

(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
2012年9月27日(27.09.2012)



(10) 国際公開番号
WO 2012/128375 A1

- (51) 国際特許分類:
C30B 29/38 (2006.01) C30B 19/12 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2012/057662
- (22) 国際出願日: 2012年3月16日(16.03.2012)
- (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 2011-062059 2011年3月22日(22.03.2011) JP
- (71) 出願人(米国を除く全ての指定国について): 日本碍子株式会社(NGK Insulators, Ltd.) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号 Aichi (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人(米国についてのみ): 今井 克宏 (IMAI, Katsuhiko) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 岩井 真 (IWAI, Makoto) [JP/JP]; 〒

4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 下平 孝直 (SHIMODAIRA, Takanao) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 坂井 正宏 (SAKAI, Masahiro) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 東原周平 (HIGASHIHARA, Shuhei) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 平尾 崇行 (HIRAO, Takayuki) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町2番56号日本碍子株式会社内 Aichi (JP).

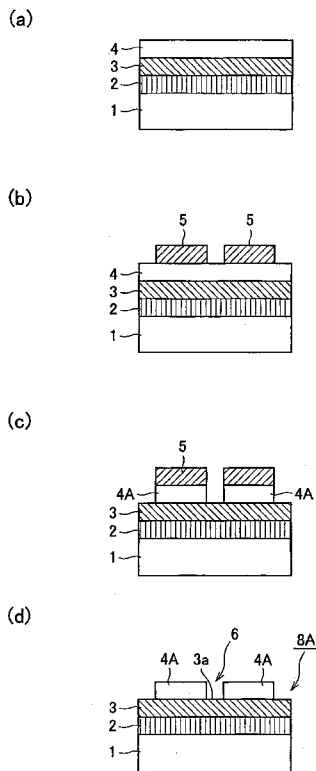
- (74) 代理人: 細田 益稔, 外 (HOSODA, Masutoshi et al.); 〒1080074 東京都港区高輪一丁目5番4号常和高輪ビル7階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS,

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR PRODUCING GALLIUM NITRIDE LAYER AND SEED CRYSTAL SUBSTRATE USED IN SAME

(54) 発明の名称: 窒化ガリウム層の製造方法およびこれに用いる種結晶基板

第1図



(57) Abstract: A gallium nitride layer is produced by flux growth using a seed crystal substrate. A seed crystal substrate (8A) comprises a support substrate (1); multiple seed crystal layers 4A that are formed from gallium nitride single crystals and are separate from one another; a low-temperature buffer layer (2) formed from a group III metal nitride disposed between the seed crystal layers (4A) and the support substrate; and an exposed layer (3) formed from aluminum nitride single crystals or aluminum gallium nitride single crystals that is exposed in the spaces between the adjacent seed crystal layers (4A). A gallium nitride layer is grown by the flux method on a seed crystal layer.

(57) 要約: 種結晶基板を用いてフラックス法によって窒化ガリウム層を製造する。種結晶基板8Aが、支持基板1、窒化ガリウム単結晶からなり、互いに分離された複数の種結晶層4A、種結晶層4Aと支持基板との間に設けられたIII族金属窒化物からなる低温バッファー層2、および隣接する種結晶層4Aの隙間に露出し、窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる露出層3を備えている。種結晶層上にフラックス法によって窒化ガリウム層を育成する。

WO 2012/128375 A1



JP, 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, QA, RO, RS, RU, RW, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

シア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラ

添付公開書類:

— 国際調査報告 (条約第 21 条(3))

明細書

窒化ガリウム層の製造方法およびこれに用いる種結晶基板

発明の属する技術分野

- 5 本発明は、窒化ガリウム層の育成方法およびこれに用いる種結晶基板に関するものである。

背景技術

- 10 窒化ガリウム (G a N) 薄層結晶は、優れた青色発光素子として注目を集めており、発光ダイオードにおいて実用化され、光ピックアップ用の青紫色半導体レーザー素子としても期待されている。近年においては、携帯電話などに用いられる高速 I C チップなどの電子デバイスを構成する半導体層としても注目されている。

- 15 GaN や AlN の種結晶層をサファイアなどの単結晶基板上に堆積させてテンプレート基板を得、テンプレート基板上に窒化ガリウム単結晶を育成する方法が報告されている。

- 20 しかし、基板上に M O C V D 法で窒化ガリウム (GaN) 種結晶層を気相成長させ、その上に窒化ガリウム単結晶をフラックス法で成長させた場合、熱膨張差が原因で、育成した単結晶厚層にクラックが発生する。このため、クラック防止策として、育成した単結晶を基板から自然剥離させることによって、単結晶に加わる応力を低減し、クラックを防止する技術が注目されている。

- 25 特許第 4422473 号では、窒化物テンプレート基板の窒化物層内部に空隙を形成し、Na フラックス法にて G a N を結晶成長させた後、空隙近傍でフラックス法成長部分をテンプレートから分離 (剥離) させている。しかし、この方法では、工程が複雑であって生産性が低い。また、窒化物層の凹加工を窒化物層の途中で止める必要があり、制御が困難である。このため、空隙形状にバラ

ツキが生じ、窒化ガリウム単結晶の剥離の再現性が悪い。しかも、全面 MOCVD-GaN 薄膜上に液相成長するので、転位はさほど減らない。

5 また、特許第 4422473 号の他の実施形態では、窒化物テンプレート表面にサファイアが露出した凹部と、窒化物からなる凸部を形成したものを種基板として用い、Na フラックス法にて GaN を結晶成長させた後、凹部に形成された空隙部の近傍でフラックス法成長部分をテンプレートから分離（剥離）させている。しかし、サファイア露出部があると、窒化ガリウム単結晶をフラックス法で液相成長させる際の再現性が悪い。

10 特開 2005-12171 では、窒化物テンプレート基板の表面にマスクを形成したものを種基板として用い、Na フラックス法にて GaN を結晶成長させることで転位密度が小さくなる領域を形成させている。しかし、この方法では、育成した窒化ガリウム単結晶の剥離の再現性が悪く、また剥離してもクラックが発生しやすい。更に、単結晶には、周期状に転位密集部があり、全面は使えない。

15 特開 2005-12171 の他の実施形態では、サファイア基板の表面にマスクを形成し、窓部に窒化物層を形成させたものを種基板として用い、Na フラックス法にて GaN を結晶成長させることで、転位密度が小さくなる領域を形成させている。しかし、この方法では、育成した窒化ガリウム単結晶の剥離の再現性が悪く、また剥離してもクラックが発生しやすい。更に、単結晶には、周期状に転位密集部があり、全面は使えない。

20 また、特開 2005-12171 の他の実施形態では、サファイア基板が露出した凹部と窒化物からなる凸部を形成したものを種基板として用い、Na フラックス法にて GaN を結晶成長させることで、転位密度が小さくなる領域を形成させている。この方法では、サファイア露出部があり、窒化ガリウム単結晶の液相成長時の再現性が悪い。

25 なお、特許第 4493427 号には、AlN 単結晶層の製層方法が記載されている。

更に、サファイア基板上に低温バッファ層を形成し、その上に種結晶層を

形成し、種結晶層上に窒化ガリウム単結晶を育成することを提案した。この方法では、単結晶育成後の冷却時の応力をトリガーにして、単結晶を剥離させる（特開 2009-184847）。

5 発明の開示

本発明の課題は、種結晶基板上に GaN 層をフラックス法で育成するのに際して、育成した GaN 層がクラックを生ずることなしに自然剥離し易いようにし、できるだけ広い面積にわたって GaN 層を再現性よく育成し、かつ転位密度が低く結晶品質が良い GaN 層を得ることである。

10 本発明は、種結晶基板を用いてフラックス法によって窒化ガリウム層を製造する方法であって、

種結晶基板が、支持基板、窒化ガリウム単結晶からなり、互いに分離された複数の種結晶層、種結晶層と支持基板との間に設けられた III 族金属窒化物からなる低温バッファー層、および隣接する種結晶層の隙間に露出し、窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる露出層を備えており、種結晶層上にフラックス法によって窒化ガリウム層を育成することを特徴とする。

また、本発明は、フラックス法によって窒化ガリウム層を育成するための種結晶基板であって、

20 支持基板、窒化ガリウム単結晶からなり、互いに分離された複数の種結晶層、種結晶層と支持基板との間に設けられた III 族金属窒化物からなる低温バッファー層、および隣接する種結晶層の隙間に露出し、窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる露出層を備えていることを特徴とする。

25 本発明によれば、育成した GaN 層がクラックを生ずることなしに自然剥離し易く、種結晶層の広い面積にわたって GaN 層を再現性よく育成でき、かつ

転位密度が低く結晶品質が良いGaN層を得ることができる。

図面の簡単な説明

図1(a)～図1(d)は、本発明の一実施形態に係る種結晶基板8Aの各
5 製造工程を示す模式図である。

図2は、種結晶基板8A上に窒化ガリウム単結晶7を育成した状態を示す模
式図である。

図3(a)～(d)は、本発明の他の実施形態に係る種結晶基板8Bの各製
造工程を示す模式図である。

10 図4は、種結晶基板8B上に窒化ガリウム単結晶7を育成した状態を示す模
式図である。

図5(a)～図5(d)は、本発明の更に他の実施形態に係る種結晶基板8
Cの各製造工程を示す模式図である。

15 図6(a)～図6(d)は、本発明の更に他の実施形態に係る種結晶基板8
Dの各製造工程を示す模式図である。

図7(a)～図7(d)は、本発明の更に他の実施形態に係る種結晶基板8
Eの各製造工程を示す模式図である。

図8(a)～図8(d)は、比較例に係る種結晶基板の各製造工程を示す模
式図である。

20 図9(a)～図9(d)は、他の比較例に係る種結晶基板の各製造工程を示
す模式図である。

図10(a)～図10(d)は、更に他の比較例に係る種結晶基板の各製造
工程を示す模式図である。

25 発明を実施するための形態

図1、図2の例では、低温バッファ層上に窒化アルミニウム単結晶または

窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる中間層を備えており、中間層が露出層を含む。

すなわち、図 1 (a) に示すように、支持基板 1 の表面に、III 族窒化物からなる低温バッファ層 2 を形成する。次いで、低温バッファ層 2 上に、
5 窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる中間層 3 を形成する。ここで、低温バッファ層 2 と中間層 3 とはパターニングされていない。次いで、中間層 3 上に、窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層 4 を形成する。

次いで、図 1 (b) に示すように、種結晶層 4 上にマスク 5 を形成し、図 1
10 (c) に示すように、種結晶層 4 をパターニングして、互いに分離された複数の種結晶層 4 A を形成する。隣接する種結晶層 4 A 間には隙間が生ずる。次いで、図 1 (d) に示すようにマスク 5 を除去し、種結晶層 4 A を露出させる。このとき、隣接する種結晶層 4 A の隙間 6 から、下地となっている中間層 3 の露出層 3 a が露出する。

15 次いで、図 2 に示すように、種結晶層 4 A 上に、フラックス法によって窒化ガリウム単結晶 7 をエピタキシャル成長させる。この際、層 7 は、種結晶 4 A の隙間 6 上を横断して互いにつながるように成長し、一体の層 7 を形成する。この後、冷却時に、層 7 が低温バッファ層 2 に沿って支持基板 1 から容易に剥離するので、単結晶の自立基板を得ることができる。

20 また、他の実施形態においては、低温バッファ層上に窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる中間層を設けると共に、中間層と低温バッファ層との間に窒化ガリウム単結晶層を設ける。図 3、図 4 は、この実施形態に係るものである。

すなわち、図 3 (a) に示すように、支持基板 1 の表面に、III 族窒化物
25 からなる低温バッファ層 2 を形成する。次いで、低温バッファ層 2 上に、窒化ガリウム単結晶層 9、窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガ

リウム単結晶からなる中間層 3 を順次形成する。ここで、低温バッファ層 2、窒化ガリウム単結晶層 9、中間層 3 はパターンニングされていない。次いで、中間層 3 上に、窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層 4 を形成する。

次いで、図 3 (b) に示すように、種結晶層 4 上にマスク 5 を形成し、図 3 (c) に示すように、種結晶層 4 をパターンニングして、互いに分離された複数の種結晶層 4 A を形成する。隣接する種結晶層 4 A 間には隙間が生ずる。次いで、図 3 (d) に示すようにマスク 5 を除去し、種結晶層 4 A を露出させる。このとき、隣接する種結晶層 4 A の隙間 6 から、下地となっている中間層 3 の露出層 3 a が露出する。

10 次いで、図 4 に示すように、種結晶層 4 A 上に、フラックス法によって窒化ガリウム単結晶 7 をエピタキシャル成長させる。この際、層 7 は、種結晶 4 A の隙間 6 上を横断して互いにつながるように成長し、一体の層 7 を形成する。この後、冷却時に、層 7 が低温バッファ層 2 に沿って支持基板 1 から容易に剥離するので、単結晶の自立基板を得ることができる。

15 また、好適な実施形態においては、低温バッファ層が複数の分離部に分離されており、隣接する分離部の隙間が種結晶層間の隙間と連通しており、支持基板の表面に露出層が成層されている。図 5 はこの実施形態に係るものである。

図 5 (a) に示すように、支持基板 1 の表面に、III 族窒化物からなる低温バッファ層 2 を形成する。次いで、低温バッファ層 2 上に、中間層を設けることなく、窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層 4 を形成する。次いで、種結晶層 4 上にマスク 5 を形成し、図 5 (b) に示すように、種結晶層 4、低温バッファ層 2 をパターンニングして、互いに分離された複数の種結晶層 4 A および低温バッファ層 2 A を形成する。隣接する種結晶層 4 A 間、隣接する低温バッファ層 2 A 間には隙間 6 が生ずる。

25 次いで、図 5 (c) に示すように、隙間 6 内に、窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる露出層 1 3 を成層する。次いで、

マスク 5 を除去し、種結晶層 4 A を露出させる。このとき、隣接する種結晶層 4 A、隣接する分離部 2 A の隙間 6 から、露出層 1 3 の露出面が露出する。

次いで、例えば図 2 に示すように、種結晶層 4 A 上に、フラックス法によって窒化ガリウム単結晶 7 をエピタキシャル成長させる。この際、層 7 は、種結晶 4 A 層の隙間 6 上を横断して互いにつながるように成長し、一体の層 7 を形成する。この後、冷却時に、層 7 が低温バッファ層 2 A に沿って支持基板 1 から容易に剥離するので、単結晶の自立基板を得ることができる。

また、他の実施形態においては、低温バッファ層が複数の分離部に分離されており、隣接する分離部の隙間が種結晶層間の隙間と連通しており、支持基板がサファイアからなり、支持基板に表面窒化処理によって露出層が形成されている。図 6 はこの実施形態に係るものである。

図 6 (a) に示すように、支持基板 1 の表面に、III 族窒化物からなる低温バッファ層 2 を形成する。次いで、低温バッファ層 2 上に、中間層を設けることなく、窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層 4 を形成する。次いで、種結晶層 4 上にマスク 5 を形成し、図 6 (b) に示すように、種結晶層 4、低温バッファ層 2 をパターンニングして、互いに分離された複数の種結晶層 4 A および低温バッファ層 2 A を形成する。隣接する種結晶層 4 A 間、隣接する低温バッファ層 2 A 間には隙間 6 が生ずる。

次いで、図 6 (c) に示すように、隙間 6 内において、支持基板 1 を表面窒化し、窒化アルミニウム単結晶からなる露出層 2 3 を成層する。次いで、マスク 5 を除去し、種結晶層 4 A を露出させる。このとき、隣接する種結晶層 4 A、隣接する分離部 2 A の隙間 6 から、露出層 1 3 の露出面が露出する。

次いで、例えば図 2 に示すように、種結晶層 4 A 上に、フラックス法によって窒化ガリウム単結晶 7 をエピタキシャル成長させる。この際、層 7 は、種結晶 4 A 層の隙間 6 上を横断して互いにつながるように成長し、一体の層 7 を形成する。この後、冷却時に、層 7 が低温バッファ層 2 A に沿って支持基板 1

から容易に剥離するので、単結晶の自立基板を得ることができる。

また、他の実施形態においては、低温バッファ層と支持基板との間に設けられた窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶層を備えており、低温バッファ層は複数の分離部に分離され、隣接する分離部の
5 隙間が種結晶層間の隙間と連通しており、隙間に前記窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶層が露出している。図7はこの実施形態に係るものである。

図7(a)に示すように、支持基板1の表面に、窒化アルミニウム単結晶層または窒化アルミニウムガリウム単結晶層3、低温バッファ層2、窒化ガリ
10 ウム単結晶からなる種結晶層4を形成する。

次いで、図7(b)に示すように、種結晶層4上にマスク5を形成し、図7(c)に示すように、種結晶層4、低温バッファ層2をパターニングして、互いに分離された複数の種結晶層4Aおよび低温バッファ層2Aを形成する。隣接する種結晶層4A間、隣接する低温バッファ層2A間には隙間6が
15 生じ、隙間6から、下地となっている窒化アルミニウム単結晶層または窒化アルミニウムガリウム単結晶層3の露出層3aが露出する。

次いで、例えば図2に示すように、種結晶層4A上に、フラックス法によって窒化ガリウム単結晶7をエピタキシャル成長させる。この際、層7は、種結晶4A層の隙間6上を横断して互いにつながるように成長し、一体の層7を形
20 成する。この後、冷却時に、層7が低温バッファ層2Aに沿って支持基板1から容易に剥離するので、単結晶の自立基板を得ることができる。

本発明においては、支持基板1は、III族窒化物の成長が可能であるかぎり、特に限定されない。サファイア、シリコン単結晶、SiC単結晶、MgO単結晶、ZnO単結晶、スピネル(MgAl₂O₄)、LiAlO₂、LiGaO₂、LaAlO₃、LaGaO₃、NdGaO₃等のペロブスカイト型複合
25 酸化物を例示できる。また：組成式[A_{1-y}(Sr_{1-x}Ba_x)_y][(Al

育成温度よりも、種結晶層の育成温度の方が高い方が好ましい。この温度差は、
100℃以上であることが好ましく、200℃以上であることが更に好ましい。

低温バッファ層の育成温度は、400℃以上とすることが好ましく、450℃
5 以上とすることが更に好ましく、また、750℃以下とすることが好ましく、700℃
以下とすることが更に好ましい。単結晶層の育成温度は、950℃
以上とすることが好ましく、1050℃以上とすることが更に好ましく、また、
1200℃以下とすることが好ましく、1150℃以下とすることが更に好ま
しい。

種結晶層を有機金属気相成長法によって製造する場合、原料は、トリメチル
10 ガリウム（TMG）及びアンモニアとすることが好ましい。

低温バッファ層は前述したように相対的に低温で形成されるので、次の種
結晶層を育成するときに低温バッファ層の成分が蒸発し、低温バッファ層
に空隙を生成することがある。この場合には、種結晶層の結晶品質が劣化し、
その結果、単結晶7の結晶品質も劣化するおそれがある。このため、好適な実
15 施形態においては、低温バッファ層2を形成した後に、低温バッファ層2
の構成成分の蒸発を防止するための蒸発防止層を形成する。これによって、種
結晶層を育成する段階で低温バッファ層2内に空隙が形成されることを防
止し、種結晶層の結晶品質の劣化を抑えることができる。こうした蒸発防止層
の材質としては、Ga₂N、AlN、AlGa₂Nなどを例示できる。

20 蒸発防止層は、前述したような気相成長法で育成できる。蒸発防止層の育成
温度は、400～900℃であることが好ましい。蒸発防止層の育成温度と中
間層の育成温度との差は、0～100℃であることが更に好ましい。

本実施形態において特に好ましくは、低温バッファ層の材質がInGa₂N、
InAlNまたはInAlGa₂Nであり、蒸発しやすい成分がInである。そ
25 して、蒸発防止層の材質がGa₂N、AlNまたはAlGa₂Nである。このよう
な蒸発防止層は、InGa₂N、InAlNまたはInAlGa₂Nの形成時にI

n原料ガスの供給だけを停止することによって容易に育成できる。

また、低温バッファ層が超格子構造からなる場合には、超格子構造内の薄層に蒸発防止層としての機能をもたせることができるので、やはり中間層内の空隙の形成を防止できる。この場合には、蒸発防止層は特に必要としない。

- 5 露出層、特に露出層を含む中間層は、窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる。ここで、窒化アルミニウムガリウム単結晶におけるアルミニウムの原子比率は、30%以上が好ましい。

- 露出層、中間層の形成方法は気相成長法が好ましいが、有機金属化学気相成長(MOCVD: Metal Organic Chemical Vapor Deposition)法、10 ハイドライド気相成長(HVPE)法、パルス励起堆積(PXD)法、MBE法、昇華法を例示できる。有機金属化学気相成長法が特に好ましい。

- 露出層、中間層の厚さは特に限定されないが、10nm以上が好ましく、また、500nm以下が好ましく、250nm以下が更に好ましい。また、露出層、中間層の育成温度は、950℃以上とすることが好ましく、1050℃以上15 とすることが更に好ましく、また、1200℃以下とすることが好ましい。

露出層、中間層を有機金属気相成長法によって製造する場合、原料は、トリメチルアルミニウム、トリメチルガリウム、アンモニアとすることが好ましい。

- 支持基板の窒化処理によって露出層23を形成する場合には、支持基板の材質はサファイアが好ましい。また窒化処理を行うには、窒素含有雰囲気下で20 支持基板をアニール処理する。このときのアニール温度は800~1200℃が好ましい。

- 各種結晶層の最小幅は、単結晶の品質向上という観点からは、600μm以下が好ましく、400μm以下が更に好ましい。また、単結晶育成時に単結晶7を安定して保持するという観点からは、10μm以上が好ましく、25μm25 以上が更に好ましい。ここで、種結晶層の最小幅とは、種結晶層の輪郭の任意の二点を結ぶ直線の中で、最短の直線の長さを言う。したがって、種結晶層が

帯状ないしストライプ状の場合にはその短辺の長さであり、種結晶層が円形の場合には直径であり、種結晶層が正多角形の場合には一对の対向片の間隔である。

種結晶層の隙間 6 の間隔は、単結晶の品質向上という観点からは、250 μ m 以上が好ましく、500 μ m 以上が好ましい。この間隔は、隣り合う種結晶層から成長した各単結晶が互いに接続して一体化するのを促進するという観点からは、4000 μ m 以下が好ましく 3000 μ m 以下が更に好ましい。

本発明においては、種結晶層上にフラックス法によって窒化ガリウム層 7 を育成する。この際、フラックスの種類は、窒化ガリウムを生成可能である限り、特に限定されない。好適な実施形態においては、アルカリ金属とアルカリ土類金属の少なくとも一方を含むフラックスを使用し、ナトリウム金属を含むフラックスが特に好ましい。

ガリウム原料物質としては、ガリウム単体金属、ガリウム合金、ガリウム化合物を適用できるが、ガリウム単体金属が取扱いの上からも好適である。

フラックス法における III 族窒化物単結晶の育成温度や育成時の保持時間は特に限定されず、目的とする単結晶の種類やフラックスの組成に応じて適宜変更する。一例では、ナトリウムまたはリチウム含有フラックスを用いて窒化ガリウム単結晶を育成する場合には、育成温度を 800 ~ 1000 $^{\circ}$ C とすることができる。

フラックス法では、窒素原子を含む分子を含むガス雰囲気下で単結晶を育成する。このガスは窒素ガスが好ましいが、アンモニアでもよい。雰囲気の全圧は特に限定されないが、フラックスの蒸発を防止する観点からは、1 MPa 以上が好ましく、3 MPa 以上が更に好ましい。ただし、圧力が高いと装置が大がかりとなるので、雰囲気の全圧は、200 MPa 以下が好ましく、50 MPa 以下が更に好ましい。雰囲気中の窒素以外のガスは限定されないが、不活性ガスが好ましく、アルゴン、ヘリウム、ネオンが特に好ましい。

実施例

(実施例 1)

図 1、図 2 を参照しつつ説明した方法にしたがって、窒化ガリウム単結晶を
5 育成した。

具体的には、直径 3 インチの c 面サファイア基板 1 の表面に、AIN 低温バッ
ファー層 2、AIN 単結晶からなる中間層 3、窒化ガリウム単結晶からなる種結
晶層 4 を MOCVD 法によりエピタキシャル成長させた。原料および育成温度を以
下に示す。

10 (AIN 低温バッファー層 2)

原料：トリメチルアルミニウム、アンモニア

育成温度：500°C

(AIN 単結晶からなる中間層 3)

原料：トリメチルアルミニウム、アンモニア 育成温度：1200°C

15 (窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層 4)

原料：トリメチルガリウム、アンモニア

育成温度：1050°C

この多層膜テンプレートの中中央部 $\phi 54\text{mm}$ の領域に、フォトリソグラフィ
技術を用い、幅 0.5 mm、周期 0.55 mm のストライプ状 SiO_2 マスク層
20 5 を形成した。このとき、ストライプの方向は窒化ガリウム単結晶 4 の m 軸
方向に平行とした。ICP-RIE 装置により、塩素及び三塩化ホウ素混合ガス
を用いて、下地の中間層 3 が露出するまで種結晶層 4 をエッチングした。 SiO_2
マスク層 5 をバッファードフッ酸を用いて除去し、純水で洗浄した。

この様に作製した種結晶基板 8 A は、 $\phi 3$ インチの種結晶基板の内周 54mm
25 の領域に、幅 50 μm の窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層 4A が形成され
ており、その他の領域は中間層 3 が露出していた。次いで、フラックス法によ

って、種結晶基板上に窒化ガリウム単結晶 7 を育成した。具体的には、内径 80 mm、高さ 45 mm の円筒平底坩堝を用い、育成原料（金属 Ga60 g、金属 Na60 g）をグローブボックス内で坩堝内に充填した。この坩堝を耐熱金属製の容器に入れて密閉した後、結晶育成炉の揺動および回転が可能な台上に設置した。870 °C・4.0MPa まで昇温加圧後、100 時間保持し溶液を揺動および回転することで攪拌しながら結晶成長させた。その後 10 時間かけて室温まで徐冷した。その後、結晶育成炉から育成容器を取り出し、エタノールを用いて、フラックスを除去し、成長した窒化ガリウム結晶板を回収した。

得られた窒化ガリウム結晶板 7 は、種結晶基板中央部 ϕ 54 mm の領域に全面成長しており、厚さは約 1.5 mm であった。また、サファイア基板と全面剥離、自立化し、クラックは確認されなかった。転位密度は全面で $10^4 / \text{cm}^2$ 以下であった。同様の実験での全面成長率は 100 %、クラックフリー率は 95 % であり、窒化ガリウム結晶板回収率は 95 % であった。

（実施例 2）

図 3、図 4 を参照しつつ説明した方法にしたがって、窒化ガリウム結晶板を作製した。ただし、直径 3 インチの c 面サファイア基板 1 の表面に、GaN 低温バッファ層 2、窒化ガリウム単結晶層 9、AlN 単結晶からなる中間層 3、窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層 4 を MOCVD 法によりエピタキシャル成長させた。それ以外は実施例 1 と同様に実施した。

20 （GaN 低温バッファ層 2）

原料：トリメチルガリウム、アンモニア 育成温度：550°C

（窒化ガリウム単結晶層 9）

原料：トリメチルガリウム、アンモニア

育成温度：1050°C

25 （AlN 単結晶からなる中間層 3）

原料：トリメチルアルミニウム、アンモニア

育成温度：1200℃

(窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層4)

原料：トリメチルガリウム、アンモニア

育成温度：1050℃

- 5 得られた窒化ガリウム結晶板7は、種結晶基板中央部φ54mmの領域に全面成長しており、厚さは約1.5mmであった。また、サファイア基板と全面剥離、自立化し、クラックは確認されなかった。転位密度は全面で $10^4/cm^2$ 以下であった。同様の実験での全面成長率は100%、クラックフリー率は95%であり、窒化ガリウム結晶板回収率は95%であった。

10 (実施例3)

図5を参照しつつ説明した方法にしたがって、種結晶基板8Cを作製した。

具体的には、直径3インチのc面サファイア基板1の表面に、GaN低温バッファー層2、窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層4をMOCVD法によりエピタキシャル成長させた。

15 (GaN低温バッファー層2)

原料：トリメチルガリウム、アンモニア

育成温度：550℃

(窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層4)

原料：トリメチルガリウム、アンモニア

20 育成温度：1050℃

- このGaNテンプレート中央部φ54mmの領域にフォトリソグラフィ技術を用い、幅0.5mm、周期0.55mmのストライプ状SiO₂マスク層5を形成した。このとき、ストライプの方向は窒化ガリウム単結晶層4のm軸方向に平行とした。ICP-RIE装置により、塩素及び三塩化ホウ素混合ガスを用いて、下地のサファイア基板1が露出するまで単結晶層をエッチングした。
- 25 その後、露出したサファイア上にAlN単結晶からなる露出層13をMOCVD法

によりエピタキシャル成長させた。SiO₂ マスク層 5 をバッファードフッ酸を用いて除去し、純水で洗浄した。

この様に作製した種結晶基板 8 C は、φ 3 インチの種結晶基板の内周 54mm の領域に、幅 50 μm の窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層が形成されており、その他の領域は AlN 単結晶層となっていた。

次いで、実施例 1 と同様にして、窒化ガリウム結晶板を作製した。

得られた窒化ガリウム結晶板は、種結晶基板中央部 φ 54mm の領域に全面成長しており、厚さは約 1.5mm であった。また、サファイア基板と全面剥離、自立化し、クラックは確認されなかった。転位密度は全面で $10^4 / \text{cm}^2$ 以下であった。同様の実験での全面成長率は 95%、クラックフリー率は 95% であり、窒化ガリウム結晶板回収率は 90% であった。

(実施例 4)

図 6 を参照しつつ説明した方法にしたがって、窒化ガリウム単結晶を育成した。

15 具体的には、直径 3 インチの c 面サファイア基板 1 の表面に、GaN 低温バッファ層 2、窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層 4 を MOCVD 法によりエピタキシャル成長させた。

(GaN 低温バッファ層 2)

原料：トリメチルガリウム、アンモニア 育成温度：550°C

20 (窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層 4)

原料：トリメチルガリウム、アンモニア

育成温度：1050°C

この GaN テンプレートの中央部 φ 54mm の領域にフォトリソグラフィ技術を用い、幅 0.5mm、周期 0.55mm のストライプ状 SiO₂ マスク層 5 を形成した。このとき、ストライプの方向は窒化ガリウム単結晶層の m 軸方向に平行とした。ICP-RIE 装置により、塩素及び三塩化ホウ素混合ガスを用

いて、下地のサファイア基板 1 が露出するまで単結晶層をエッチングした。その後、窒素ガス雰囲気中でアニール処理することでサファイア表面を窒化し、AlN からなる露出層 2 3 を形成させた。SiO₂ マスク層 5 をバッファードフッ酸を用いて除去し、純水で洗浄した。

- 5 この様に作製した種結晶基板 8 D は、φ 3 インチの種結晶基板の内周 54mm の領域に、幅 50 μm の窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層が形成されており、その他の領域は AlN 層となっていた。

次いで、実施例 1 と同様にして、窒化ガリウム結晶板を作製した。

- 得られた窒化ガリウム結晶板は、種結晶基板中央部 φ 54 mm の領域に全面
10 成長しており、厚さは約 1.5 mm であった。また、サファイア基板と全面剥離、自立化し、クラックは確認されなかった。転位密度は全面で 10⁴/cm² 以下であった。同様の実験での全面成長率は 95%、クラックフリー率は 95% であり、窒化ガリウム結晶板回収率は 90% であった。

(比較例 1)

- 15 図 8 を参照しつつ説明する方法にしたがって、窒化ガリウム単結晶を育成した。

- 具体的には、図 8 (a) に示すように、直径 3 インチの c 面サファイア基板 1 の表面に、窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層 4 を MOCVD 法によりエピタキシャル成長させた。この GaN テンプレートの中央部 φ 54mm の領域にフォ
20 トリソグラフィ技術を用い、幅 0.5 mm、周期 0.55 mm のストライプ状 SiO₂ マスク層 5 を形成した。このとき、ストライプの方向は窒化ガリウム単結晶 4 の m 軸方向に平行とした。ICP-RIE 装置により、塩素及び三塩化ホウ素混合ガスを用いて、下地のサファイアが露出するまで窒化ガリウム単結晶層をエッチングした。SiO₂ マスク層 5 をバッファードフッ酸を用いて除去し、
25 純水で洗浄した。

この様に作製した種結晶基板は、φ 3 インチの種結晶基板の内周 54mm の

領域に、幅 $50\ \mu\text{m}$ の窒化ガリウム単結晶からなる種結晶層 4 A が形成されており、その他の領域はサファイアが露出していた。

次いで、実施例 1 と同様にして、窒化ガリウム結晶板を作製した。

得られた窒化ガリウム結晶板は、種結晶基板中央部 $\phi 54\ \text{mm}$ の領域の約 25 0 % の領域で部分的に成長しており、厚さは約 $1.5\ \text{mm}$ であった。また、サファイア基板とは全面剥離しておらず、窒化ガリウム結晶板にクラックが確認された。転位密度は全面で $10^4 / \text{cm}^2$ 以下であった。同様の実験での全面成長率は 10 %、クラックフリー率は 30 % であり、窒化ガリウム結晶板回収率は 3 % であった。

10 (比較例 2)

特許第 4422473 号の図 1 記載の方法にしたがって、窒化ガリウム単結晶を育成した。

具体的には、直径 3 インチの c 面サファイア基板の表面に、窒化ガリウム単結晶層を MOCVD 法によりエピタキシャル成長させた。この GaN テンプレートの中央部 $\phi 54\ \text{mm}$ の領域に、フォトリソグラフィ技術を用い、幅 3 ミクロン、間隔 12 ミクロンのストライプ状レジストパターンを形成した。このとき、ストライプの方向は窒化ガリウム単結晶層の m 軸方向に平行とした。

続いてこのレジストパターンをマスクとして窒化ガリウム単結晶層に対してドライエッチングをおこなうことによって、GaN テンプレートの中央部 $\phi 54\ \text{mm}$ の領域の窒化ガリウム単結晶層の上部に断面幅が約 3 ミクロンの凸部と断面幅が約 12 ミクロンの凹部からなるストライプパターン形状を形成した。

次に、電子サイクロトロン共鳴スパッタ法を用いて窒化シリコンからなる薄層を堆積させた。次に、ストライプ状レジストパターンをリフトオフさせ、凸部の上面に窒化ガリウム単結晶層の c 面が露出した状態、及び凹部は窒化シリコンからなる薄層が堆積した状態とした。

次に、露出した凸部上面の窒化ガリウム単結晶層を種結晶として、MOCVD法にて窒化ガリウム単結晶層を成層し、内部に空隙を備えた種結晶基板を作製した。

次いで、実施例1と同様にして、窒化ガリウム結晶板を作製した。

- 5 得られた窒化ガリウム結晶板は、種結晶基板中央部φ54mmの領域に全面成長しており、厚さは約1.5mmであった。また、種結晶基板内部の空隙部近傍で剥離したが、窒化ガリウム結晶板にクラックが見られた。転位密度は全面で $10^5 / \text{cm}^2$ 台であった。同様の実験での全面成長率は100%、クラックフリー率は30%であり、窒化ガリウム結晶板回収率は30%であった。

10 (比較例3)

図9を参照しつつ説明する方法にしたがって、窒化ガリウム単結晶を育成した。

- 具体的には、直径3インチのc面サファイア基板1の表面に、窒化ガリウム単結晶層4、AlN単結晶からなる種結晶層3をMOCVD法によりエピタキシャル成長させた。次に、フォトリソグラフィ技術を用い、この多層膜テンプレートの全面をレジストで覆い、且つ中央部φ54mmの領域に、幅50ミクロン、間隔500ミクロンのストライプ状のレジスト非被覆部があるレジストパターン5を形成した。このとき、ストライプの方向は窒化ガリウム単結晶層のm軸方向に平行とした。

- 20 続いてこのレジストパターン5をマスクとしてAlN種結晶層3に対して窒化ガリウム単結晶層4が露出するまでドライエッチングをおこない、レジストパターンマスクを除去し、種結晶基板(図9(d))を作製した。この種結晶基板においては、多層膜テンプレートの中央部φ54mmの領域に幅約50ミクロンのストライプ状窒化ガリウム単結晶層露出部4aがあり、その他の領域は
- 25 AlN単結晶の種結晶層3Aである。

次いで、実施例1と同様にして窒化ガリウム単結晶を育成した。

得られた窒化ガリウム結晶板は、種結晶基板中央部 $\phi 54\text{ mm}$ の領域に全面成長しており、厚さは約 1.5 mm であった。また、窒化ガリウム結晶板は種結晶基板から剥離せず、クラックが発生していた。転位密度は全面で $10^5 / \text{cm}^2$ 台であった。同様の実験での全面成長率は 100% 、クラックフリー率は 0% であり、窒化ガリウム結晶板回収率は 0% であった。

(比較例 4)

図 10 を参照しつつ説明した方法にしたがって、窒化ガリウム単結晶を育成した。

具体的には、直径 3 インチの c 面サファイア基板 1 の表面に、AIN 単結晶からなる種結晶層 3 を MOCVD 法によりエピタキシャル成長させた。次に、フォトリソグラフィ技術を用い、この AIN テンプレートの全面がレジストで覆われ、且つ中央部 $\phi 54\text{ mm}$ の領域に、幅 $50\text{ }\mu\text{m}$ 、間隔 $500\text{ }\mu\text{m}$ のストライプ状のレジスト非被覆部があるレジストパターンを形成した。このとき、ストライプの方向は窒化ガリウム単結晶層の m 軸方向に平行とした。続いて、レジストパターンをマスクとして AIN 単結晶層に対してサファイアが露出するまでドライエッチングをおこなった。次に、サファイア露出部に窒化ガリウム単結晶層 14 を MOCVD 法によりエピタキシャル成長させ、レジストパターンマスクを除去し、AIN テンプレートの中央部 $\phi 54\text{ mm}$ の領域に幅約 $50\text{ }\mu\text{m}$ のストライプ状窒化ガリウム単結晶層露出部 3A があり、その他の領域は AIN 単結晶層 14 である種結晶基板を作製した。

次いで、実施例 1 と同様にして、窒化ガリウム結晶板を作製した。

得られた窒化ガリウム結晶板は、種結晶基板中央部 $\phi 54\text{ mm}$ の領域に全面成長しており、厚さは約 1.5 mm であった。また、窒化ガリウム結晶板は種結晶基板から剥離せず、クラックが発生していた。転位密度は全面で $10^5 / \text{cm}^2$ 台であった。同様の実験での全面成長率は 100% 、クラックフリー率は 0% であり、窒化ガリウム結晶板回収率は 0% であった。

以下、実施例、比較例の結果を表1にまとめる。

表1

	全面 成長率 (%)	クラック フリー率 (%)	転位密度	結晶回収率 (%)
実施例1	100	95	$< 10^4 / \text{cm}^2$	95
実施例2	100	95	$< 10^4 / \text{cm}^2$	95
実施例3	95	95	$< 10^4 / \text{cm}^2$	90
実施例4	95	95	$< 10^4 / \text{cm}^2$	90
比較例1	10	30	$< 10^4 / \text{cm}^2$	3
比較例2	100	30	$10^5 / \text{cm}^2$ 台	30
比較例3	100	0	$10^5 / \text{cm}^2$ 台	0
比較例4	100	0	$10^5 / \text{cm}^2$ 台	0

5

本発明の特定の実施形態を説明してきたけれども、本発明はこれら特定の実施形態に限定されるものではなく、請求の範囲の範囲から離れることなく、種々の変更や改変を行いながら実施できる。

請求の範囲

1. 種結晶基板を用いてフラックス法によって窒化ガリウム層を製造する方法であって、
- 5 前記種結晶基板が、支持基板、窒化ガリウム単結晶からなり、互いに分離された複数の種結晶層、前記種結晶層と前記支持基板との間に設けられた III 族金属窒化物からなる低温バッファー層、および隣接する前記種結晶層の隙間に露出し、窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる露出層を備えており、前記種結晶層上にフラックス法によって窒化ガリウム層を育成することを特徴とする、窒化ガリウム層の製造方法。
- 10 2. 前記低温バッファー層上に窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる中間層を備えており、前記中間層が前記露出層を含むことを特徴とする、請求項 1 記載の方法。
3. 前記中間層と前記低温バッファー層との間に窒化ガリウム単結晶層を備えていることを特徴とする、請求項 2 記載の方法。
- 15 4. 前記低温バッファー層が複数の分離部に分離されており、隣接する前記分離部の隙間が前記種結晶層間の隙間と連通しており、前記支持基板の表面に前記露出層が成層されていることを特徴とする、請求項 1 記載の方法。
5. 前記低温バッファー層が複数の分離部に分離されており、隣接する前記分離部の隙間が前記種結晶層間の隙間と連通しており、前記支持基板に表面窒化処理によって前記露出層が形成されていることを特徴とする、請求項 1 記載の方法。
- 20 6. 前記低温バッファー層と前記支持基板との間に設けられた窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶層を備えており、前記低温バッファー層が複数の分離部に分離されており、隣接する前記分離部の隙間が前記種結晶層間の隙間と連通しており、前記隙間に前記窒化アルミニウム単
- 25

結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶層が露出することで前記露出層を構成していることを特徴とする、請求項 1 記載の方法。

7. フラックス法によって窒化ガリウム層を育成するための種結晶基板であって、

5 支持基板、窒化ガリウム単結晶からなり、互いに分離された複数の種結晶層、前記種結晶層と前記支持基板との間に設けられた III 族金属窒化物からなる低温バッファ層、および隣接する前記種結晶層の隙間に露出し、窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる露出層を備えていることを特徴とする、種結晶基板。

10 8. 前記低温バッファ層上に窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶からなる中間層を備えており、前記中間層が前記露出層を含むことを特徴とする、請求項 7 記載の種結晶基板。

9. 前記中間層と前記低温バッファ層との間に窒化ガリウム単結晶層を備えていることを特徴とする、請求項 8 記載の種結晶基板。

15 10. 前記低温バッファ層が複数の分離部に分離されており、隣接する前記分離部の隙間が前記種結晶層間の隙間と連通しており、前記支持基板の表面に前記露出層が成層されていることを特徴とする、請求項 7 記載の種結晶基板。

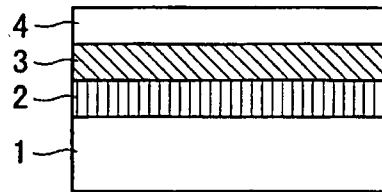
20 11. 前記低温バッファ層が複数の分離部に分離されており、隣接する前記分離部の隙間が前記種結晶層間の隙間と連通しており、前記支持基板に表面窒化処理によって前記露出層が形成されていることを特徴とする、請求項 7 記載の種結晶基板。

25 12. 前記低温バッファ層と前記支持基板との間に設けられた窒化アルミニウム単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶層を備えており、前記低温バッファ層が複数の分離部に分離されており、隣接する前記分離部の隙間が前記種結晶層間の隙間と連通しており、前記隙間に前記窒化アルミニウム

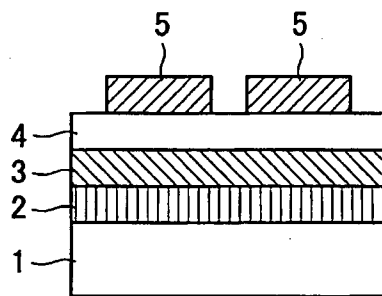
単結晶または窒化アルミニウムガリウム単結晶層が露出することで前記露出層を構成していることを特徴とする、請求項7記載の種結晶基板。

第 1 図

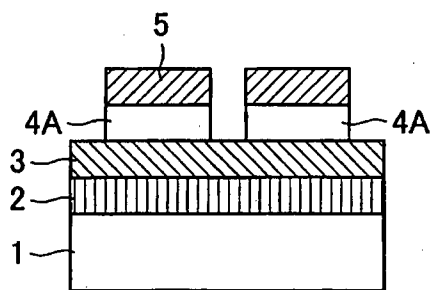
(a)



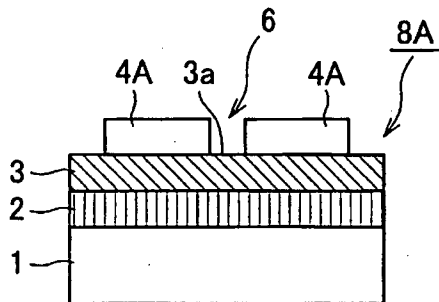
(b)



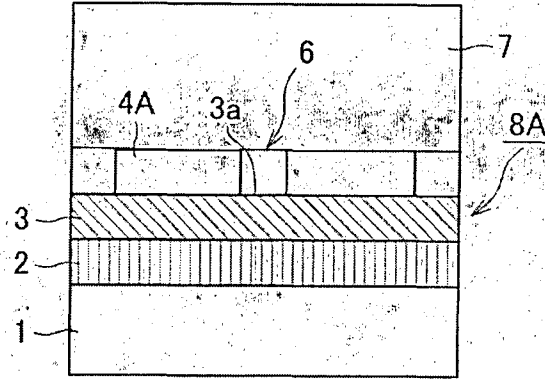
(c)



(d)

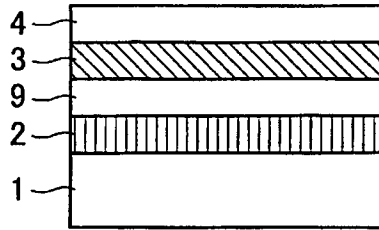


第 2 图

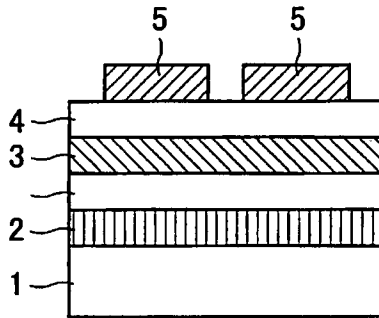


第 3 図

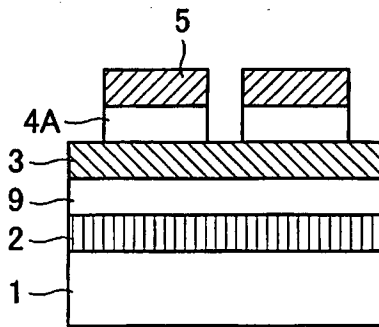
(a)



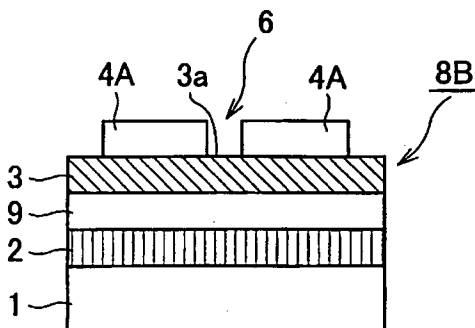
(b)



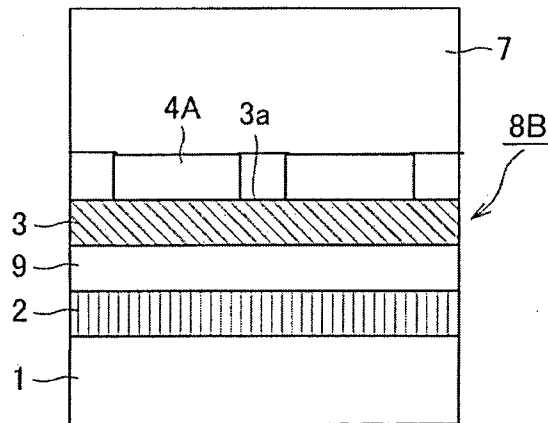
(c)



(d)

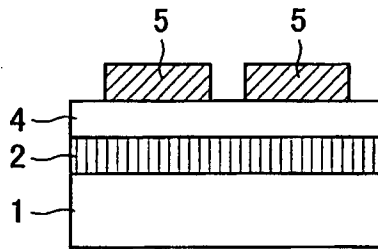


第 4 図

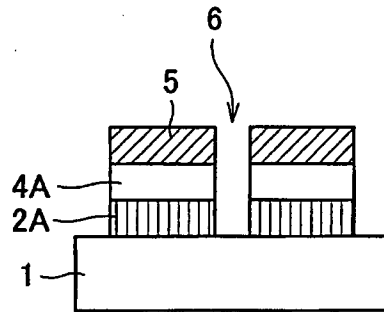


第 5 図

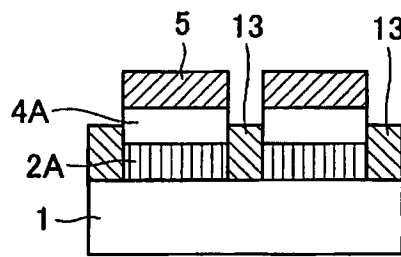
(a)



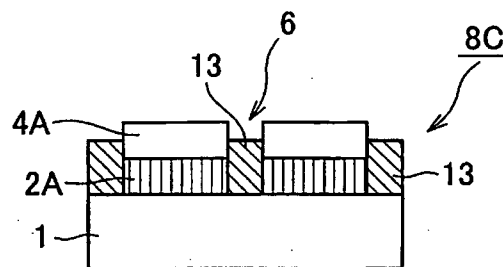
(b)



(c)

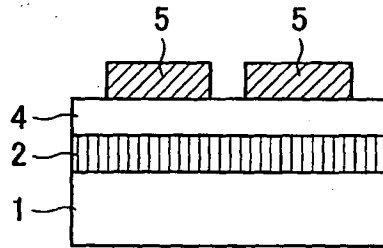


(d)

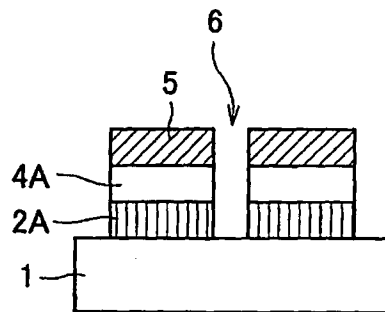


第 6 図

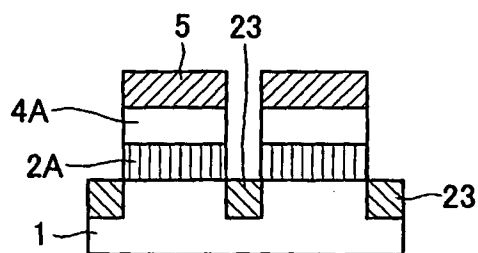
(a)



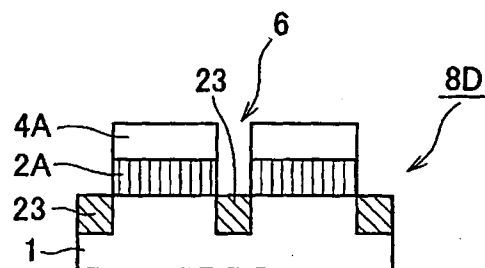
(b)



(c)

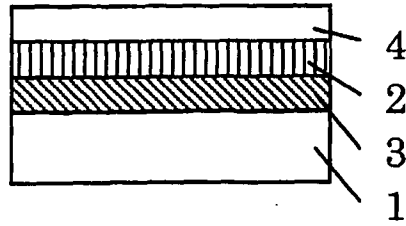


(d)

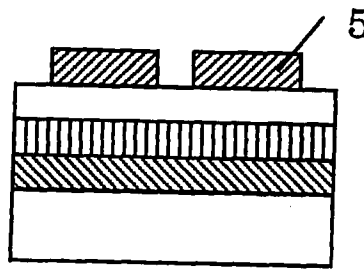


第 7 図

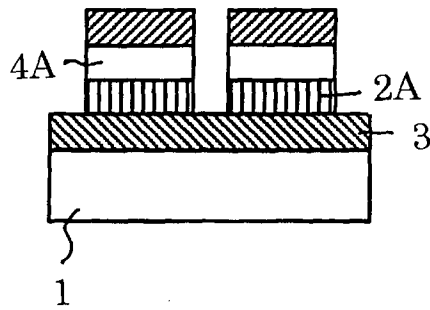
(a)



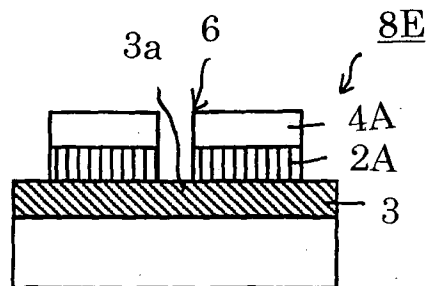
(b)



(c)

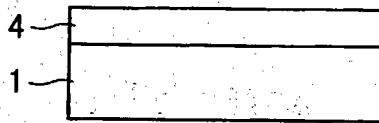


(d)

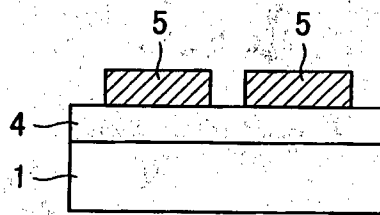


第 8 図

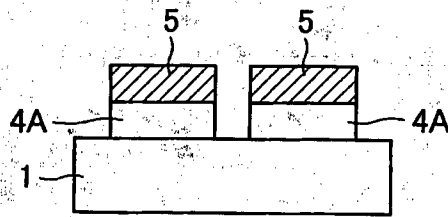
(a)



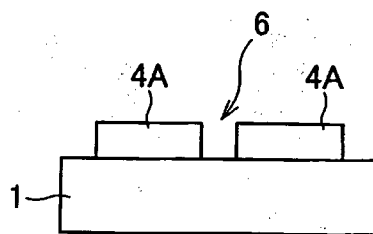
(b)



(c)

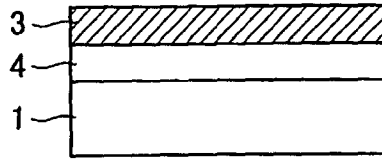


(d)

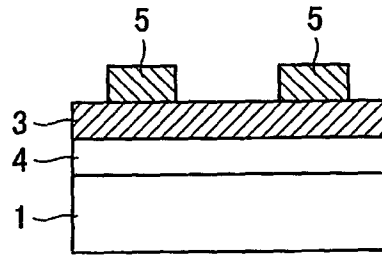


第 9 図

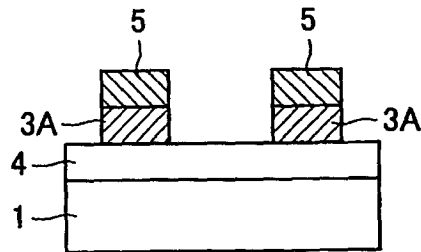
(a)



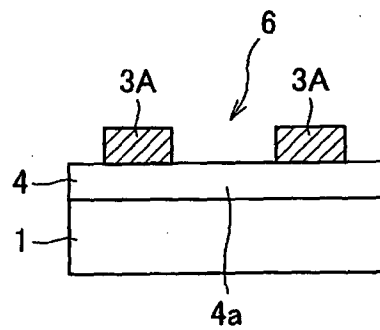
(b)



(c)

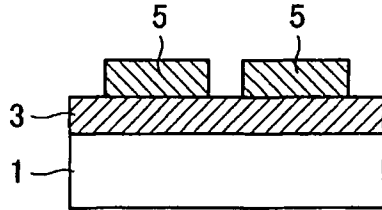


(d)

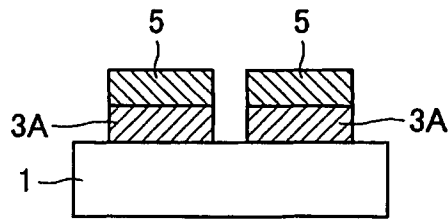


第10図

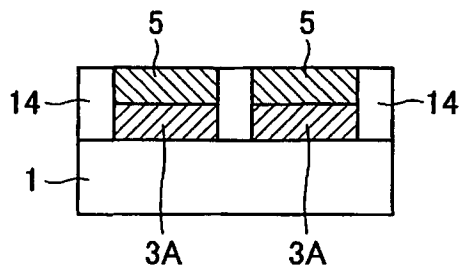
(a)



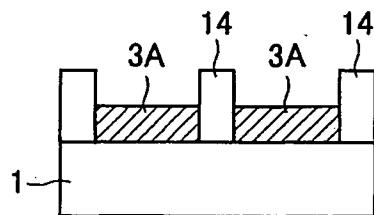
(b)



(c)



(d)



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/057662

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
C30B29/38 (2006.01) i, C30B19/12 (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)
C30B29/38, C30B19/00-19/12

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 1996-2012
Kokai Jitsuyo Shinan Koho 1971-2012 Toroku Jitsuyo Shinan Koho 1994-2012

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	<i>JP 2003-163370 A (Toyoda Gosei Co., Ltd.), 06 June 2003 (06.06.2003), paragraphs [0043] to [0050]; fig. 1 & US 2004/0123796 A1 & EP 1367150 A1 & WO 2002/064864 A1 & DE 60233386 D & TW 544930 B</i>	1-12
A	<i>JP 2010-163288 A (NGK Insulators, Ltd.), 29 July 2010 (29.07.2010), claims; paragraphs [0017] to [0023]; fig. 1, 2 (Family: none)</i>	1-12

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
13 June, 2012 (13.06.12)

Date of mailing of the international search report
03 July, 2012 (03.07.12)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2012/057662

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	WO 2010/007983 A1 (Sumitomo Electric Industries, Ltd.), 21 January 2010 (21.01.2010), paragraphs [0039] to [0046]; fig. 4 & JP 2010-42976 A & US 2011/0100292 A1 & CN 102099896 A	1-12
A	JP 4422473 B2 (Panasonic Corp.), 24 February 2010 (24.02.2010), paragraphs [0107] to [0110]; fig. 9 & US 2004/0147096 A1 & EP 1439572 A2 & CN 1518138 A	1-12
A	JP 2005-12171 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 13 January 2005 (13.01.2005), claims 2, 4, 10; paragraphs [0048] to [0066]; fig. 1 to 4 & US 2004/0183090 A1	1-12
A	JP 2009-184847 A (NGK Insulators, Ltd.), 20 August 2009 (20.08.2009), claims; paragraphs [0012] to [0014]; fig. 1, 2 (Family: none)	1-12
A	JP 4493427 B2 (NGK Insulators, Ltd.), 30 June 2010 (30.06.2010), paragraphs [0019] to [0028] (Family: none)	1-12

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C30B29/38(2006.01)i, C30B19/12(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. C30B29/38, C30B19/00-19/12

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	1971-2012年
日本国実用新案登録公報	1996-2012年
日本国登録実用新案公報	1994-2012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)

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 2003-163370 A (豊田合成株式会社) 2003. 06. 06, [0043]-[0050], 図1 & US 2004/0123796 A1 & EP 1367150 A1 & WO 2002/064864 A1 & DE 60233386 D & TW 544930 B	1-12 1-12
A	JP 2010-163288 A (日本碍子株式会社) 2010. 07. 29, 特許請求の範囲, [0017]-[0023], 図1, 2 (ファミリーなし)	

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

13. 06. 2012

国際調査報告の発送日

03. 07. 2012

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)

安齋 美佐子

電話番号 03-3581-1101 内線 3416

4G

9439

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
A	WO 2010/007983 A1 (住友電気工業株式会社) 2010. 01. 21, [0039] - [0046], 図4 & JP 2010-42976 A & US 2011/0100292 A1 & CN 102099896 A	1-12
A	JP 4422473 B2 (パナソニック株式会社) 2010. 02. 24, [0107] - [0110], 図9 & US 2004/0147096 A1 & EP 1439572 A2 & CN 1518138 A	1-12
A	JP 2005-12171 A (松下電器産業株式会社) 2005. 01. 13, 請求項2, 4, 10, [0048] - [0066], 図1 - 4 & US 2004/0183090 A1	1-12
A	JP 2009-184847 A (日本碍子株式会社) 2009. 08. 20, 特許請求の範囲, [0012] - [0014], 図1, 2 (ファミリーなし)	1-12
A	JP 4493427 B2 (日本碍子株式会社) 2010. 06. 30, [0019] - [0028] (ファミリーなし)	1-12