

(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
2013 年 11 月 28 日(28.11.2013)



(10) 国際公開番号
WO 2013/176291 A1

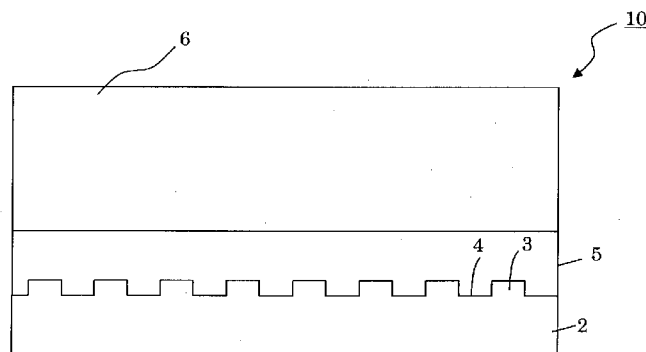
- (51) 国際特許分類:
H01L 21/02 (2006.01) H01L 33/22 (2010.01)
H01L 33/12 (2010.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2013/064818
- (22) 国際出願日: 2013 年 5 月 22 日(22.05.2013)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
61/650,599 2012 年 5 月 23 日(23.05.2012) US
- (71) 出願人: 日本碍子株式会社(NGK INSULATORS, LTD.) [JP/JP]; 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号 Aichi (JP).
- (72) 発明者: 岩井 真(IWAI, Makoto); 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 号日本碍子株式会社内 Aichi (JP). 倉岡 義孝(KURAOKA, Yoshitaka); 〒4678530 愛知県名古屋市瑞穂区須田町 2 番 5 6 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, BN, 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, 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, PA, 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.
- (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), ユーロシヤ (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI

[続葉有]

(54) Title: COMPOSITE SUBSTRATE, LIGHT-EMITTING ELEMENT, AND METHOD FOR MANUFACTURING COMPOSITE SUBSTRATE

(54) 発明の名称: 複合基板、発光素子および複合基板の製造方法

第 4 図



(57) Abstract: A plurality of protrusions (3) are provided on a c-plane (2a) of a sapphire substrate (2). Next, a gas-phase process is used to grow an underlayer (5) comprising a gallium-nitride crystal on the c-plane (2a). Next, the flux method is used to provide a gallium-nitride crystal layer (6) upon the underlayer (5). The protrusions (3) are hexagonal columns or hexagonal pyramids. The difference in the growth speed of the gallium-nitride crystal around the protrusions (3) is utilized to reduce the stress between the sapphire and the gallium-nitride crystal, reducing the formation of cracks due to said stress.

(57) 要約: サファイア基板 2 の c 面 2 a に複数の凸部 3 を設ける。次いで、c 面 2 a 上に気相法によって窒化ガリウム結晶からなる下地層 5 を育成する。次いで、下地層 5 上にフラックス法によって窒化ガリウム結晶層 6 を設ける。凸部 3 が六角柱形状または六角錐形状である。凸部 3 の周辺における窒化ガリウム結晶の成長速度の差異を利用し、サファイアと窒化ガリウム結晶との間の応力を緩和し、これによるクラックやひび割れを低減する。

WO 2013/176291 A1

WO 2013/176291 A1



(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))

明細書

複合基板、発光素子および複合基板の製造方法

1. 発明の属する技術分野

5 本発明は、サファイア基板上に窒化ガリウム結晶を育成した複合基
発光素子および複合基板の製造方法に関するものである。

2. 関連技術

サファイア基板上に窒化ガリウム結晶を育成する方法は、例えば
10 2000-21772、特開 2001-168028 に記載されている。

発明の要約

表面が平坦な c 面サファイア基板の上に MOCVD 法などにより GaN
成膜して作製した種基板を用いて、さらにその上にフラックス法によ
長温度が 800℃～900℃で GaN 層を 10～100 μm の厚さに成長させると
15 表面が低転位密度の GaN 層を持つ GaN テンプレートを作製できる。

本発明者は、この GaN テンプレートを用いて、再度 MOCVD 法により
構造を作製しようと試みた。しかし、この際、高温下(>1000℃)にて GaN
テンプレートの GaN 層がひび割れたり、クラックが発生するという問題
った。

20 この原因は、フラックス法では成長温度 800℃～900℃にて厚膜成
るが、MOCVD 法適用時には 1000℃以上にまで温度を上げるため、厚膜
層が応力に耐えられなかったことにあったと考えた。

本発明の課題は、サファイア基板の c 面上に窒化ガリウム結晶を
して複合基板を得る場合に、窒化ガリウム結晶とサファイアとの間の
25 力を緩和する構造を提供することである。

本発明は、c 面に複数の凸部が設けられたサファイア基板、およ

2

記 c 面に結晶成長した窒化ガリウム結晶を備えており、凸部が六角柱形状または六角錐形状であることを特徴とする、複合基板に係るものである。

また、本発明は、前記複合基板、および前記窒化ガリウム結晶上に設けられた発光素子構造を有することを特徴とする、発光素子に係るものである。

また、本発明は、

サファイア基板の c 面に複数の凸部を設け、この際凸部が六角柱形状または六角錐形状である凸部形成工程、

前記 c 面上に気相法によって窒化ガリウム結晶からなる下地層を育成する下地層形成工程、および

前記下地層上にフラックス法によって窒化ガリウム結晶層を設ける育成工程

を有することを特徴とする、複合基板の製造方法に係るものである。

本発明によれば、窒化ガリウム層とサファイア基板との熱膨張係数差による応力が抑制され、低反り量で GaN 複合基板が得られる。

この GaN 複合基板を気相法、特に有機金属気相成長 (MOCVD) 法に適用した際、高温下 (例えば 1000℃ を超える温度) でも、窒化ガリウム層にクラックやひび割れが発生しないことを見いだした。

20 図面の簡単な説明

図 1 は、サファイア基板 1 上に気相法によって窒化ガリウムからなる下地層 5 を形成した状態を示す。

図 2 は、図 1 の部分拡大図である。

図 3 は、図 1 の部分拡大図である。

図 4 は、本発明の実施形態に係る複合基板 10 を示す。

図 5 は、本発明の実施形態に係る発光素子 20 を示す。

3

図 6 は、平面的に見て六角形の凸部 3 A をサファイア基板 2 A の c 面 2 a に形成した例を示す。

図 7 は、平面的に見て六角形の凸部 3 B をサファイア基板 2 B の c 面 2 a に形成した例を示す。

5 図 8 は、平面的に見て円形の凸部 3 C をサファイア基板 2 C の c 面 2 a に形成した例を示す。

図 9 は、図 2 の微構造において、凸部の周期 D および凸部の対角線幅 E を示す模式図である。

10 好適な実施形態

図 1 に示すように、サファイア基板 2 の c 面 2 a には、複数の凸部 3 が突出している。凸部 3 は、好ましくは平面的に見て規則的に配列されている。これは、平面的に見て少なくとも 1 方向へと向かって規則的に配列されており、平面的に見て 2 方向以上に向かって規則的に配列されてい
15 もよい。好ましくは、凸部が、c 面内に平面的に見て 6 回回転対称に配列されている。

凸部の間隔は一定間隔であってよい。

凸部は、六角錐、六角柱の形態を有する。

隣接する凸部 3 の隙間 4 は平坦面であってよく、また傾斜面になっ
20 てもよい。

この c 面 2 a 上に、好ましくは気相法によって窒化ガリウム結晶からなる下地層 5 を形成する。

下地層 5 の育成時には、窒化ガリウム結晶の成長速度が、サファイアの面方位によって異なる。このため、種基板作製時には、凸部 3 の上面と
25 側壁面とでサファイアの面方位が異なっており、このため各面方位からの窒化ガリウムの成長速度に差が生ずる。この結果、凸部と凸部の間に転位

4

1 3 が集中して形成される層が生じ、応力を緩和する構造が形成される(図 2 参照)。または、成膜条件によっては、凸部と凸部の間に、窒化ガリウムが生成しない空隙 1 4 が形成され、この層を介在して応力を緩和する構造が形成される(図 3 参照)。これが、後の高温処理時に、サファイアと窒化ガリウムとの間の熱応力に起因するクラックやひび割れを抑制する。凸部の形状、寸法、密度を設計することにより、応力緩和の度合いを制御できる。

応力の低減により G a N 複合基板(テンプレート)の反りを抑制でき、LED 作製時にウェハー面内の発光スペクトルの均一性向上を期待できる。

10 種基板 1 作製時に、横方向成長による転位の合体消滅によって、窒化ガリウムの結晶性が改善され、種基板の GaN 層の結晶品質が良好になる(この考え方は、Epitaxially Lateral Overgrowth; ELO または ELOG 法として知られている)。

この結果、図 4 のように種基板上にフラックス法によって窒化ガリウム結晶層 6 を形成して G a N 複合基板 1 0 を得たとき、その窒化ガリウム結晶層 6 の結晶品質が良好となる。

G a N 複合基板 1 0 上に気相法、好ましくは有機金属気相成長(MOCVD)法により半導体発光ダイオード(LED)を作製すると、LED 内部の転位密度が G a N テンプレートと同等となることが知られている。

20 従って、本発明によって得られた図 4 の G a N 複合基板上に、図 5 に示すように半導体発光素子構造 7 を形成すると、転位密度の少ない発光層が得られることから、発光素子 2 0 の内部量子効率が向上する。

このように本発明を適用することによる光取出し効率の向上は、上記のような発光の内部量子効率向上による相乗効果が期待できる。

25 なお、発光素子構造 7 は、例えば、n 型半導体層、この n 型半導体層上に設けられた発光領域およびこの発光領域上に設けられた p 型半導体層

を備えている。

図 5 の例では、窒化ガリウム層 6 上に、n 型コンタクト層 8、n 型クラッド層 9、活性層 10、p 型クラッド層 11、p 型コンタクト層 12 が形成されており、発光素子構造 7 を構成する。

5 このとき、凸形状が、一般的に市場で流通している P S S（パターンド・サファイア・サブストレート）に採用されている円形状よりも、六角柱、ないし六角錘形状の方が応力を緩和する効果が高いことを見いだした。この理由としては定かではないが、以下のような成長原理に基づくと推定した。

10 サファイア基板上に、まず、六角柱ないし六角錐以外の c 面が露出しているところから G a N の核が形成され、これが成長して島状となり、これがつながりながら一様な膜となる。六角柱ないし六角錘状の側面は、G a N の m 面が成長するが、成長速度は c 面に比べて遅く、さらに、凸形状の頂点は、周りに比べて平坦であったり、c 面から傾斜しているために核が
15 形成されにくく、六角柱ないし六角錘状の側面よりもさらに成長速度が遅く、結果として空隙が発生しやすい。空隙が発生しなくとも、側面からの成長部と、底部からの成長部との合体する界面は不連続となりがちで、応力が緩和されやすい。

例えば、図 6 に示すサファイア基板 2 A においては、c 面 2 a に複数
20 の凸部 3 A が形成されている。各凸部 3 A は、それぞれ平面的に見て六角形をしており、かつ凸部 3 A が六回回転対称となるように配置されている。すなわち、各凸部 3 A は、基板の c 面上から見たときに六角形をなしている。凸部を構成する六角柱や六角錐を平面的に見た六角形の対角線幅 E は、本発明の観点からは、 $2\mu\text{m}$ 以上とすることが好ましく、また、 $10\mu\text{m}$
25 以下とすることが好ましい。また、凸部の周期 D は、本発明の観点からは、 $4\mu\text{m}$ 以上とすることが好ましく、また、 $20\mu\text{m}$ 以下とすることが好ま

しい。更に、 D/E は、本発明の観点からは、1以上とすることが好ましく、また、3以下とすることが好ましい。

図7に示すサファイア基板2Bにおいては、c面2aに複数の凸部3Bが形成されている。各凸部3Bは、それぞれ平面的に見て六角形をしており、かつ凸部3Bが六回回転対称となるように配置されている。すなわち、各凸部3Bは、基板のc面上から見たときに六角形をなしている。図7の例では、図6の例と比べて、対角線幅 E /周期 D 比率が大きくなっている。

(用途)

- 10 本発明の複合基板は、高品質であることが要求される技術分野、例えばポスト蛍光灯といわれている高演色性の白色LEDや高速高密度光メモリ用青紫レーザディスクなどに用いることができる。

(下地層の例)

- 15 下地層を構成する材質は、蛍光顕微鏡観察により黄色発光効果が認められる窒化ガリウムが好ましい。ここでいう、黄色発光とは、蛍光顕微鏡に付属している水銀ランプなどの紫外線により発光する波長550nm近傍にピークを有し、そのスペクトル半値幅が50～100nm程度のブロードなスペクトルを有するものである。場合によっては黄色というよりは、オレンジ色に近いこともある。

- 20 下地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、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。

- 25 黄色発光する窒化ガリウム結晶は、バンドからバンドへの励起子遷移(UV)に加えて、2.2～2.5eVの範囲にブロードなピークが現れる。これは、黄色発光(YL)または黄色帯(YB)と呼ばれている。

7

蛍光顕微鏡を用いることで、この範囲の黄色発光のみを励起し、黄色発光の有無を検出することができる。

こうした黄色発光は、窒素欠損のように結晶にもともとある自然欠陥に関与した輻射プロセスに起因する。こうした欠陥は発光中心となる。おそらくは、反応環境に由来するNi, Co, Cr, Tiなどの遷移元素等の不純物が窒化ガリウム内に取り込まれることで、黄色発光中心を形成しているものと考えられる。

こうした黄色発光する窒化ガリウム結晶は、例えば、特表2005-506271に例示されている。

10 好ましくは、黄色発光する窒化ガリウム結晶の転位密度が $10^8 \sim 10^9 / \text{cm}^2$ であり、(0002)面に対するX線測定 of 半値幅が250 arcsec以下、(10-12)面に対するX線測定 of 半値幅が350 arcsec以下である。

また、下地層の厚さは $1 \mu\text{m} \sim 5 \mu\text{m}$ が好ましい。

15 (液相法窒化ガリウム膜の好適例)

好適な実施形態においては、液相法窒化ガリウム膜は、蛍光顕微鏡測定の際に黄色発光しないものである。この窒化ガリウム膜は、蛍光顕微鏡測定において、以下のような発光をする場合がある。

20 青ないし、青白い発光 (スペクトル分析の結果、ピーク波長は450から460 nmであり、スペクトルの半値幅が30から50 nmという、ブロードな発光)

液相法窒化ガリウム結晶の厚さは限定されないが、 $50 \mu\text{m}$ 以上が好ましく、 $100 \mu\text{m}$ 以上が更に好ましい。厚さの上限は、厚さが厚いと反りが大きくなるため、製造上の観点からは0.2 mm以下が好ましい。

25 また、この液相法窒化ガリウム結晶は、好ましくは、c面の表面転位密度が $10^6 / \text{cm}^2$ 以下である。また、窒化ガリウム結晶が、遷移金属元素、

例えばTi、Fe、Co、CrまたはNiを含有していてもよい。さらに、ドナーおよび／またはアクセプターおよび／または磁氣的ドーパントを濃度 $10^{17}/\text{cm}^3$ から $10^{21}/\text{cm}^3$ で含有することが好ましい。

(液相法窒化ガリウム膜の加工)

- 5 複合基板は、そのままデバイス用部材として利用できる。しかし、用途によっては、窒化ガリウム膜の表面を研磨して研磨済みの窒化ガリウム膜を形成することができる。研磨方法は、例えば、固定砥石による研削（グラインディング）後に、ダイヤモンドスラリーを用いた精密研磨（ラッピング）を行い、さらに酸性またはアルカリ性のコロイダルシリカスラリー
- 10 を用いたCMP（メカノケミカルポリッシュ）が挙げられる。

また、液相法窒化ガリウム膜を研磨した後の厚さは、 $150\mu\text{m}$ 以下が好ましく、 $100\mu\text{m}$ 以下が更に好ましい。

- 例えば、複合基板を高演色性の白色LEDや自動車のヘッドライト用LED光源、純緑色などのディスプレイ用超高輝度LED・レーザーダイオードなどに用いるためには、成膜した窒化ガリウム膜の表面を研磨加工することが必要である。この際、窒化ガリウム膜の反りが小さいと、研磨定盤への貼り付けが容易になり、必要となる研磨量を減らすことができる。
- 15 また、窒化ガリウム膜の上に気相法などによって発光層を形成する場合、その発光層の品質が向上する。

20 (発光層)

複合基板上に気相法、好ましくは有機金属気相成長（MOCVD）法により半導体発光ダイオード（LED）を作製すると、LED内部の転位密度が複合基板と同等となる。

- 発光層の成膜温度は、成膜品質（表面ピット発生を抑制する）の観点から、 900°C 以上が好ましく、 1000°C 以上が更に好ましい。また、発光層中のIn組成を制御するという観点からは、発光層の成膜温度は、1
- 25

200℃以下が好ましく、1150℃以下が更に好ましい。

発光層の材質は、13族元素窒化物が好ましい。13族元素とは、IUPACが策定した周期律表による第13族元素のことである。13族元素は、具体的にはガリウム、アルミニウム、インジウム、タリウム等である。また、

- 5 添加剤としては、炭素や、低融点金属（錫、ビスマス、銀、金）、高融点金属（鉄、マンガン、チタン、クロムなどの遷移金属）が挙げられる。低融点金属は、ナトリウムの酸化防止を目的として添加する場合があります、高融点金属は、坩堝を入れる容器や育成炉のヒーターなどから混入する場合がある。

10

実施例

（実施例1）

（サファイア基板の加工）

- 直径2インチ、厚さ500μmのc面サファイア基板の表面にフォトリソグラフィを用いて、厚さ1μmのレジストをパターンニングした。レジストパターンは、対角線幅 $E = 4\mu\text{m}$ の六角柱が周期 $D = 6\mu\text{m}$ で、6回回転対称に配列されたパターンとした。これを塩素系ドライエッチング装置を用い、10分間エッチングすることによって、レジストが無い部分のサファイアを約1.5μmエッチングし、レジストがあった部分が六角柱状
- 15
- 20 凸部となった。レジスト残渣をリムーバーで除去した。

- これによって、図6に示すような形態のサファイア基板2Aを得た。すなわち、サファイア基板2Aのc面2aに複数の凸部3Aが形成されていた。各凸部3Aは、それぞれ六角柱形状をしており、かつ凸部3Aが6回回転対称となるように配置されていた。凸部を構成する六角柱を平面的に見た六角形の対角線幅 E を4μmとし、六角柱の周期 D を6μmとした。
- 25

（下地層の成膜）

MOCVD法を用いて、前記c面に複数の凸部が設けられたサファイア基板の上に、530℃にて、低温GaNバッファ層を40nm堆積させたのちに、1050℃にて、厚さ3μmのGaN膜を積層させた。室温まで自然冷却したのちに、基板の反りを測定したところ、GaNが成膜された面を上にした場合に凸形状となっており、平坦面においたときの最大高さー最小高さで定義される、2インチウェハー反りは、約20μmであった。

微分干渉顕微鏡により、サファイア基板の凸部と凸部の間に、微少な空隙（大きさ1μm前後）がまばらに発生していることが確認された。有機溶剤、超純水でそれぞれ10分間超音波洗浄した後に乾燥させて、これを種結晶基板とした。

（液相法GaN結晶成長）

次いで、種結晶基板の表面上にフラックス法によって窒化ガリウムを成長した。

アルミナ坩堝を用い、金属Gaと金属Naをモル比で18：82で秤量し、種結晶基板とともに、坩堝の底に配置した。

本実施例では、育成時間を20時間とすることで、180μm厚さの窒化ガリウム結晶を成長させた。基板の反りはサファイアが下になるように配置したとき、凸形状であり、平坦面においたときの最大高さー最小高さで定義される、2インチウェハー反りは、約250μmであった。

この窒化ガリウム結晶は、蛍光顕微鏡測定の際に黄色発光しないものであった。また、この窒化ガリウム結晶は、蛍光顕微鏡測定において、青白い発光をする場合があった。この発光の起源についてはよくわかっていないが、本製法特有のものである。発光波長は430から500nmまでのブロードなスペクトルであることがPLスペクトル測定によりわかっている。

（複合基板の作成）

成長した窒化ガリウム結晶を以下の工程で、研磨加工した。

固定砥粒の砥石による研削（グラインディング）によって面だしした後、ダイヤモンドスラリーなどの遊離砥粒を用いて研磨（ラッピング）し、その後、酸性やアルカリ性のCMPスラリーを用いて精密研磨（ポリッシュ）した。

窒化ガリウム結晶の研磨後の厚さは、本発明の観点からは、 $15\mu\text{m} \pm 5\mu\text{m}$ とした。研磨後のウェハの反りは、室温にて、約 $80\mu\text{m}$ であった。

これを、スクラブ洗浄（ブラシを用いたこすり洗い）し、超純水にて超音波洗浄した後に乾燥させて、LED構造成膜用の基板とした。

（LED構造の成膜）

MOCVD法により、以下の工程で、LED構造を成膜した。室温から、 1050°C まで約15分で昇温し、窒素と水素とアンモニアの混合雰囲気にて、15分保持してサーマルクリーニングを行った後、厚さ $2\mu\text{m}$ のn-GaN層を 1050°C で堆積させ、ついで 750°C に降温して、InGaN/GaNによる多重量子井戸（活性層）を10ペア堆積した。さらに、AlGaNによる電子ブロック層を $0.02\mu\text{m}$ 成長させ、その後、 1000°C に昇温してから、p-GaN（pクラッド層；厚さ 80nm ）、p-GaN（pコンタクト層；厚さ 20nm ）を堆積し、その後室温まで放冷した。

MOCVD炉より取り出して、目視にて観察したところ、クラックは観察されなかった。また、微分干渉顕微鏡で観察したところ、表面は平坦であることが確認された。

このウェハを用いて、通常のリソグラフィ工程にて、 0.3mm 角のLED素子を作成し、約 3.5V の電圧を電極に印加したところ、波長約 460nm の青色で発光することが確認できた。

(実施例 2)

レジスト厚さを $0.5 \mu\text{m}$ としたこと以外は実施例 1 と同様にして、塩素系ドライエッチングにより、直径 2 インチの c 面サファイア基板を約 $2 \mu\text{m}$ エッチングしたところ、凸部の形状が六角錘状となった。

- 5 この凹凸加工したサファイア基板を用いて、実施例 1 と同様に、下地層を成膜した。反りは、約 $20 \mu\text{m}$ であり、凸部と凸部の間に、 $1 \mu\text{m}$ ～数 μm の大きさの空隙が観察された。その後、実施例 1 と同様の工程にて、GaN 複合基板を作成し、ついで LED 構造を成膜した。

- 10 MOCVD 炉より取り出して、目視にて観察したところ、クラックは観察されなかった。また、微分干渉顕微鏡で観察したところ、表面は平坦であることが確認された。

このウェハーを用いて、通常のリソグラフィ工程にて、 0.3 mm 角の LED 素子を作成し、約 3.5 V の電圧を電極に印加したところ、波長約 460 nm の青色で発光することが確認できた。

15 (実施例 3)

凸部の周期 $D = 6 \mu\text{m}$ 、六角形の対角線幅 $E = 3 \mu\text{m}$ としたこと以外は実施例 1 と同様にして、塩素系ドライエッチングにより、直径 2 インチの c 面サファイア基板を約 $2 \mu\text{m}$ エッチングしたところ、凸部の形状が六角柱状となった。

- 20 この凹凸加工したサファイア基板を用いて、実施例 1 と同様に、下地層を成膜した。反りは、約 $25 \mu\text{m}$ であり、凸部と凸部の間に、 $1 \mu\text{m}$ ～数 μm の大きさの空隙が観察された。その後、実施例 1 と同様の工程にて、GaN 複合基板を作成し、ついで LED 構造を成膜した。

- 25 MOCVD 炉より取り出して、目視にて観察したところ、クラックは観察されなかった。また、微分干渉顕微鏡で観察したところ、表面は平坦であることが確認された。

このウェハーを用いて、通常の写真リソグラフィ工程にて、 $0.3\text{ }\mu\text{m}$ 角のLED素子を作成し、約 3.5 V の電圧を電極に印加したところ、波長約 460 nm の青色で発光することが確認できた。

(実施例4)

- 5 凸部の周期 $D = 12\text{ }\mu\text{m}$ 、六角形の対角線幅 $E = 4\text{ }\mu\text{m}$ とした以外は実施例1と同様にして、塩素系ドライエッチングにより、直径2インチのc面サファイア基板を約 $2\text{ }\mu\text{m}$ エッチングしたところ、凸部の形状が六角柱状となった。

- 10 この凹凸加工したサファイア基板を用いて、実施例1と同様に、下地層を成膜した。反りは、約 $30\text{ }\mu\text{m}$ であり、凸部と凸部の間に、 $1\text{ }\mu\text{m}$ ～数 μm の大きさの空隙が観察された。その後、実施例1と同様の工程にて、GaN複合基板を作成し、ついでLED構造を成膜した。

- 15 MOCVD炉より取り出して、目視にて観察したところ、クラックは観察されなかった。また、微分干渉顕微鏡で観察したところ、表面は平坦であることが確認された。

このウェハーを用いて、通常の写真リソグラフィ工程にて、 $0.3\text{ }\mu\text{m}$ 角のLED素子を作成し、約 3.5 V の電圧を電極に印加したところ、波長約 460 nm の青色で発光することが確認できた。

(実施例5)

- 20 凸部の周期 $D = 24\text{ }\mu\text{m}$ 、六角形の対角線幅 $E = 8\text{ }\mu\text{m}$ とした以外は実施例1と同様にして、塩素系ドライエッチングにより、直径2インチのc面サファイア基板を約 $2\text{ }\mu\text{m}$ エッチングしたところ、凸部の形状が六角柱状となった。

- 25 この凹凸加工したサファイア基板を用いて、実施例1と同様に、下地層を成膜した。反りは、約 $35\text{ }\mu\text{m}$ であり、凸部と凸部の間に、 $2\text{ }\mu\text{m}$ ～ $6\text{ }\mu\text{m}$ の大きさの空隙が観察された。その後、実施例1と同様の工程にて、

GaN複合基板を作成し、ついでLED構造を成膜した。

MOCVD炉より取り出して、目視にて観察したところ、ウェハー周辺部のみに長さ2～3mm程度の直線的な細かいクラックが約5本発生していた。

- 5 このウェハーを用いて、通常の写真リソグラフィ工程にて、0.3mm角のLED素子を作成し、約3.5Vの電圧を電極に印加したところ、波長約460nmの青色で発光することが確認できた。

(実施例6)

- 10 凸部の周期 $D = 20\ \mu\text{m}$ 、六角形の対角線幅 $E = 10\ \mu\text{m}$ とした以外は実施例1と同様にして、塩素系ドライエッチングにより、直径2インチのc面サファイア基板を約 $2\ \mu\text{m}$ エッチングしたところ、凸部の形状が六角柱状となった。

- 15 この凹凸加工したサファイア基板を用いて、実施例1と同様に、下地層を成膜した。反りは、約 $30\ \mu\text{m}$ であり、凸部と凸部の間に、数 μm の大きさの空隙が観察された。その後、実施例1と同様の工程にて、GaN複合基板を作成し、ついでLED構造を成膜した。

MOCVD炉より取り出して、目視にて観察したところ、クラックは観察されなかった。また、微分干渉顕微鏡で観察したところ、表面は平坦であることが確認された。

- 20 このウェハーを用いて、通常の写真リソグラフィ工程にて、0.3mm角のLED素子を作成し、約3.5Vの電圧を電極に印加したところ、波長約460nmの青色で発光することが確認できた。

(実施例7)

- 25 凸部の周期 $D = 4\ \mu\text{m}$ 、六角形の対角線幅 $E = 2\ \mu\text{m}$ とした以外は実施例1と同様にして、塩素系ドライエッチングにより、直径2インチのc面サファイア基板を約 $2\ \mu\text{m}$ エッチングしたところ、凸部の形状が六角柱状

となった。

この凹凸加工したサファイア基板を用いて、実施例 1 と同様に、下地層を成膜した。反りは、約 $25\ \mu\text{m}$ であり、凸部と凸部の間に、 $1\sim$ 数 μm の大きさの空隙が観察された。その後、実施例 1 と同様の工程にて、GaN 複合基板を作成し、ついで LED 構造を成膜した。

MOCVD 炉より取り出して、目視にて観察したところ、クラックは観察されなかった。また、微分干渉顕微鏡で観察したところ、表面は平坦であることが確認された。

このウェハーを用いて、通常のリソグラフィ工程にて、 $0.3\ \text{mm}$ 角の LED 素子を作成し、約 $3.5\ \text{V}$ の電圧を電極に印加したところ、波長約 $460\ \text{nm}$ の青色で発光することが確認できた。

(比較例 1)

c 面に凹凸加工を施していないサファイア基板を用いた以外は、実施例 1 と同様にして実験を行った。

種結晶基板の反りの大きさは、約 $40\ \mu\text{m}$ であり、実施例 1 の約 2 倍の大きさであった。また、微分干渉顕微鏡観察をしたところ、実施例 1 で見られたような空隙は確認されなかった。

LED 構造成膜後に MOCVD 炉より取り出したところ、主にウェハー周辺部に長さ $10\sim 20\ \text{mm}$ 程度の直線的な細いクラックが多数 (数十本) 発生していた。顕微鏡観察したところ、このクラックの起点は、サファイアと種層の界面近傍であることがわかった。クラックはサファイアにはほとんど伸展しておらず、成長した窒化物膜の表面までほぼ貫通していた。またこの直線的なクラックの方向は、GaN の劈開方向に略平行であることがわかった。

(比較例 2)

凸部の平面的形状を円形として、その直径を実施例 1 の六角柱の対角線

幅と同じとした以外は、実施例 1 と同様に、実験を行った。

これによって、図 8 に示すような形態のサファイア基板 2 C を得た。すなわち、サファイア基板 2 C の c 面 2 a に複数の円形の凸部 3 C が形成されていた。各凸部 3 C は、それぞれ平面的に見て円形をしており、略円柱形状で、かつ凸部 3 C が六回回転対称となるように配置されていた。凸部を構成する円の直径 E を $4\ \mu\text{m}$ とし、凸部の周期 D を $6\ \mu\text{m}$ とした。

種結晶基板の反りの大きさは、約 $35\ \mu\text{m}$ であり、実施例 1 の約 2 倍弱と大きかった。また、微分干渉顕微鏡観察をしたところ、実施例 1 で見られたような空隙は確認されなかった。

10 LED 構造成膜後に MOCVD 炉より取り出したところ、主にウェハー周辺部に長さ $10\sim 20\text{mm}$ 程度の直線的な細かいクラックが約十本発生していた。

(比較例 3)

凸部の平面的形状を円形として、その直径を実施例 2 の六角柱の対角線幅と同じとした以外は、実施例 2 と同様に、実験を行った。

これによって、図 8 に示すような形態のサファイア基板 2 C を得た。すなわち、サファイア基板 2 C の c 面 2 a に複数の円形の凸部 3 C が形成されていた。各凸部 3 C は、それぞれ平面的に見て円形をしており、図 9 に示すように、略円錐形状で、かつ凸部 3 C が六回回転対称となるように配置されていた。凸部を構成する円の直径 E を $4\ \mu\text{m}$ とし、凸部の周期 D を $6\ \mu\text{m}$ とした。4 a は転位集中層である。

種結晶基板の反りの大きさは、約 $35\ \mu\text{m}$ であり、実施例の約 2 倍弱と大きかった。また、微分干渉顕微鏡観察をしたところ、実施例 2 で見られたような空隙は確認されなかった。

25 LED 構造成膜後に MOCVD 炉より取り出したところ、主にウェハー周辺部に長さ $10\sim 20\text{mm}$ 程度の直線的な細かいクラックが約十本発生し

ていた。

(符号の説明)

1. 種基板
- 2、2 A、2 B、2 C サファイア基板
- 5 2 a. サファイア基板の c 面
- 3、3 A、3 B、3 C 凸部
4. 凸部間の隙間
- 4 a. 転位集中層
5. 窒化ガリウム結晶からなる下地層
- 10 6. フラックス法で作成した窒化ガリウム結晶層
7. 発光素子構造
8. n 型コンタクト層
9. n 型クラッド層
10. 活性層
- 15 11. p 型クラッド層
12. p 型コンタクト層
13. 転位
14. 空隙

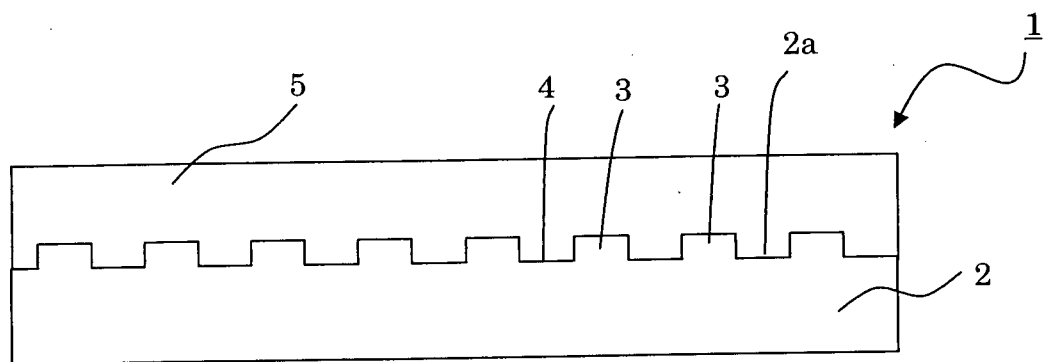
請求の範囲

1. c面に複数の凸部が設けられたサファイア基板、および前記c面に結晶成長した窒化ガリウム結晶を備えており、前記凸部が六角柱形状または六角錐形状であることを特徴とする、複合基板。
- 5 2. 前記凸部が前記c面内に6回回転対称に配列されていることを特徴とする、請求項1記載の複合基板。
3. 前記凸部の周期Dが $20\mu\text{m}$ 以下であることを特徴とする、請求項1または2記載の複合基板。
4. 前記窒化ガリウム結晶の最表層が、フラックス法で成長している
- 10 ことを特徴とする、請求項1～3のいずれか一つの請求項に記載の複合基板。
5. 前記窒化ガリウム結晶の前記c面に接する下地層が気相法によって成長していることを特徴とする、請求項1～4のいずれか一つの請求項に記載の複合基板。
- 15 6. 請求項1～5のいずれか一つの請求項に記載の複合基板、および前記窒化ガリウム結晶上に設けられた発光素子構造を有することを特徴とする、発光素子。
7. サファイア基板のc面に複数の凸部を設け、この際前記凸部が六角柱形状または六角錐形状である凸部形成工程、
- 20 前記c面上に気相法によって窒化ガリウム結晶からなる下地層を育成する下地層形成工程、および
- 前記下地層上にフラックス法によって窒化ガリウム結晶層を設ける育成工程
- を有することを特徴とする、複合基板の製造方法。
- 25 8. 前記凸部形成工程において、前記サファイア基板の平坦なc面をエッチングすることによって前記凸部を形成することを特徴とする、請求

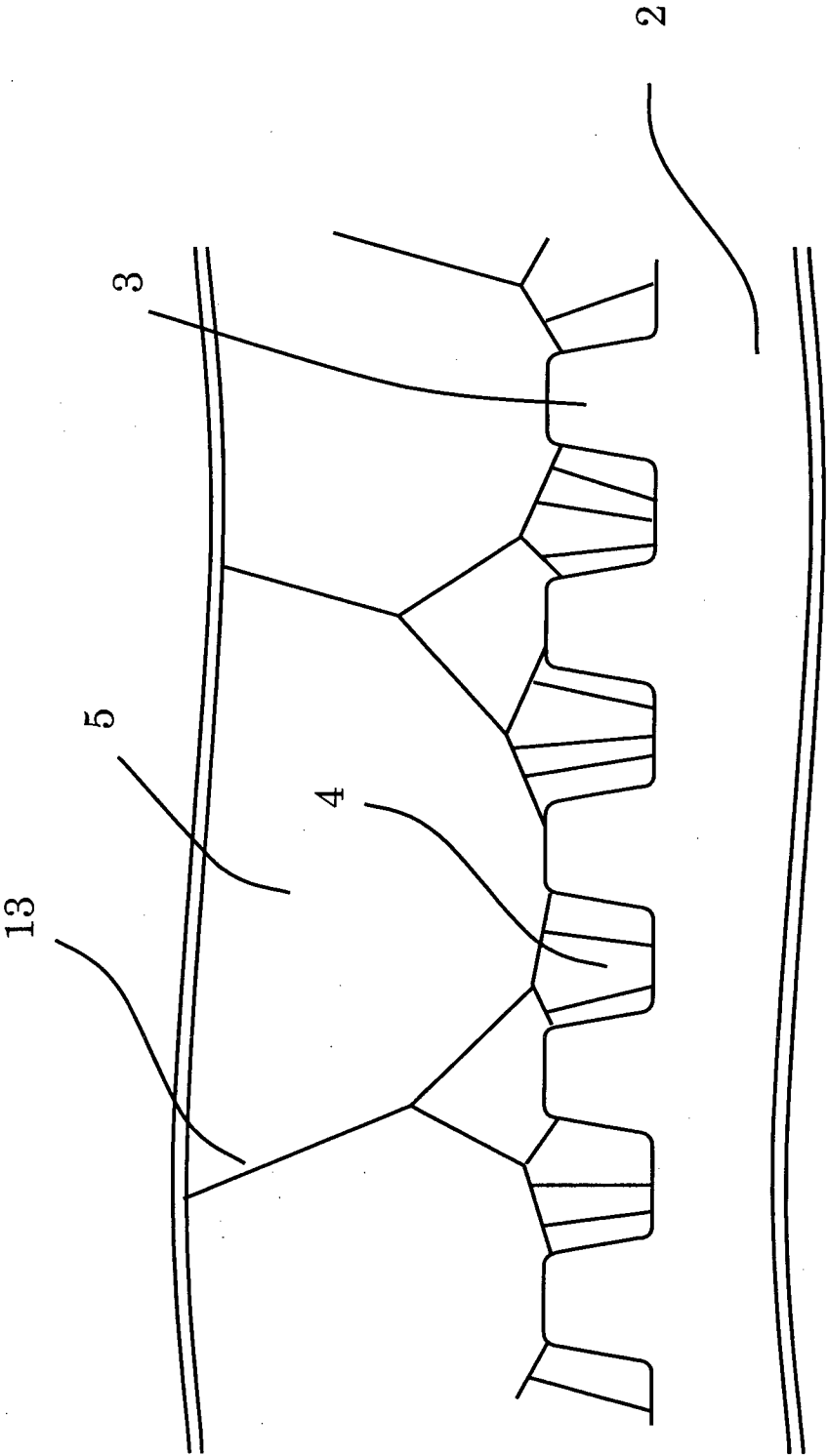
項 7 記載の方法。

9. 前記凸部が前記 c 面内に 6 回回転対称に配列されていることを特徴とする、請求項 7 または 8 記載の方法。

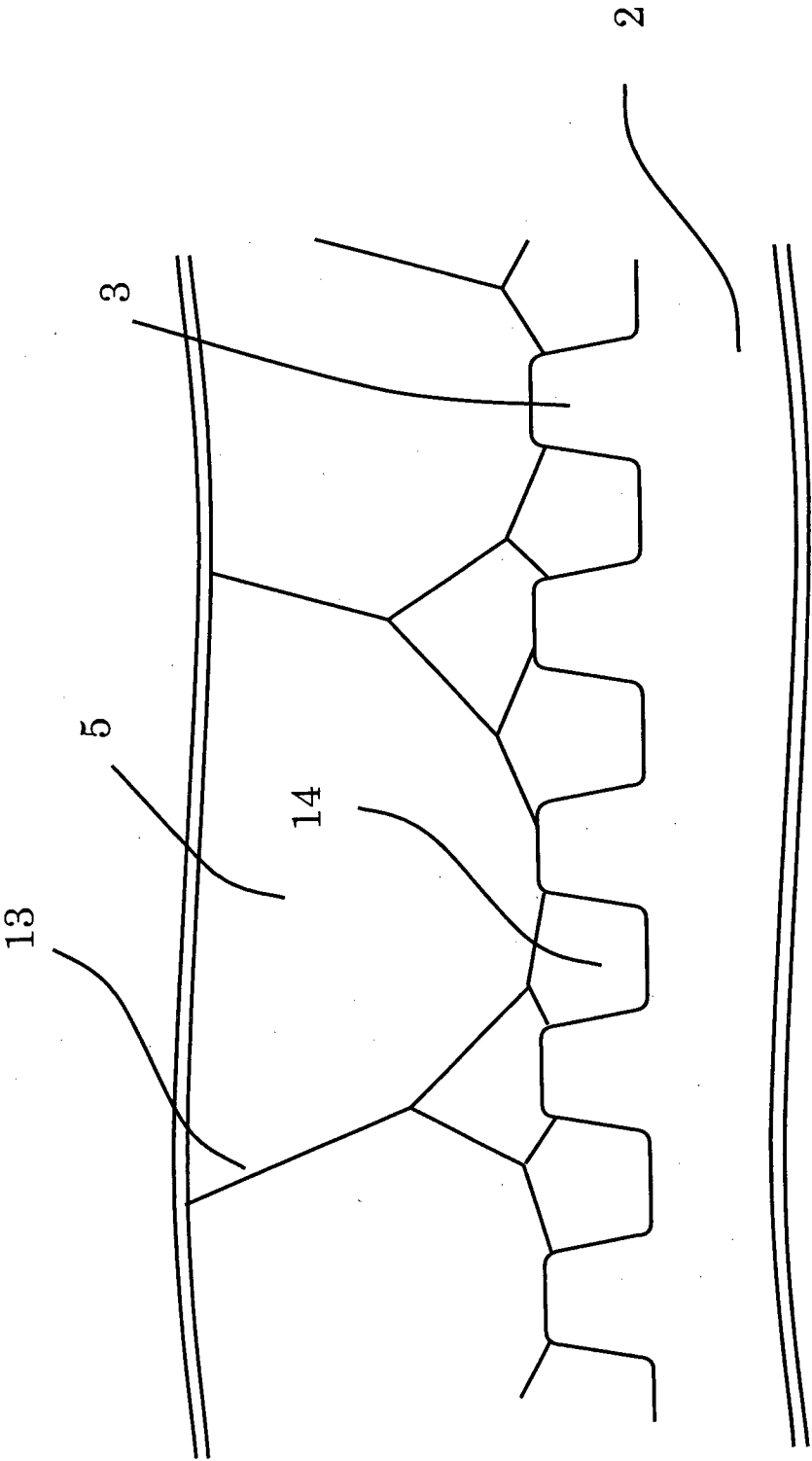
第 1 図



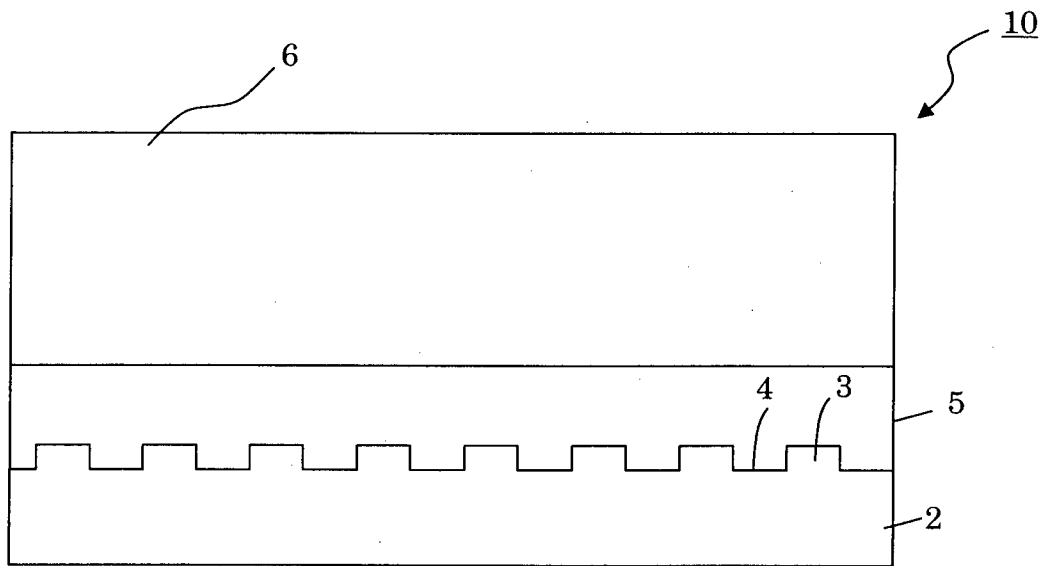
第 2 図



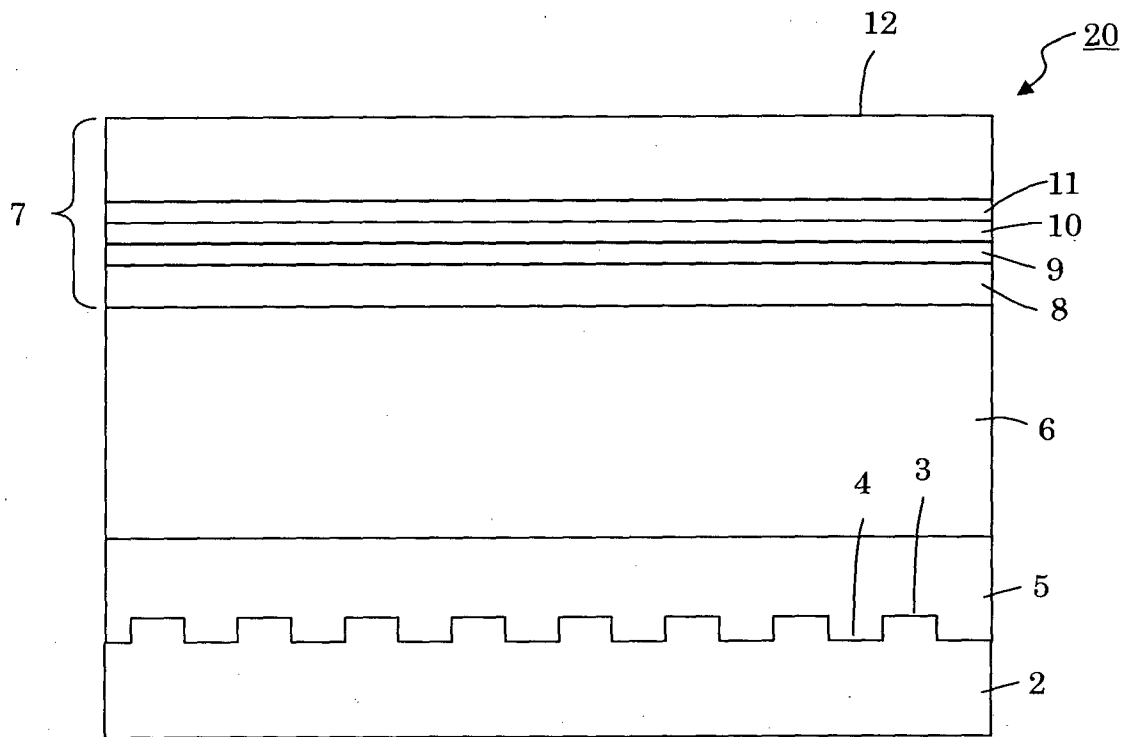
第 3 図



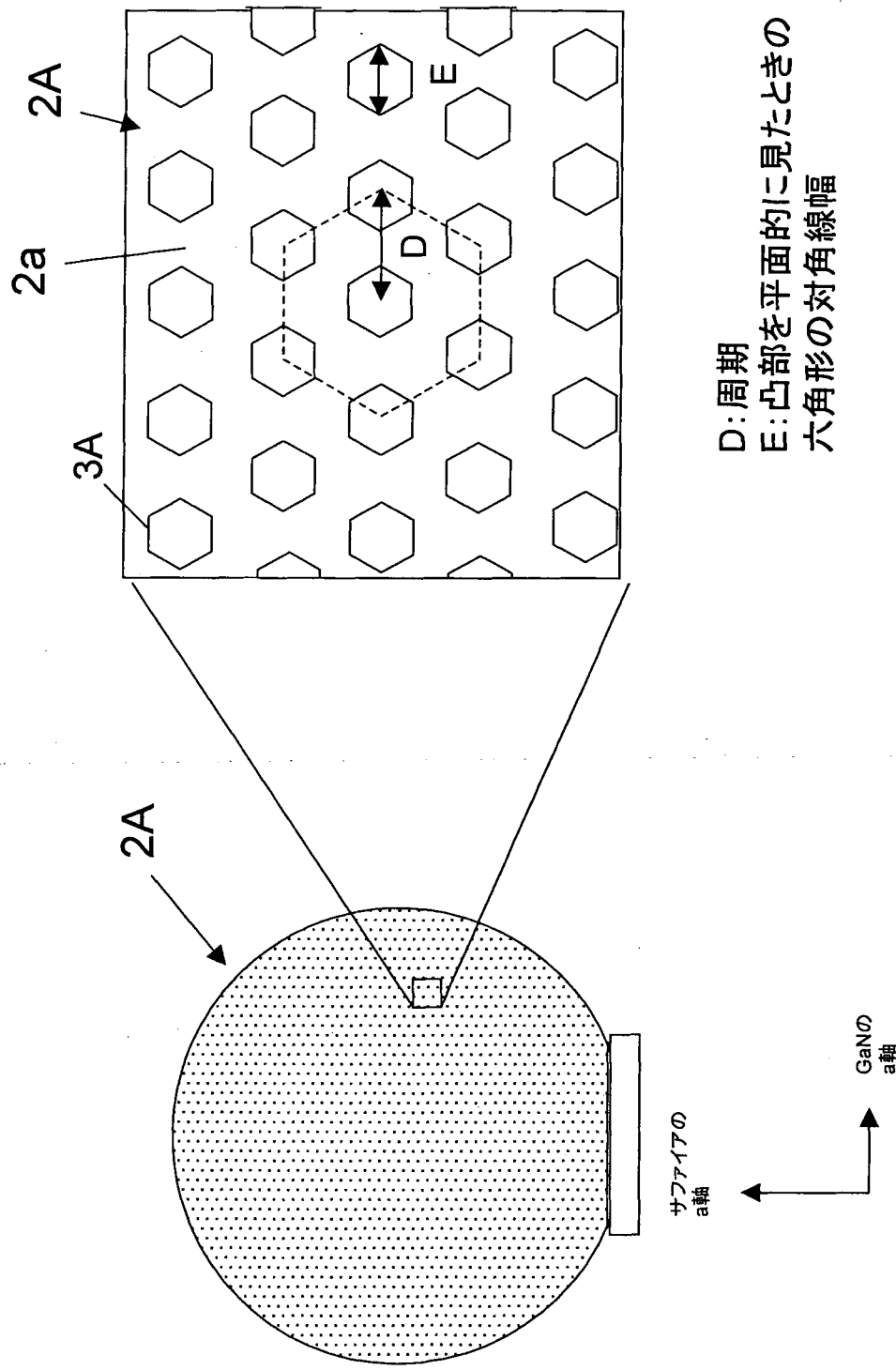
第 4 図



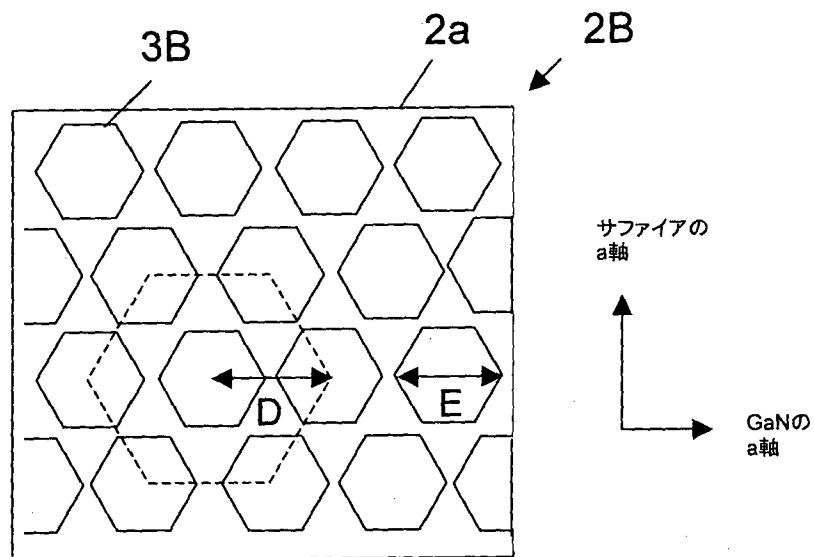
第 5 図



第 6 図



第7図

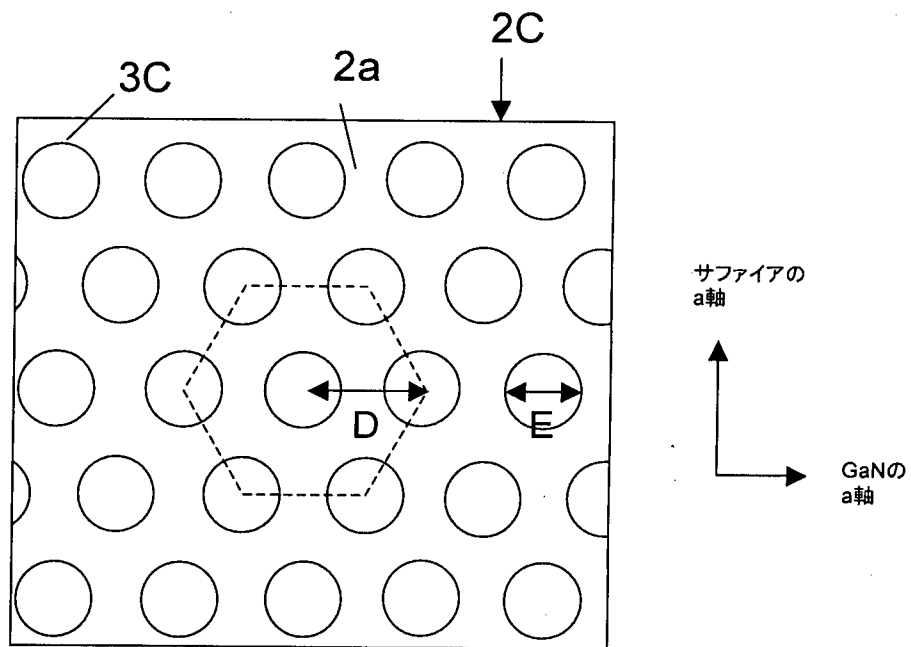


凸部面積が大きい場合

D: 周期

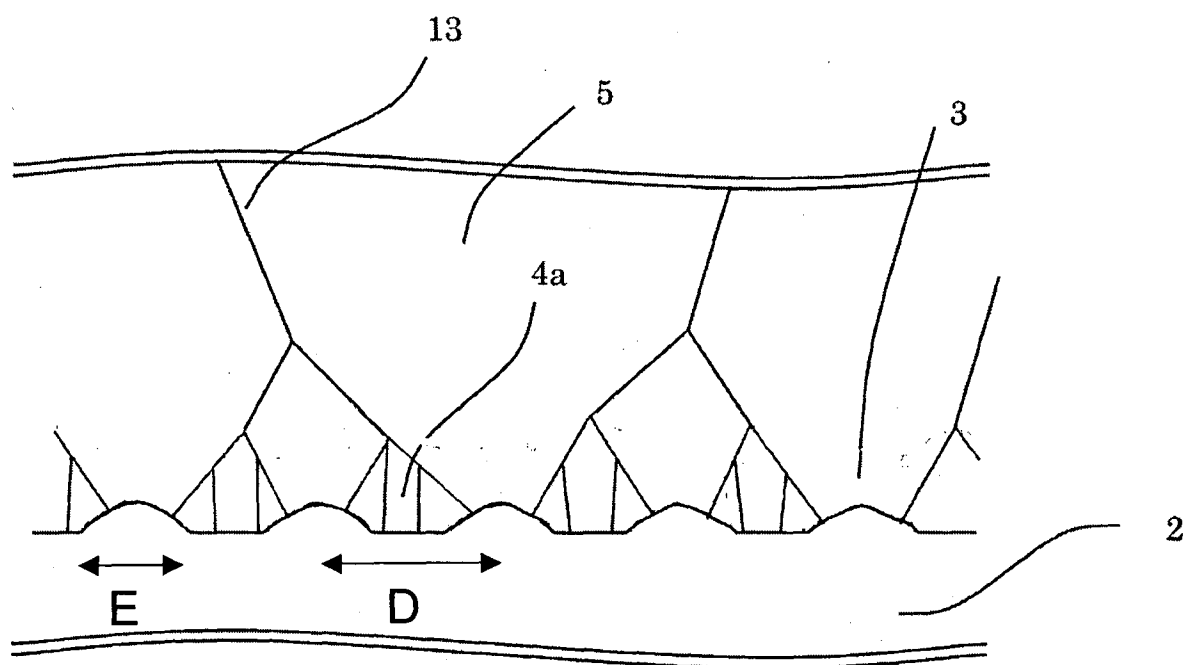
E: 凸部を平面的に見たときの
六角形の対角線幅

第 8 図



D: 周期
E: 円柱の直径

第 9 図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/064818

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

H01L21/02(2006.01)i, H01L33/12(2010.01)i, H01L33/22(2010.01)i

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

H01L21/02, H01L33/12, H01L33/22

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	1996-2013
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2013	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2013

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

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X Y	JP 4063259 B2 (Nichia Chemical Industries, Ltd.), 19 March 2008 (19.03.2008), paragraphs [0056], [0067], [0077] to [0078], [0120]; fig. 11, 25 & US 7683386 B2 & US 8119534 B2 & EP 1667241 A1 & WO 2005/018008 A1 & KR 10-1183776 B1 & TW I361534 B	1, 6 2-5, 7-9

☒ 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
14 June, 2013 (14.06.13)

Date of mailing of the international search report
25 June, 2013 (25.06.13)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2013/064818

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	JP 4055503 B2 (Nichia Chemical Industries, Ltd.), 05 March 2008 (05.03.2008), paragraphs [0030], [0036], [0052], [0081]; fig. 11 (m) & US 2003/057444 A1 & US 2005/001227 A1 & US 2010/266815 A1 & US 2010/264447 A1 & US 2010/264446 A1 & US 2010/267181 A1 & US 2010/264445 A1 & US 2009/042328 A1 & US 2008/303043 A1 & EP 2293352 A1 & EP 2299504 A1 & EP 2256832 A1 & EP 2256831 A1 & EP 2259339 A1 & EP 1416543 A1 & WO 2003/010831 A1 & KR 10-2012-0000580 A & KR 10-2010-0018108 A & KR 10-2007-0089750 A & CN 1529915 A & TW 561632 B & MY 145322 A & HK 1067235 A1	2-5, 7-9
Y	JP 3779831 B2 (The Furukawa Electric Co., Ltd.), 31 May 2006 (31.05.2006), paragraphs [0004] to [0005], [0031] to [0032] (Family: none)	4-5, 7-9
A	JP 2000-21772 A (Sony Corp.), 21 January 2000 (21.01.2000), paragraphs [0001] to [0076]; fig. 1 to 12 & US 6232623 B1 & US 2001/010941 A1 & US 2005/196888 A1	1-9

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01L21/02 (2006.01)i, H01L33/12 (2010.01)i, H01L33/22 (2010.01)i

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (I P C))

Int.Cl. H01L21/02, H01L33/12, H01L33/22

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	1 9 2 2 - 1 9 9 6 年
日本国公開実用新案公報	1 9 7 1 - 2 0 1 3 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 1 3 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 1 3 年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X Y	JP 4063259 B2 (日亜化学工業株式会社) 2008.03.19, 段落[0056], [0067], [0077] - [0078], [0120], 第11, 25 図 & US 7683386 B2 & US 8119534 B2 & EP 1667241 A1 & WO 2005/018008 A1 & KR 10-1183776 B1 & TW I361534 B	1, 6 2-5, 7-9
Y	JP 4055503 B2 (日亜化学工業株式会社) 2008.03.05, 段落[0030], [0036], [0052], [0081], 第11(m)図 & US 2003/057444 A1 & US 2005/001227 A1 & US 2010/266815 A1 & US 2010/264447 A1 & US 2010/264446 A1 & US 2010/267181 A1	2-5, 7-9

☒ 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

1 4 . 0 6 . 2 0 1 3

国際調査報告の発送日

2 5 . 0 6 . 2 0 1 3

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (I S A / J P)

郵便番号 1 0 0 - 8 9 1 5

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)

榎本 剛

5 F

9 3 7 9

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 5 1 6

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
	& US 2010/264445 A1 & US 2009/042328 A1 & US 2008/303043 A1 & EP 2293352 A1 & EP 2299504 A1 & EP 2256832 A1 & EP 2256831 A1 & EP 2259339 A1 & EP 1416543 A1 & WO 2003/010831 A1 & KR 10-2012-0000580 A & KR 10-2010-0018108 A & KR 10-2007-0089750 A & CN 1529915 A & TW 561632 B & MY 145322 A & HK 1067235 A1	
Y	JP 3779831 B2 (古河電気工業株式会社) 2006.05.31, 段落[0004] - [0005], [0031] - [0032] (ファミリーなし)	4-5, 7-9
A	JP 2000-21772 A (ソニー株式会社) 2000.01.21, 段落[0001] - [0076], 第1 - 12 図 & US 6232623 B1 & US 2001/010941 A1 & US 2005/196888 A1	1-9