光度計として、株式会社日立ハイテクサイエンス製UH4150を使用した。

そして、吸収係数の評価基準を以下のように設定した。

評価A：紫外域(265nm)での吸収係数が50/cm未満

評価B：紫外域(265nm)での吸収係数が50/cm以上60/cm未満

評価C：紫外域(265nm)での吸収係数が60/cm以上

評価Bの場合、吸収係数の結果は良好である。また、評価Aの場合、吸収係数の結果はさらに良好である。対して、評価Cの場合、吸収係数の結果は、不良である。

[0031] <評価結果>

評価結果を表1に示す。

実施例1～9は、炭素(C)およびホウ素(B)を不純物として含み、炭素の濃度およびホウ素の濃度の比率(B/C)が、 $0.22 \leq$  [ホウ素の濃

度] / [炭素の濃度]  $\leq 6.85$ となる場合である。また、実施例2～9は、シリコン (Si) をさらに不純物としてさらに含み、炭素の濃度およびシリコンの濃度の比率 (Si/C) が、 $0.005 \leq$  [シリコンの濃度] / [炭素の濃度]  $\leq 0.27$ となる場合である。なお、実施例1は、不純物として、シリコン (Si) は検出限界以下であり、計算上は、Si/Cは、0.005であるが、ここでは0.00として示している。

実施例1～9では、吸収係数が評価Aまたは評価Bとなり、良好な結果であった。

[0032] 比較例1は、炭素 (C) およびホウ素 (B) を不純物として含むが、炭素の濃度およびホウ素の濃度の比率 (B/C) が、0.22未満になる場合である。

また、比較例2は、不純物としてホウ素 (B) をほとんど含まない場合である。なお、計算上は、B/Cは、0.001であるが、ここでは0.00として示している。

さらに、比較例3は、炭素 (C) およびホウ素 (B) を不純物として含むが、炭素の濃度およびホウ素の濃度の比率 (B/C) が、6.85を超える場合である。

比較例1～3では、吸収係数が評価Cとなり、不良であった。

[0033] 以上、本実施の形態について説明したが、本発明の技術的範囲は上記実施の形態に記載の範囲には限定されない。上記実施の形態に、種々の変更または改良を加えたものも、本発明の技術的範囲に含まれることは、特許請求の範囲の記載から明らかである。

## 符号の説明

[0034] 12…AlN粉末、14…黒鉛粉末、15…BN粉末、16…Si<sub>3</sub>N<sub>4</sub>粉末、17、18、19…BN坩堝、20…成膜装置、28…AlN原料粉末

## 請求の範囲

- [請求項1] 炭素およびホウ素を不純物として含み、  
前記炭素の濃度および前記ホウ素の濃度を  $1 \text{ cm}^3$  当たりの原子数で表したとき、前記炭素の濃度および前記ホウ素の濃度の比率が、 $0.22 \leq [\text{ホウ素の濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 6.85$  である A I N 単結晶基板。
- [請求項2] 前記炭素の濃度および前記ホウ素の濃度の比率が、 $1.17 \leq [\text{ホウ素の濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 5.09$  である請求項1に記載の A I N 単結晶基板。
- [請求項3] シリコンをさらに不純物としてさらに含み、  
前記シリコンの濃度を  $1 \text{ cm}^3$  当たりの原子数で表したとき、前記炭素の濃度および前記シリコンの濃度の比率が、 $0.005 \leq [\text{シリコンの濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 0.27$  である請求項1または2に記載の A I N 単結晶基板。
- [請求項4] 前記炭素の濃度および前記シリコンの濃度の比率が、 $0.01 \leq [\text{シリコンの濃度}] / [\text{炭素の濃度}] \leq 0.2$  である請求項3に記載の A I N 単結晶基板。
- [請求項5] 前記炭素の濃度、前記ホウ素および前記シリコンの濃度は、以下の  
(1) 式～(3) 式の範囲内となる請求項3に記載の A I N 単結晶基板。

$$3.7 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3} \leq [\text{炭素の濃度}] \leq 5.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \quad \dots (1)$$

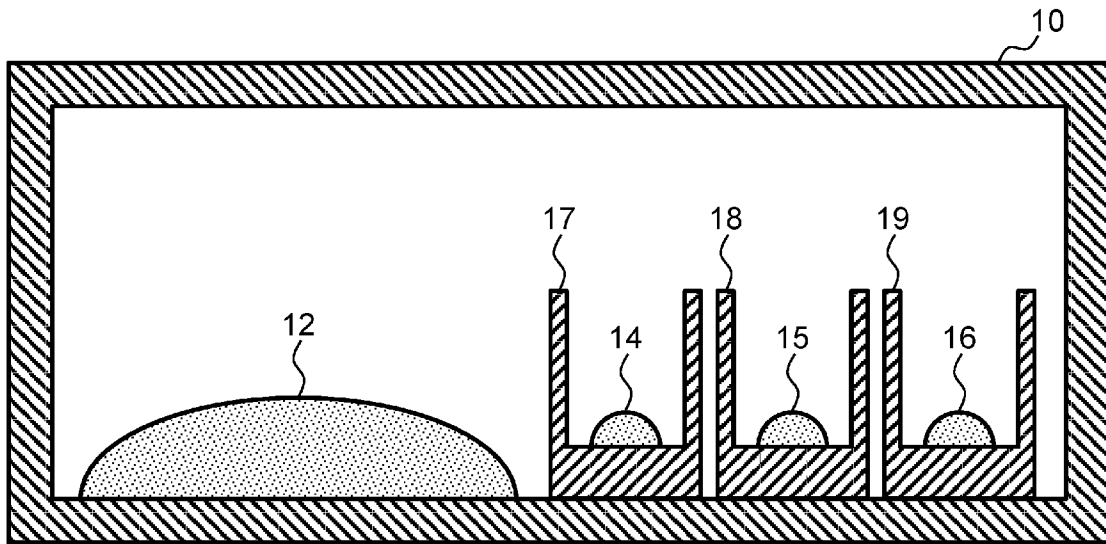
$$9.4 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3} \leq [\text{ホウ素の濃度}] \leq 8.4 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \quad \dots (2)$$

$$1.0 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3} \leq [\text{シリコンの濃度}] \leq 2.0 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3} \quad \dots (3)$$

- [請求項6] 炭素およびホウ素を不純物として含み、  
前記炭素の濃度および前記ホウ素の濃度を、265 nmの波長を有する紫外光での吸収係数が、60 / cm未満となるようにしたAlN単結晶基板。
- [請求項7] シリコンをさらに不純物としてさらに含み、  
前記炭素の濃度、前記ホウ素の濃度および前記シリコンの濃度を、265 nmの波長を有する紫外光での吸収係数が、60 / cm未満となるようにした請求項6に記載のAlN単結晶基板。
- [請求項8] 請求項1乃至5の何れか1項に記載のAlN単結晶基板を備えたデバイス。

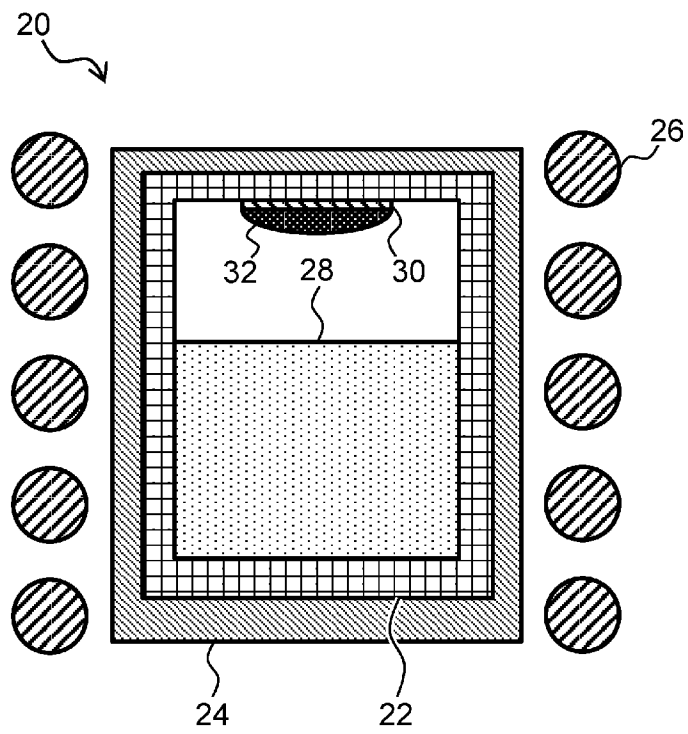
[図1]

図 1



[図2]

図 2



## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2023/000869

<b>A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER</b>		
<i>C30B 29/38</i> (2006.01)i; <i>C23C 16/34</i> (2006.01)i; <i>C30B 25/20</i> (2006.01)i; <i>H01L 21/205</i> (2006.01)i FI: C30B29/38 C; C23C16/34; C30B25/20; H01L21/205		
According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC		
<b>B. FIELDS SEARCHED</b>		
Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols) C30B29/38; C23C16/34; C30B25/20; H01L21/205		
Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched Published examined utility model applications of Japan 1922-1996 Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2023 Registered utility model specifications of Japan 1996-2023 Published registered utility model applications of Japan 1994-2023		
Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)		
<b>C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT</b>		
Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y A	WO 2021/132491 A1 (TOKUYAMA CORPORATION) 01 July 2021 (2021-07-01) paragraphs [0061], [0062], [0095]-[0105]	1-4, 6-8 1-4, 6-8 5
X Y A	WO 2013/094058 A1 (NATIONAL UNIVERSITY CORPORATION TOKYO UNIVERSITY OF AGRICULTURE AND TECHNOLOGY) 27 June 2013 (2013-06-27) paragraphs [0020]-[0037], [0054]-[0081]	6, 7 1-4, 6-8 5
A	KUMAGAI, Yoshinao et al. Preparation of a Freestanding AlN Substrate from a Thick AlN Layer Grown by Hydride Vapor Phase Epitaxy on a Bulk AlN Substrate Prepared by Physical Vapor Transport. Applied Physics Express, 2012, 5, pp. 055504(1)-055504(3) fig. 4, table 1	1-8
A	US 2019/0145020 A1 (BONDOKOV, Robert T.) 16 May 2019 (2019-05-16) entire text	1-8
<input checked="" type="checkbox"/> Further documents are listed in the continuation of Box C. <input checked="" type="checkbox"/> 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 <b>07 March 2023</b>		Date of mailing of the international search report <b>28 March 2023</b>
Name and mailing address of the ISA/JP <b>Japan Patent Office (ISA/JP) 3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915 Japan</b>		Authorized officer  Telephone No.



**INTERNATIONAL SEARCH REPORT**  
**Information on patent family members**

International application No.

**PCT/JP2023/000869**

Patent document cited in search report			Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO	2021/132491	A1	01 July 2021	US 2022/0364267 A1 paragraphs [0097], [0139]- [0155] KR 10-2022-0118998 A TW 202130863 A	
WO	2013/094058	A1	27 June 2013	US 2014/0346638 A1 paragraphs [0025]-[0044], [0061]-[0089] EP 2796596 A1 CN 103975098 A KR 10-2014-0104438 A CN 111621852 A	
US	2019/0145020	A1	16 May 2019	WO 2019/094742 A1 entire text DE 112018005414 T CN 111630630 A	
JP	2014-181178	A	29 September 2014	US 2014/0264388 A1 entire text EP 2784191 A1 CN 104047054 A KR 10-2014-0113583 A TW 201443302 A	

<p>A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（IPC））                  C30B 29/38(2006.01)i; C23C 16/34(2006.01)i; C30B 25/20(2006.01)i; H01L 21/205(2006.01)i                  FI: C30B29/38 C; C23C16/34; C30B25/20; H01L21/205</p>																	
<p>B. 調査を行った分野</p> <p>調査を行った最小限資料（国際特許分類（IPC））                  C30B29/38; C23C16/34; C30B25/20; H01L21/205</p> <p>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</p> <table border="0"> <tr> <td>日本国実用新案公報</td> <td>1922 - 1996年</td> </tr> <tr> <td>日本国公開実用新案公報</td> <td>1971 - 2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国実用新案登録公報</td> <td>1996 - 2023年</td> </tr> <tr> <td>日本国登録実用新案公報</td> <td>1994 - 2023年</td> </tr> </table> <p>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）</p>			日本国実用新案公報	1922 - 1996年	日本国公開実用新案公報	1971 - 2023年	日本国実用新案登録公報	1996 - 2023年	日本国登録実用新案公報	1994 - 2023年							
日本国実用新案公報	1922 - 1996年																
日本国公開実用新案公報	1971 - 2023年																
日本国実用新案登録公報	1996 - 2023年																
日本国登録実用新案公報	1994 - 2023年																
<p>C. 関連すると認められる文献</p> <table border="1"> <thead> <tr> <th>引用文献の カテゴリー*</th> <th>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</th> <th>関連する 請求項の番号</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>X Y A</td> <td>WO 2021/132491 A1 (株式会社トクヤマ) 01.07.2021 (2021 - 07 - 01) [0061]-[0062], [0095]-[0105]</td> <td>1-4, 6-8 5</td> </tr> <tr> <td>X Y A</td> <td>WO 2013/094058 A1 (国立大学法人東京農工大学) 27.06.2013 (2013 - 06 - 27) [0020]-[0037], [0054]-[0081]</td> <td>6, 7 1-4, 6-8 5</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>KUMAGAI, Yoshinao et al., Preparation of a Freestanding AlN Substrate from a Thick AlN Layer Grown by Hydride Vapor Phase Epitaxy on a Bulk AlN Substrate Prepared by Physical Vapor Transport, Applied Physics Express, 2012, 5, pp.055504(1) - 055504(3) Fig.4, Table1</td> <td>1-8</td> </tr> <tr> <td>A</td> <td>US 2019/0145020 A1 (BONDOKOV Robert T.) 16.05.2019 (2019 - 05 - 16) 全文</td> <td>1-8</td> </tr> </tbody> </table>			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 A	WO 2021/132491 A1 (株式会社トクヤマ) 01.07.2021 (2021 - 07 - 01) [0061]-[0062], [0095]-[0105]	1-4, 6-8 5	X Y A	WO 2013/094058 A1 (国立大学法人東京農工大学) 27.06.2013 (2013 - 06 - 27) [0020]-[0037], [0054]-[0081]	6, 7 1-4, 6-8 5	A	KUMAGAI, Yoshinao et al., Preparation of a Freestanding AlN Substrate from a Thick AlN Layer Grown by Hydride Vapor Phase Epitaxy on a Bulk AlN Substrate Prepared by Physical Vapor Transport, Applied Physics Express, 2012, 5, pp.055504(1) - 055504(3) Fig.4, Table1	1-8	A	US 2019/0145020 A1 (BONDOKOV Robert T.) 16.05.2019 (2019 - 05 - 16) 全文	1-8
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 A	WO 2021/132491 A1 (株式会社トクヤマ) 01.07.2021 (2021 - 07 - 01) [0061]-[0062], [0095]-[0105]	1-4, 6-8 5															
X Y A	WO 2013/094058 A1 (国立大学法人東京農工大学) 27.06.2013 (2013 - 06 - 27) [0020]-[0037], [0054]-[0081]	6, 7 1-4, 6-8 5															
A	KUMAGAI, Yoshinao et al., Preparation of a Freestanding AlN Substrate from a Thick AlN Layer Grown by Hydride Vapor Phase Epitaxy on a Bulk AlN Substrate Prepared by Physical Vapor Transport, Applied Physics Express, 2012, 5, pp.055504(1) - 055504(3) Fig.4, Table1	1-8															
A	US 2019/0145020 A1 (BONDOKOV Robert T.) 16.05.2019 (2019 - 05 - 16) 全文	1-8															
<p><input checked="" type="checkbox"/> C欄の続きにも文献が列挙されている。 <input checked="" type="checkbox"/> パテントファミリーに関する別紙を参照。</p>																	
<p>* 引用文献のカテゴリー</p> <p>“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的な技術水準を示すもの</p> <p>“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</p> <p>“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）</p> <p>“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献</p> <p>“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</p> <p>“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの</p> <p>“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</p> <p>“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</p> <p>“&amp;” 同一パテントファミリー文献</p>																	
<p>国際調査を完了した日</p> <p>07.03.2023</p>		<p>国際調査報告の発送日</p> <p>28.03.2023</p>															
<p>名称及びあて先</p> <p>日本国特許庁(ISA/JP) 〒100-8915 日本国 東京都千代田区霞が関三丁目4番3号</p>		<p>権限のある職員（特許庁審査官）</p> <p>▲高▼橋 真由 4G 4490</p> <p>電話番号 03-3581-1101 内線 3416</p>															

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
A	JP 2014-181178 A (ナイトライド ソリューションズ インコーポレイテッド) 29.09.2014 (2014 - 09 - 29) 全文	1-8

国際調査報告  
 パテントファミリーに関する情報

国際出願番号

PCT/JP2023/000869

引用文献			公表日	パテントファミリー文献			公表日
WO	2021/132491	A1	01.07.2021	US	2022/0364267	A1	
					[0097], [0139]-[0155]		
				KR	10-2022-0118998	A	
				TW	202130863	A	
-----							
WO	2013/094058	A1	27.06.2013	US	2014/0346638	A1	
					[0025]-[0044], [0061]-		
					[0089]		
				EP	2796596	A1	
				CN	103975098	A	
				KR	10-2014-0104438	A	
				CN	111621852	A	
-----							
US	2019/0145020	A1	16.05.2019	WO	2019/094742	A1	
					全文		
				DE	112018005414	T	
				CN	111630630	A	
-----							
JP	2014-181178	A	29.09.2014	US	2014/0264388	A1	
					全文		
				EP	2784191	A1	
				CN	104047054	A	
				KR	10-2014-0113583	A	
				TW	201443302	A	
-----							