

(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
2017年9月14日(14.09.2017)



(10) 国際公開番号
WO 2017/154774 A1

- (51) 国際特許分類:
C04B 35/581 (2006.01) *H01L 23/12* (2006.01)
C23C 14/06 (2006.01) *H01L 23/15* (2006.01)
C23C 26/00 (2006.01)
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2017/008487
- (22) 国際出願日: 2017年3月3日(03.03.2017)
- (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 2016-044525 2016年3月8日(08.03.2016) JP
- (71) 出願人: 学校法人 芝浦工業大学(SHIBAURA INSTITUTE OF TECHNOLOGY) [JP/JP]; 〒1358548 東京都江東区豊洲三丁目7番5号 Tokyo (JP). 東芝マテリアル株式会社(TOSHIBA MATERIALS CO., LTD.) [JP/JP]; 〒2358522 神奈川県横浜市磯子区新杉田町8番地 Kanagawa (JP).
- (72) 発明者: 湯本 敦史(YUMOTO Atsushi); 〒1358548 東京都江東区豊洲三丁目7番5号 学校法人芝浦工業大学内 Tokyo (JP). 清水 麻里(SHIMIZU Mari); 〒1358548 東京都江東区豊洲三丁目7番5号 学校法人 芝浦工業大学内 Tokyo (JP). 井上 哲夫(INOUE Tetsuo); 〒2358522 神奈川県横浜市磯子区新杉田町8番地 東芝マテリアル株式会社内 Kanagawa (JP). 日野 高志(HINO Takashi); 〒2358522 神奈川県横浜市磯子区新杉田町8番地 東芝マテリアル株式会社内 Kanagawa (JP). 齋藤 秀一(SAITO Shuichi); 〒2358522 神奈川県横浜市磯

子区新杉田町8番地 東芝マテリアル株式会社内 Kanagawa (JP).

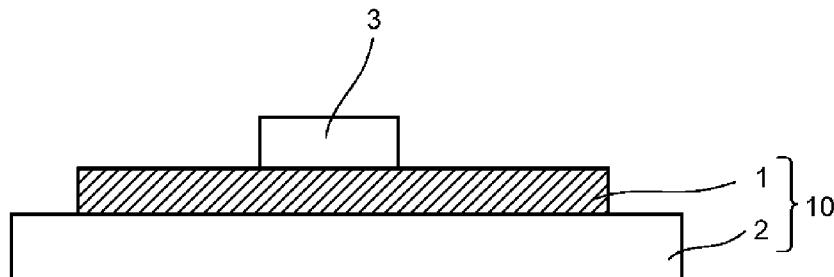
- (74) 代理人: 特許業務法人サクラ国際特許事務所(SAKURA PATENT OFFICE, P.C.); 〒1010047 東京都千代田区内神田一丁目18番14号 ヨシザワビル6階 Tokyo (JP).
- (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, 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, SA, 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, 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, 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: ALUMINUM NITRIDE FILM, METHOD FOR MANUFACTURING ALUMINUM NITRIDE FILM, AND HIGH-BREAKDOWN-VOLTAGE COMPONENT

(54) 発明の名称: 窒化アルミニウム膜、窒化アルミニウム膜の製造方法、および高耐圧部品



(57) Abstract: An aluminum nitride film according to the present invention includes polycrystalline aluminum nitride. The dielectric strength voltage of the aluminum nitride film is at least 100 kV/mm.

(57) 要約: 窒化アルミニウム膜は、多結晶の窒化アルミニウムを含む。窒化アルミニウム膜の絶縁耐圧は100 kV/mm以上である。



WO 2017/154774 A1

明 細 書

発明の名称：

窒化アルミニウム膜、窒化アルミニウム膜の製造方法、および高耐圧部品
技術分野

[0001] 本発明の一態様は、窒化アルミニウム膜、窒化アルミニウム膜の製造方法、および高耐圧部品に関する。

背景技術

[0002] 窒化アルミニウム（AlN）は、高い熱伝導率を活かして例えば半導体素子搭載用基板、ヒータ用部品、半導体製造装置用部品等に用いられる。窒化アルミニウムとしては、例えば熱伝導率 $200\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 以上の窒化アルミニウム焼結体が知られている。上記窒化アルミニウム焼結体は、焼結助剤を添加し、所定の焼結工程を行うことにより高い熱伝導性を有する。上記アルミニウム焼結体は、例えば半導体素子搭載用基板等に用いられている。

[0003] 焼結助剤を添加して焼結された窒化アルミニウム基板の絶縁耐圧は例えば 10 kV/mm 以上 20 kV/mm 以下である。このため、窒化アルミニウム基板の厚さは、通常 0.635 mm 程度である。一方、窒化アルミニウム単相（窒化アルミニウムの単結晶）では、熱伝導率の理論値が $320\text{ W/m}\cdot\text{K}$ 程度であり絶縁耐圧の理論値が 1170 kV/mm 程度である。すなわち、窒化アルミニウム焼結体の絶縁耐圧は、窒化アルミニウム単結晶の $1\sim 2\%$ 程度の低い値である。

[0004] 窒化アルミニウムの絶縁耐圧を高める方法としては、例えば超音速フリージェット物理蒸着法（Supersonic Free Jet Physical Vapor Deposition：SFJ-PVD法）により高抵抗の窒化アルミニウム膜を形成する方法が挙げられる。SFJ-PVD法により形成される窒化アルミニウム膜は、例えば $13.7\times 10^{12}\Omega\cdot\text{cm}$ の体積抵抗率を有する。体積抵抗率とは、材料の電気の通し難さを示す物性値である。

[0005] 一方、上記窒化アルミニウム膜の絶縁耐圧は50kV/mm程度である。絶縁耐圧とは、絶縁状態を維持することができる電圧値である。絶縁耐圧を単に耐圧ともいう。仮に半導体素子搭載用基板において絶縁破壊が起きると、基板の絶縁性を維持することができない。よって半導体装置の故障の原因となる。よって、基板の絶縁性を維持するために窒化アルミニウム膜の絶縁耐圧の向上が求められている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開2010-215465号公報

特許文献2：特開2011-214059号公報

非特許文献

[0007] 非特許文献1：日本溶射学会 第97回（2013年度春季）全国講演大会講演論文集 P. 21～22

発明の概要

[0008] 本発明の一態様が解決する課題は、窒化アルミニウム膜の絶縁耐圧を向上させることである。

[0009] 本実施形態の窒化アルミニウム膜は、多結晶の窒化アルミニウムを含む。窒化アルミニウム膜の絶縁耐圧は100kV/mm以上である。

図面の簡単な説明

[0010] [図1]半導体素子搭載用基板の一例を示す図である。

[図2]ヒータ用基板の一例を示す図である。

[図3]半導体製造装置用部品の一例を示す図である。

発明を実施するための形態

[0011] 本実施形態の窒化アルミニウム膜の絶縁耐圧は、100kV/mm以上である。本実施形態の窒化アルミニウム膜の絶縁耐圧は、200kV/mm以上であることが好ましい。絶縁耐圧は、JIS-C-2110-1（2010）に基づいて測定される。測定条件は、交流絶縁破壊電圧とし、昇圧速度

を $100\text{ V} / \text{sec}$ に設定する。測定用電極の組合せは、（１）直径 25 mm の円柱形状の上部電極と直径 75 mm の円柱形状の下部電極との組合せ、（２）直径 25 mm の円柱形状の上部電極と直径 25 mm の円柱形状の下部電極との組合せ、（３）直径 20 mm の球状の上部電極と直径 25 mm の円板形状の下部電極との組合せ、のいずれかである。窒化アルミニウム膜の絶縁耐圧を測定するための基材として銅板等の導電性材料が用いられることが好ましい。

[0012] 本実施形態の窒化アルミニウム膜は、多結晶窒化アルミニウムを主成分として含む。多結晶窒化アルミニウムを主成分として含む窒化アルミニウム膜中の窒化アルミニウム結晶粒子の割合は、 90 体積%以上 100 体積%以下である。窒化アルミニウム膜の表面に別の膜を有する場合、当該別の膜を除いて窒化アルミニウム結晶粒子の割合が求められる。同様に、窒化アルミニウム膜と基材との間に別の膜を有する場合、当該別の膜を除いて窒化アルミニウム結晶粒子の割合が求められる。

[0013] 窒化アルミニウム結晶粒子の平均粒径は、 30 nm 以下であることが好ましい。窒化アルミニウム結晶粒子の平均粒径が 30 nm を超えると、窒化アルミニウム膜中にポアが形成されるおそれがある。ポアが形成されると絶縁破壊の原因になる。また、粒径を小さくすることにより粒界のパスを伸ばすことができる。粒界のパスを伸ばすことにより、絶縁耐圧を向上させることができる。窒化アルミニウム結晶粒子の平均粒径は、 25 nm 以下であることがより好ましい。平均粒径の下限值は特に限定されないが、 5 nm 以上であることが好ましい。平均粒径が 5 nm 未満であると製造工程の管理が煩雑になるおそれがある。

[0014] 平均粒径は、X線回折（X-ray Diffraction: XRD）分析により求められる六方晶窒化アルミニウム（PDF # 25-1133（ 100 ）面）の回折ピークの半値幅からシェラーの式（Scherrer equation）により求められる。シェラーの式は、式 $\tau = k \lambda / \beta \cos \theta$ で表される。 τ は平均粒径を表し、 k は形状因子を表し、 λ はX線の

波長を表し、 β はピーク半値全幅を表し、 θ はブラッグ角を表す。シェラーの式において、X線の波長 λ はCuターゲット ($K\alpha$ -Cu) を用いたもの、形状因子 k は0.9とする。六方晶窒化アルミニウム (PDF # 25-1133 (100) 面) の回折ピークとしては、 $33.2 \pm 1^\circ$ の回折角 (2θ) に位置する回折ピークが用いられる。

[0015] XRD分析は、集中法または薄膜法で行われる。集中法で行う場合、XRDピーク検出に影響を与えない材料の基材を使用する。上記基材としては、例えばアモルファス基板が挙げられる。窒化アルミニウムの膜厚は、例えば $5\mu\text{m}$ 以上である。薄膜法で行う場合は、入射角を 5° 以下、好ましくは 1° に設定する。上記方法では、基材の影響を受けずにXRDピークを検出することができる。

[0016] 本実施形態の窒化アルミニウム膜のXRD分析により得られる回折パターンは、 $33.2 \pm 1^\circ$ の回折角 2θ に位置する回折ピークを有することが好ましい。また、上記回折パターンは、 $33.2 \pm 1^\circ$ の回折角 2θ に位置する回折ピーク $I_{33.2^\circ}$ と、 $43.5 \pm 1^\circ$ の回折角 2θ に位置する回折ピーク $I_{43.5^\circ}$ とを有し、回折ピーク $I_{33.2^\circ}$ に対する回折ピーク $I_{43.5^\circ}$ の強度比 $I_{43.5^\circ} / I_{33.2^\circ}$ が0.01以上であることが好ましい。さらに、上記回折パターンは、窒化アルミニウム結晶に基づく回折ピークを有し、当該窒化アルミニウム結晶に基づく回折ピーク以外のピークを有していないことが好ましい。XRDの分析方法としては前述の通り集中法または薄膜法が用いられる。

[0017] $33.2 \pm 1^\circ$ の回折角 2θ に回折ピークが検出されることは、六方晶窒化アルミニウムが存在することを示す。窒化アルミニウムの結晶構造としては、六方晶系 (ウルツ鉱構造) と立方晶系 (閃亜鉛鉱構造) が挙げられる。六方晶窒化アルミニウムは熱的に安定である。このため、六方晶窒化アルミニウムを存在させることにより、放熱性や耐プラズマ性を向上させることができる。

[0018] 回折角 (2θ) $43.5 \pm 1^\circ$ に回折ピークが検出されることは、立方晶

窒化アルミニウムが存在することを示す。強度比 $I_{43.5^\circ} / I_{33.2^\circ}$ が 0.01 以上、さらには 0.05 以上であることは六方晶窒化アルミニウムに対して所定量の立方晶窒化アルミニウムが存在することを示す。

[0019] X線のスポット径（またはスリット幅）を $100\ \mu\text{m}$ にしても、強度比 $I_{43.5^\circ} / I_{33.2^\circ}$ が 0.1 以上であることが好ましい。さらに、窒化アルミニウム膜の任意の箇所を XRD 分析しても、強度比 $I_{43.5^\circ} / I_{33.2^\circ}$ が 0.01 以上であることが好ましい。任意の箇所を測定しても、所定の強度比が得られることは六方晶窒化アルミニウムと立方晶窒化アルミニウムが均質に分散していることを示す。六方晶窒化アルミニウムと立方晶窒化アルミニウムが共存することにより、絶縁耐圧を向上させることができる。

[0020] 強度比 $I_{43.5^\circ} / I_{33.2^\circ}$ を 0.01 以上、さらには 0.05 以上にするにより、熱に強く、絶縁耐圧が高い窒化アルミニウム膜を得ることができる。強度比 $I_{43.5^\circ} / I_{33.2^\circ}$ を 0.1 以上、さらには 0.3 以上に高めることにより、より絶縁耐圧を向上させることができる。強度比の上限は特に限定されないが、強度比 $I_{43.5^\circ} / I_{33.2^\circ}$ は 2.0 以下であることが好ましい。強度比が 2.0 を超えると、六方晶窒化アルミニウムの割合が低下する。六方晶窒化アルミニウムの割合が低下すると、エネルギー的により安定な六方晶の割合が減少するため、耐プラズマ性が低下するおそれがある。

[0021] XRD 分析する際、窒化アルミニウム結晶に基づく回折ピーク以外が検出されないことが好ましい。窒化アルミニウム結晶に基づく回折ピーク以外が検出されないことは、窒化アルミニウム以外の結晶粒子および副相（粒界相）がないことを示す。つまり、窒化アルミニウム結晶粒子のみ（窒化アルミニウム結晶粒子が 100 質量%）からなる窒化アルミニウム膜を示す。これにより、さらに絶縁耐圧を向上させることができる。

[0022] 窒化アルミニウム膜の膜厚は $1\ \mu\text{m}$ 以上であることが好ましい。膜厚が $1\ \mu\text{m}$ 以上あれば、絶縁性を高めることができる。膜厚は、 $2\ \mu\text{m}$ 以上であることがより好ましい。膜厚の上限は特に限定されないが $100\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。 $1\ \mu\text{m}$ 以上 $100\ \mu\text{m}$ 以下の膜厚を有していれば、例え

ば後述する半導体素子搭載用基板、ヒータ用部品、半導体製造装置用部品に使用可能である。窒化アルミニウム膜の表面粗さ R_a は $3\ \mu\text{m}$ 以下、さらには $2\ \mu\text{m}$ 以下であることが好ましい。

[0023] 以上のように、本実施形態の窒化アルミニウム膜では、絶縁耐圧を $100\ \text{kV/mm}$ 以上、さらには $200\ \text{kV/mm}$ 以上とすることができる。このような窒化アルミニウム膜は、様々な部品に好適である。本実施形態の高耐圧部品は、基材上に窒化アルミニウム膜を有する。なお、必要に応じて窒化アルミニウム膜と基材との間に別の膜を有していてもよい。同様に、窒化アルミニウム膜の表面に別の膜を有していてもよい。本実施形態の高耐圧部品は、半導体素子搭載用基板、ヒータ用部品、半導体製造装置用部品のいずれか一つであることが好ましい。

[0024] 図1は半導体素子搭載用基板の一例を示す図である。図1に示す半導体素子搭載用基板10は、窒化アルミニウム膜1と、基材2と、を具備する。基材2上に窒化アルミニウム膜1が設けられている。

[0025] 半導体素子搭載用基板10上には半導体素子3が設けられる、半導体素子3としては、例えば発光ダイオード(LED)素子、パワー半導体素子等が用いられる。近年、半導体素子の小型化、高出力化が進められている。これに伴い発熱量は大きくなっている。例えば、SiC素子やGaN素子の動作保証温度(ジャンクション温度)が 200°C を超える可能性がある。

[0026] 従来の半導体素子搭載用基板では、絶縁耐圧 $10\sim 20\ \text{kV/mm}$ 程度の窒化アルミニウム焼結体が用いられている。アルミナ焼結体基板、窒化珪素焼結体基板などの他のセラミックス基板の絶縁耐圧も同程度である。これに対し、本実施形態の窒化アルミニウム膜の絶縁耐圧は $100\ \text{kV/mm}$ 以上である。このため、窒化アルミニウム膜を薄くすることができる。また、薄い膜で絶縁性を図れるため基材として、セラミックス基板、金属基板、樹脂基板など様々な基板が使用できる。特に、金属基板等の導電性材料を使うことは有益である。

[0027] 銅の熱伝導率は $398\ \text{W/m}\cdot\text{K}$ 程度である。アルミニウムの熱伝導率は

236 W/m・K程度である。これらの材料の金属基板である基材上に窒化アルミニウム膜を設けることにより、窒化アルミニウム膜による熱抵抗の増加を抑制できる。また、基材上に直接、窒化アルミニウム膜を成膜することができるため、ろう材などの接合材を使用せずに済む。この点からも熱抵抗を低減することができる。また、接合材を使用しないため製造工程を簡素にすることができる。言い換えれば、半導体素子搭載用基板10に搭載された半導体素子3を備える半導体装置は、放熱性が高く、薄型にすることができる。

[0028] 図2は、ヒータ用基板の一例を示す図である。図2に示すヒータ用基板20は、窒化アルミニウム膜1と、基材2と、を具備する。基材2上に窒化アルミニウム膜1が設けられている。また、ヒータ用基板20上にヒータ用配線4が設けられている。

[0029] 基材2としては、例えばセラミックス基板、金属基板、樹脂基板等の様々な基板が挙げられる。ヒータ用配線4としては、例えばタングステンなど通電により発熱する材料が用いられる。ヒータ用基板20は、ヒータ用配線4に通電することにより高温に達する。この熱を効果的に放熱することができる。このため、ヒータ用基板20上に設けられたヒータ用配線4を有するヒータは、高い放熱性を有し、薄型にすることができる。

[0030] 図3は、半導体製造装置用部品の一例を示す図である。図3に示す半導体製造装置用部品30は、窒化アルミニウム膜1と、基材2と、を具備する。基材2上に窒化アルミニウム膜1が設けられている。基材2としては、例えばセラミックス、金属、樹脂など様々な材料が用いられる。基材2の形状は、板状に限らず、球体形状（半球形状含む）、湾曲形状、凹凸形状などの様々な形状であってもよい。

[0031] 窒化アルミニウム膜1は絶縁性のみならず、放熱性や耐プラズマ性も優れている。このため、半導体製造装置用部品30は、CVD装置、PVD装置、エッチング装置など様々な半導体製造工程に用いることができる。言い換えると、半導体製造装置用部品30を備える半導体製造装置では、プラズマ

雰囲気を使用したとしても、半導体製造装置用部品30の耐久性が優れている。また、半導体製造装置用部品30の一例としては、静電チャックが挙げられる。

[0032] 次に、本実施形態の窒化アルミニウム膜の製造方法について説明する。本実施形態の窒化アルミニウム膜の製造方法は特に限定されないが、効率よく得るための方法として次の方法が挙げられる。

[0033] 本実施形態の窒化アルミニウム膜の製造方法において、窒化アルミニウム粉末を用いて超音速フリージェット物理蒸着法（Supersonic Free Jet Physical Vapor Deposition: SFJ-PVD法）により窒化アルミニウム膜を成膜することが好ましい。また、成膜工程は、窒素を含む不活性雰囲気下で行われることが好ましい。

[0034] 製造方法は、原料蒸発源にレーザ照射して溶融することにより、平均粒径500nm以下のヒュームを形成する工程と、当該ヒュームを冷却して原料粉末とする工程と、当該原料粉末を超音速ガスで真空チャンバ内に搬送して基材上に物理蒸着させる工程、を有することが好ましい。物理蒸着させる工程はSFJ-PVD法であることが好ましい。

[0035] SFJ-PVD法としては、例えば物理蒸着装置を用いる方法が挙げられる。まず、熱電素子蒸発源にレーザ照射して溶融することにより、平均粒径500nm以下のヒュームを形成する工程を行う。SFJ-PVD法では、アルミニウムターゲットまたは窒化アルミニウムターゲットを原料蒸発源とする。また、アルミニウムターゲットまたは窒化アルミニウムターゲットの純度は3N以上（99.9質量%以上）であることが好ましい。

[0036] 成膜工程では、窒素を含む不活性雰囲気下でアルミニウムまたは窒化アルミニウムのヒュームを窒化させながら窒化アルミニウム膜を成膜することができる。レーザ出力を調整することにより、ヒュームの平均粒径を500nm以下、さらには100nm以下まで小さくすることができる。レーザ出力は3.0W以上5.0W以下であることが好ましい。

[0037] 窒素を含む不活性雰囲気は、窒素ガスとヘリウムガスの混合ガス雰囲気

あることが好ましい。窒素ガスは、アルミニウムまたは窒化アルミニウムのヒュームを窒化する機能を有する。一方、ヘリウムガスは、流速を速くすることができるため、ナノ粒子の衝突速度を向上させる機能を有する。窒素ガスとヘリウムガスとの混合ガスは、 $\left[\frac{\text{窒素ガスの流量}}{\text{窒素ガスの流量} + \text{ヘリウムガスの流量}} \right] \geq 0.3$ の関係を満たすことが好ましい。0.3未満であると、窒素ガスの勢いが足りず、不十分に窒化された原料粉末ができってしまうおそれがある。

[0038] 次に、上記ヒュームを冷却して原料粉末とする工程を行う。前述のヘリウムガスは、原料粉末のナノ粒子化を行うと共に、ヒュームを冷却する効果を有する。冷却工程により、ナノ粒子の窒化アルミニウム粉末を得ることができる。ヒュームは冷却するまでの間に窒化する。

[0039] 次に、原料粉末を超音速ガスで真空チャンバ内に搬送して基材上に物理蒸着させる。まず、真空チャンバ内に基材を配置する。真空度は $1.3 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ ($1 \times 10^{-5} \text{ Torr}$) 以下、さらには $1.3 \times 10^{-7} \text{ Pa}$ 以下が好ましい。真空度を制御することにより、原料粉末（窒化アルミニウム粉末）を真空チャンバ内に高速で搬送することができる。これにより基材上に窒化アルミニウム結晶粒子を成膜することができる。

実施例

[0040] （実施例 1～7、比較例 1～2）

SFJ-PVD法により窒化アルミニウム膜を成膜した。基材としては、板厚 0.3 mm の銅板を用いた。原料蒸発源としては、アルミニウムターゲットまたは窒化アルミニウムターゲットを用いた。ターゲットの純度はそれぞれ 99.9 質量% (3N) 以上であった。原料蒸発源にレーザ照射するチャンバ内の窒素 (N_2) ガス、ヘリウム (He) ガスの流量は、表 1 に示す比を満たすように調整した。また、レーザ出力は表 1 に示す条件で行った。また、真空チャンバ内の圧力は $1.3 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ 以下にした。その結果を表 1 に示す。

[0041]

[表1]

	原料蒸発源 (ターゲット)	窒素ガスの流量／(窒素ガスの流量 ＋ヘリウムガスの流量)	レーザー出力 (W)	膜厚 (μm)
実施例1	Al	1	3	10
実施例2	Al	1	4	3
実施例3	Al	1	3.5	3
実施例4	AlN	0.8	4	3
実施例5	Al	1	4.5	14
実施例6	Al	1	4	12
実施例7	Al	1	3.6	2.5
比較例1	AlN	0.1	3	30
比較例2	AlN	0.2	3	10

[0042] 比較例1および比較例2では、[窒素ガスの流量／(窒素ガスの流量＋ヘリウムガスの流量)]が0.3未満である。実施例および比較例にかかる窒化アルミニウム膜に関して、絶縁耐圧、平均粒径、XRD分析による強度比 $I_{43.5^\circ} / I_{33.2^\circ}$ を求めた。絶縁耐圧の測定は、JIS-C-2110-1(2010)に基づいて行った。また、交流絶縁破壊電圧とし、昇圧速度100V/secで行った。また、球状の上部電極と円板形状の下部電極との組合せを使用した。

[0043] 平均粒径およびXRD分析による回折ピークの測定は、入射角度を1°以下にして薄膜法で行った。XRDの測定条件としては、Cuターゲット($K\alpha\text{-Cu}$)、管電圧45kV、管電流200mAとした。XRD分析の結果から、回折ピーク $I_{33.2^\circ}$ に対する回折ピーク $I_{43.5^\circ}$ の強度比 $I_{43.5^\circ} / I_{33.2^\circ}$ を求めた。また、平均粒径は、六方晶窒化アルミニウム(PDF#25-1133(100)面)の回折ピークの半値幅からシェラーの式により算出した。また、シェラーの式における形状因子kは0.9とした。その結果を表2に示す。

[0044]

[表2]

	絶縁耐圧 (kV/mm)	平均粒径 (nm)	強度比 ($I_{43.5^\circ} / I_{33.2^\circ}$)
実施例1	170	17	0.14
実施例2	200	18.2	0.33
実施例3	460	19	1.6
実施例4	230	20	0.8
実施例5	110	16.6	0.08
実施例6	120	30.2	0.09
実施例7	680	12	0.05
比較例1	1	28	0
比較例2	57	16.1	0.002

[0045] 表から分かる通り、実施例にかかる窒化アルミニウム膜の絶縁耐圧は100kV/mm以上であった。また、実施例にかかる窒化アルミニウム膜は、強度比 $I_{43.5^\circ} / I_{33.2^\circ}$ が0.01以上であると絶縁耐圧を170kV/mm以上に高くすることができた。このように、実施例にかかる窒化アルミニウム膜の膜厚が薄くても、優れた絶縁耐圧性を得ることができた。このため、半導体素子搭載用基板、ヒータ用基板、半導体製造装置用部品など様々な分野の部品に使用可能である。

[0046] 比較例1は少量ではあるが金属アルミニウムが形成されていたため絶縁耐圧が低下した。これは、原料蒸発源にレーザ照射する際に窒素ガスを使っていないため、原料の窒化が不十分になったためと考えられる。また、比較例2は窒素ガス流量が不足したため、窒化処理が不均質になったためである。

[0047] 以上、本発明のいくつかの実施形態を例示したが、これらの実施形態は、例として提示したものであり、発明の範囲を限定することは意図していない。これら新規な実施形態は、その他の様々な形態で実施されることが可能であり、発明の要旨を逸脱しない範囲で、種々の省略、置き換え、変更などを行うことができる。これら実施形態やその変形例は、発明の範囲や要旨に含まれるとともに、特許請求の範囲に記載された発明とその均等の範囲に含まれる。また、前述の各実施形態は、相互に組み合わせて実施することができる。

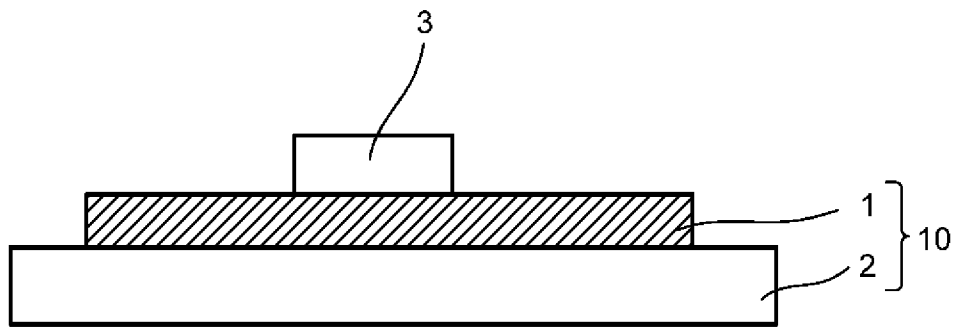
請求の範囲

- [請求項1] 多結晶の窒化アルミニウムを含む窒化アルミニウム膜であって、前記窒化アルミニウム膜の絶縁耐圧が100kV/mm以上である、窒化アルミニウム膜。
- [請求項2] 前記多結晶の窒化アルミニウムは、複数の窒化アルミニウム結晶粒子を有し、
前記窒化アルミニウム膜中の前記複数の窒化アルミニウム結晶粒子の割合は90体積%以上100体積%以下である、請求項1に記載の窒化アルミニウム膜。
- [請求項3] 前記複数の窒化アルミニウム結晶粒子の平均粒径が30nm以下である、請求項2に記載の窒化アルミニウム膜。
- [請求項4] 前記絶縁耐圧が200kV/mm以上である、請求項1に記載の窒化アルミニウム膜。
- [請求項5] 前記窒化アルミニウム膜のX線回折分析により得られるX線回折パターンは、33.2±1°の回折角2θに位置する回折ピークを有する、請求項1に記載の窒化アルミニウム膜。
- [請求項6] 前記窒化アルミニウム膜のX線回折分析により得られるX線回折パターンは、33.2±1°の回折角2θに位置する第1の回折ピークと、43.5±1°の回折角2θに位置する第2の回折ピークと、を有し、
前記第1の回折ピークの強度に対する前記第2の回折ピークの強度の比が0.01以上である、請求項1に記載の窒化アルミニウム膜。
- [請求項7] 前記窒化アルミニウム膜のX線回折分析により得られるX線回折パターンは、窒化アルミニウム結晶に基づく回折ピークを有し、前記窒化アルミニウム結晶に基づく回折ピーク以外の回折ピークを有しない、請求項1に記載の窒化アルミニウム膜。
- [請求項8] 前記多結晶の窒化アルミニウムは、六方晶窒化アルミニウムと立方晶窒化アルミニウムとを含む、請求項1に記載の窒化アルミニウム膜

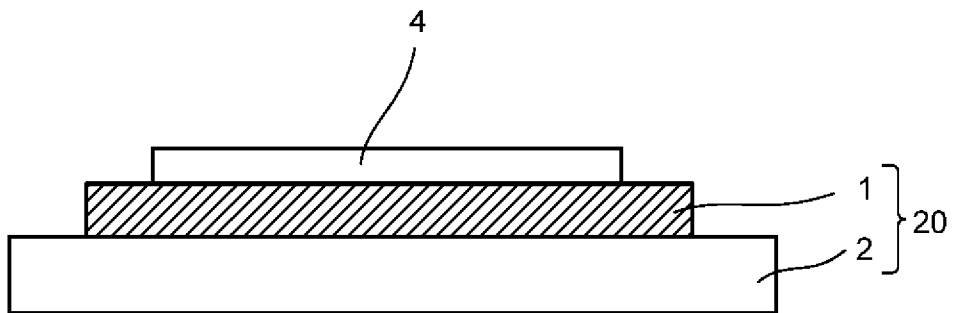
。

- [請求項9] 前記窒化アルミニウム膜の表面粗さ R_a が $3\ \mu\text{m}$ 以下である、請求項 1 に記載の窒化アルミニウム膜。
- [請求項10] 前記窒化アルミニウム膜の膜厚が $1\ \mu\text{m}$ 以上である、請求項 1 に記載の窒化アルミニウム膜。
- [請求項11] 基材と、
前記基材上に設けられた請求項 1 に記載の窒化アルミニウム膜と、
を具備する、高耐圧部品。
- [請求項12] 前記高耐圧部品が半導体素子搭載用基板、ヒータ用部品、または半導体製造装置用部品である、請求項 11 に記載の高耐圧部品。
- [請求項13] 窒化アルミニウム粉末を用いて超音速フリーズジェット物理蒸着法により請求項 1 に記載の窒化アルミニウム膜を成膜する工程を具備する、窒化アルミニウム膜の製造方法。
- [請求項14] 前記窒化アルミニウム膜は、窒素を含む不活性雰囲気下で成膜される、請求項 13 に記載の窒化アルミニウム膜の製造方法。
- [請求項15] 前記不活性雰囲気がヘリウムをさらに含む、請求項 14 に記載の窒化アルミニウム膜の製造方法。

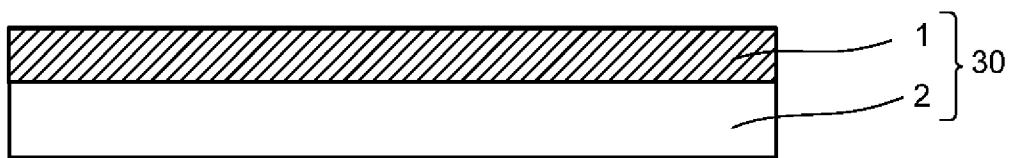
[図1]



[図2]



[図3]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/008487

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C04B35/581(2006.01)i, C23C14/06(2006.01)i, C23C26/00(2006.01)i, H01L23/12(2006.01)i, H01L23/15(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)

C04B35/581, C23C14/06, C23C26/00, H01L23/12, H01L23/15

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	1996-2017
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2017	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2017

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	JP 2015-501372 A (Nitride Solutions Inc.), 15 January 2015 (15.01.2015), claims; paragraphs [0006], [0007], [0112] to [0166], [0183]; fig. 1 to 4, 15 & US 2014/0227527 A1 claims; paragraphs [0005], [0006], [0130] to [0190], [0206]; fig. 1 to 4, 15 & US 2016/0181066 A1 & WO 2013/045596 A2 & EP 3012345 A1 & TW 201327615 A & CN 104040675 A & KR 10-2014-0082738 A	1, 2, 4, 5, 7, 10-12 9 3, 6, 8, 13-15
X	JP 2003-003259 A (Hitachi, Ltd.), 08 January 2003 (08.01.2003), claims; paragraphs [0021], [0022] (Family: none)	1, 4

☒ 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
24 May 2017 (24.05.17)

Date of mailing of the international search report
06 June 2017 (06.06.17)

Name and mailing address of the ISA/
Japan Patent Office
3-4-3, Kasumigaseki, Chiyoda-ku,
Tokyo 100-8915, Japan

Authorized officer

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2017/008487

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2002-030432 A (Hitachi, Ltd.), 31 January 2002 (31.01.2002), paragraph [0017] (Family: none)	1, 4
Y	JP 08-311646 A (Nissin Electric Co., Ltd.), 26 November 1996 (26.11.1996), paragraphs [0071] to [0073] (Family: none)	9
A	JP 2011-214059 A (Tama-TLO Ltd.), 27 October 2011 (27.10.2011), entire text; all drawings (Family: none)	1-15
A	JP 11-200032 A (ULVAC Japan Ltd.), 27 July 1999 (27.07.1999), entire text; all drawings (Family: none)	1-15

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl. C04B35/581(2006.01)i, C23C14/06(2006.01)i, C23C26/00(2006.01)i, H01L23/12(2006.01)i, H01L23/15(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. C04B35/581, C23C14/06, C23C26/00, H01L23/12, H01L23/15

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	1971-2017年
日本国実用新案登録公報	1996-2017年
日本国登録実用新案公報	1994-2017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	JP 2015-501372 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) 2015.01.15, 特許請求の範囲、[0006]、[0007]、[0112]—[0166]、[0183]、図1-4, 15	1, 2, 4, 5, 7, 10-12
Y	& US 2014/0227527 A1、請求の範囲、[0005]、[0006]、[0130]—[0190]、[0206]、図1-4、15	9
A	& US 2016/0181066 A1 & WO 2013/045596 A2 & EP 3012345 A1 & TW 201327615 A & CN 104040675 A & KR 10-2014-0082738 A	3, 6, 8, 13-15

☑ 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

24.05.2017

国際調査報告の発送日

06.06.2017

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)

國方 恭子

電話番号 03-3581-1101 内線 3465

4 T

9540

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求項の番号
X	JP 2003-003259 A (株式会社日立製作所) 2003.01.08, 特許請求の範囲、[0021]、[0022] (ファミリーなし)	1, 4
X	JP 2002-030432 A (株式会社日立製作所) 2002.01.31, [0017] (ファミリーなし)	1, 4
Y	JP 08-311646 A (日新電機株式会社) 1996.11.26, [0071]–[0073] (ファミリーなし)	9
A	JP 2011-214059 A (タマティールエルオー株式会社) 2011.10.27, 全文、全図 (ファミリーなし)	1-15
A	JP 11-200032 A (日本真空技術株式会社) 1999.07.27, 全文、全図 (ファミリーなし)	1-15