

(43) 国際公開日
2009年7月30日 (30.07.2009)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2009/093753 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/JP2009/051394
- (22) 国際出願日: 2009年1月22日 (22.01.2009)
- (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2008-013689 2008年1月24日 (24.01.2008) 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): 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).

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). 市村幹也 (ICHIMURA, Mikiya) [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).

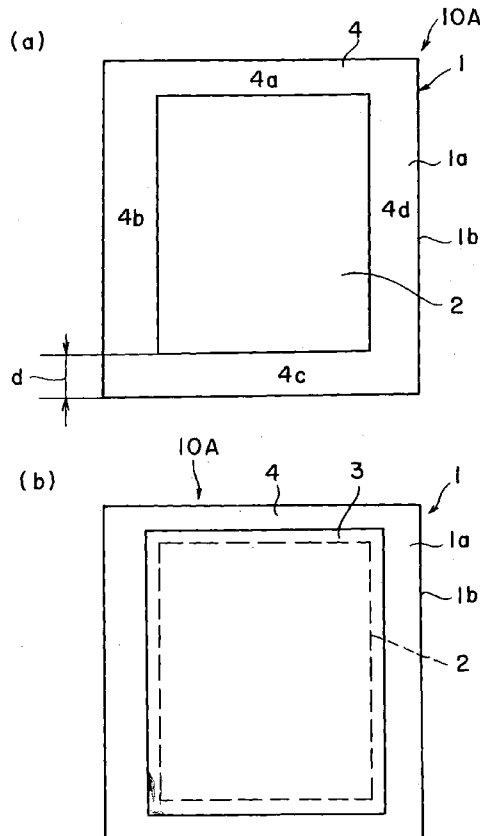
(81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BH, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, KM, KN, KP, KR, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RS, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, ST, SV, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, ZA, ZM, ZW.

[続葉有]

(54) Title: METHOD FOR MANUFACTURING III METAL NITRIDE SINGLE CRYSTAL

(54) 発明の名称: III族金属窒化物単結晶の製造方法

第1図



(57) Abstract: A template substrate (10A) provided with a substrate main body (1) and a base film (2) is used. The substrate main body has a side surface (1b) and a pair of main surfaces (1a), and the base film is formed on the main surface (1a) and composed of a III metal nitride single crystal. The III metal nitride single crystal (3) is grown at least on one of the main surfaces (1a) of the substrate main body (1) by a liquid phase method. The base film (2) has a protruding figure in planar view. A non-film-formed surface (4) whereupon the base film is not formed surrounds the entire circumference of the base film (2). The III metal nitride single crystal (3) grown from the base film (2) is not brought into contact with the III metal nitride single crystal grown from other base film.

(57) 要約: 側面1bおよび一対の主面1aを有する基板本体1と、主面1aに形成されたIII族金属窒化物単結晶の下地膜2とを備えているテンプレート基板10Aを使用する。基板本体1の少なくとも一つの主面1aに液相法によってIII族金属窒化物単結晶3を育成する。下地膜2が平面的に見て凸図形をなしている。下地膜が設けられていない未成面4が下地膜2の全周を包囲している。下地膜2から成長したIII族金属窒化物単結晶3が、他の下地膜から成長したIII族金属窒化物単結晶と接触しない。



(84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO,

SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

— 国際調査報告書

明細書

III 族金属窒化物単結晶の製造方法

発明の属する技術分野

- 5 本発明は、III 族金属窒化物単結晶の製造方法に関するものである。

背景技術

- 窒化ガリウム薄膜結晶は、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
10 導体レーザー素子としても期待されている。

特開 2004-182551、特開 2005-12171 では、基板上にフラックス法によって単結晶下地膜を形成する際に、下地膜を島状に分割し、島状の下地膜上に窒化ガリウム単結晶膜を育成することを開示している。

- 15 発明の開示

- しかし、Na フラックス法で育成した GaN 単結晶の中には、基板の縁端部においてサファイアの裏側にまで GaN 単結晶が成長して、サファイアの縁端部が GaN 単結晶に固く捕捉されるものが見られた（図 1 2、図 1 3 参照）。その結果、成長した GaN 単結晶とサファイア界面以外にも熱膨張係数差に起因する応力がかかり、自然剥離が妨げられ、さらにはクラックが発生する場合があった。

- 特開 2005-12171 記載のように、基板上に島状の下地膜上を複数設け、島状下地膜上に窒化物単結晶を育成することによって大面積の窒化物単結晶膜を得ようとする、単結晶膜を基板から自然剥離させることは困難であった。そして、単結晶膜内に応力が残留し、最終的にはクラック
25 が発生してしまう場合があった。

また、本出願人は、本出願時未公開の特願 2 0 0 7 - 7 8 8 9 3（特開 2 0 0 8 - 2 3 9 3 6 5）において、基板上にフラックス法によって単結晶下地膜を形成する際に、下地膜を島状に分割すると共に、島状の下地膜に細長い腕部を設けることを開示した。

- 5 しかし、この場合には、腕部の先端から成長するところでは、転移が集中する合流点の成長開始時間が、他の箇所よりも遅れる傾向がある。その結果、成長する窒化ガリウム単結晶の厚さにムラが生じ易い。

- 本発明の課題は、テンプレート基板を使用して液相法によって III 族金属窒化物単結晶を育成するのに際して、単結晶膜の厚さのバラツキを
10 抑制し、基板本体と窒化物単結晶膜との熱膨張差に起因する単結晶膜のクラックを防止し、かつ自然剥離を達成することである。

- 本発明は、側面および一対の主面を有する基板本体と、基板本体の少なくとも一方の主面に形成された III 族金属窒化物単結晶の下地膜とを備えているテンプレート基板を使用し、下地膜上に液相法によって III
15 族金属窒化物単結晶を育成する方法であって、

下地膜が平面的に見て凸図形をなしており、下地膜の設けられていない未成面が下地膜の全周を包囲しており、かつ下地膜から成長した III 族金属窒化物単結晶が他の下地膜から成長した III 族金属窒化物単結晶と接触しないことを特徴とする。

- 20 本発明によれば、下地膜が平面的に見て凸図形をなしているので、結晶転移が集中する合流点の成長開始時期と下地膜からの成長開始時期の差に起因する窒化物単結晶の厚さのバラツキを抑制できる。

- また、未成面が下地膜の全周を包囲しているので、下地膜から成長する単結晶が基板本体の外周縁部にまで到達しにくく、側面や裏面上の被
25 覆を防止できる。これによって、基板本体の側面や裏面を窒化物単結晶が被覆することによるクラックを防止できる。

その上で、下地膜から成長した III 族金属窒化物単結晶が、他の下地膜から成長した III 族金属窒化物単結晶とは接触しないようにしている。即ち、この下地膜から III 族金属窒化物単結晶が、他の下地膜から成長する III 族金属窒化物単結晶とは独立して成長するようにした。これによって、単結晶が基板本体から剥離するときに、単結晶内に生ずる応力を低減し、これによるクラックを防止できることを見だし、本発明に到達した。

図面の簡単な説明

10 図 1 (a) は、本発明の一実施形態に係るテンプレート基板 10 A を示す平面図であり、図 1 (b) は、テンプレート基板 10 A 上に窒化物単結晶 3 を形成した状態を示す平面図である。

図 2 (a) は、テンプレート基板 10 B を一方の主面 1 a 側から見た平面図であり、図 2 (b) は、テンプレート基板 10 B を他方の主面 15 1 c 側から見た平面図である。

図 3 (a) は、本発明のテンプレート基板 10 A の断面図であり、図 3 (b) は、本発明のテンプレート基板 10 B の断面図である。

図 4 (a) は、比較例におけるテンプレート基板および単結晶 13 の断面図であり、図 4 (b) は、比較例におけるテンプレート基板および 20 単結晶 23 を示す断面図である。

図 5 (a)、(b)、(c)、(d)、(e) および (f) は、それぞれ、本発明で利用できる各下地膜および各単結晶を示す平面図である。

図 6 は、本発明の一実施形態に係るテンプレート基板 10 J およびその上の単結晶を示す平面図である。

25 図 7 は、実施例 1 において、育成終了後の GaN 単結晶の外観写真を示す。

図 8 は、図 7 の G a N 単結晶を基板本体から剥離させた後の外観を示す写真である。

図 9 は、実施例 2 において、育成終了後の G a N 単結晶の外観写真を示す。

5 図 10 は、図 9 の G a N 単結晶を基板主面から剥離させた後の外観写真を示す。

図 11 は、比較例 1 において、育成終了後の G a N 単結晶の表面の外観写真を示す。

図 12 は、図 11 の G a N 単結晶の形成されたテンプレート基板の裏
10 面側の外観写真を示す。

図 13 は、図 11 の G a N 単結晶およびテンプレート基板を横から見た外観写真を示す。

発明を実施するための最良の形態

15 以下、適宜図面を参照しつつ、本発明を更に詳細に説明する。

図 1 (a) は、本発明の一実施形態に係るテンプレート基板 10 A を示す平面図であり、図 1 (b) は、テンプレート基板 10 A 上に窒化物単結晶 3 を形成した状態を示す平面図である。

基板本体 1 は、一对の主面と側面 1 b とを有する。本例では基板本体
20 1 は四辺形である。基板本体 1 の一方の主面 1 a 上に、III 族金属窒化物単結晶からなる下地膜 2 が形成されている。基板本体 1 の他方の主面上には下地膜を形成しない。下地膜 2 と、基板本体の主面 1 a の外周縁部との間には、下地膜が形成されていない未成面 4 が形成されている。
即ち、下地膜 2 の 4 片と基板本体の外周縁部との間には、それぞれ、未
25 成面 4 a、4 b、4 c、4 d が形成されている。

図 1 (b) および図 3 (a) に示すように、下地膜 2 の上に液相法に

よって単結晶 3 を形成する。この際、単結晶 3 は、下地膜 2 のエッジから外側へと向かって広がる傾向がある。しかし、本例では、下地膜 2 のエッジと主面 1 a の外周縁部との間に未成面 4 が形成されている。このため、単結晶 3 は未成面 4 上を横方向に延びるので、単結晶が側面 1 b、
5 更には反対側の主面 1 c へと延びることを防止できる。

図 2 (a) は、テンプレート基板 10 B を一方の主面 1 a 側から見た平面図であり、図 2 (b) は、テンプレート基板 10 B 上を他方の主面 1 c 側から見た平面図である。

本例では基板本体 1 は四辺形である。基板本体 1 の一方の主面 1 a 上に、III 族金属窒化物単結晶からなる下地膜 2 A が形成されている。基板本体 1 の他方の主面 1 c 上には、III 族金属窒化物単結晶からなる下地膜 2 B が形成されている。各下地膜 2 A、2 B と、基板本体の主面 1 a、1 c の外周縁部との間には、下地膜が形成されていない基板本体の未成面 4 が形成されている。即ち、下地膜 2 A、2 B の 4 片と基板本体
10 15 の外周縁部との間には、それぞれ、未成面 4 が形成されている。

図 2 (a)、図 2 (b) および図 3 (b) に示すように、下地膜 2 A、2 B の上に液相法によって単結晶 3 A、3 B を形成する。単結晶 3 A、3 B は未成面 4 上を横方向に延びるので、単結晶が側面 1 b、更には反対側の主面へと延びることを防止できる。

ここで、図 4 (a) に示すように、基板本体 1 の主面 1 a の全面を被覆するように下地膜 12 を形成すると、単結晶 13 が、基板本体の側面 1 b、更には反対側の主面 1 c のエッジへと向かって、13 a、13 b のように延びることが判明した。これによって、単結晶 13 が基板本体の側面 1 b および主面 1 c によって強固に捕捉される。この状態で基板
20 25 本体と単結晶との間に熱膨張係数差による応力が加わると、単結晶 13 にクラックが入りやすい。

6

これに対して、本発明では、基板本体 1 の外周縁部と下地膜との間に、下地膜を形成しない未成面 4 を、下地膜を全周にわたって包囲するように形成している。この結果、単結晶 3、3 A、3 B が、基板本体の側面 1 b、反対側の主面 1 c を被覆するように延びることを防止できる。

5 更に、本発明では、下地膜 2、2 A、2 B を、平面的に見て凸図形とする。これは、下地膜の外側輪郭線の任意の二点を結ぶ線分が、下地膜の外側輪郭線の内側に位置することを意味する。このような図形としては、例えば図 5 に例示するように、円形、楕円形、レーストラック形状、三角形、正方形、長方形、六角形、八角形などの多角形を例示できる。

10 下地膜に平面的に見て腕部や凹み部分があると、その周辺で単結晶に厚さの不均一が発生しやすい。しかし、本発明では、このような腕部や凹み部分のない凸図形の下地膜を形成するので、単結晶の厚さの不均一を防止できる。

その上で、本発明によれば、この下地膜から、III 族金属窒化物単結
15 晶を、他の種結晶から成長する III 族金属窒化物単結晶と接触しないように独立成長させる。

例えば特開 2005-12171 記載の方法では、基板本体上に島状の円形下地膜を複数設け、各下地膜から単結晶を成長させ、大きなバルク状の単結晶膜を形成している。即ち、図 4 (b) に模式的に示すように、基板
20 本体 1 の主面 1 a 上に円形の下地膜 2 2 を多数設ける。下地膜 2 2 の間にはクリアランス 2 4 が設けられている。この状態で下地膜 2 2 から単結晶を成長させ、バルクの単結晶膜 2 3 を形成する。単結晶膜はクリアランス 2 4 上で互いにつながり、連結部分 2 3 a を形成する。

図 4 (b) のような場合には、単結晶 2 3 のうち、下地膜間の部分 2
25 3 a は、基板本体 1 への密着性が低いはずである。一方、図 3 (a) のような場合には、単結晶膜 2 3 のほぼ全面が下地膜 2 と接触する。従っ

て、図 3 (a) のように独立して成長させる場合には、図 4 (b) の場合と比べて、単結晶膜の剥離は容易なはずであった。

しかし、現実には試作して試験してみると、意外なことに、図 4 (b) のような場合には、連結部分 2 3 a の近辺で応力によりクラックが入りやすく、かえって単結晶の基板本体からの剥離が難しいことが判明した。これに対して、本発明のような場合には、下地膜の外周縁部の全体にほぼ均等に応力が加わり、単結晶が自然剥離しやすく、この際にクラックが発生しにくいことを発見した。

図 5 (a) ~ (f) は、それぞれ、下地膜およびその上に形成された単結晶の平面的パターン例を示す平面図である。

図 5 (a) の例では、下地膜 8 C は円形であり、その上に単結晶膜 9 C が成長している。図 5 (b) の例では、下地膜 8 D は楕円形またはレーストラック形状であり、その上に単結晶膜 9 D が成長している。図 5 (c) の例では、下地膜 8 E は三角形であり、その上に単結晶膜 9 E が成長している。図 5 (d) の例では、下地膜 8 F は正方形であり、その上に単結晶膜 9 F が成長している。図 5 (e) の例では、下地膜 8 G は長方形であり、その上に単結晶膜 9 G が成長している。図 5 (f) の例では、下地膜 8 H は六角形であり、その上に単結晶膜 9 H が成長している。

本発明において好ましくは、例えば図 1 ~ 3 に示すように、一つの基板本体に一つの下地膜が形成されており、未成面が、下地膜と基板本体の縁部との間に設けられている。しかし、一つの基板本体に複数の下地膜が形成されていてもよい。ただし、この場合には、各下地膜から成長する各単結晶が互いに接触しないようにする必要がある。即ち、各下地膜から成長する各単結晶が互いに物理的に干渉せず、別々の基板上の下地膜から成長する場合と同様に成長する必要がある。

例えば、図 6 のテンプレート基板 10 J においては、基板本体 1 の主面 1 a に、複数の下地膜 8 J が形成されている。各下地膜上には、それぞれ、単結晶 9 J が形成されている。隣接する下地膜の間には未成面 14 が形成されている。隣接する下地膜の幅は、各下地膜から成長する単結晶が互いに接触しない程度に広くする必要がある。

下地膜と基板本体の縁部との間隔 d (図 1 (a) 参照) は、側面への単結晶の回り込みを防止するという観点からは、1mm 以上であることが好ましく、2mm 以上であることが更に好ましい。 d の上限は特にないが、 d が大きいと単結晶の生産性が低下するので、生産性の観点からは、 d は 10mm 以下が好ましい。

例えば図 6 に示すように、基板本体上に下地膜が複数形成されている場合には、隣接する下地膜の間隔 (最小値) D は、基板本体の側面への単結晶の回り込みを防止するという観点からは、2mm 以上であることが好ましく、4mm 以上であることが更に好ましい。 D の上限は特にないが、 D が大きいと単結晶の生産性が低下するので、生産性の観点からは、 D は 10mm 以下が好ましい。

基板本体の下地膜の設けられている主面 1 a の面積を 100% としたとき、基板本体の未成面の面積は、10~90% であることが好ましく、30~50% であることが更に好ましい。

下地膜の場所は、基板本体の中央に位置しても良いが、下地膜は、基板本体の上部に偏らせることが更に好ましい。テンプレート基板をルツボ内に縦配置して GaN 単結晶を育成した時、ルツボ底に近くなるほど GaN 単結晶が厚く成長し、回り込み成長が促進される。種結晶面積を一定にしたまま基板下部に未成膜面積を大きくとり、種結晶領域をサファイアの上部に偏在させることにより、回りこみ防止およびエピタキシャル成長面積の確保を有効に行なうことができる。

基板本体に下地膜および未成面を設ける方法は特に限定されず、以下を例示できる。

(1) 基板本体の縁端部分をマスクし、下地膜を成膜する。

(2) 基板本体の主面全体に下地膜を成膜し、次いで下地膜をエッチ

5 ングや研削によって除去する。

基板本体の材質は特に限定されないが、サファイア、シリコン単結晶、SiC単結晶、MgO単結晶、スピネル ($MgAl_2O_4$)、

$LiAlO_2$ 、 $LiGaO_2$ 、 $LaAlO_3$ 、 $LaGaO_3$ 、

$NdGaO_3$ 等のペロブスカイト型複合酸化物を例示できる。また組成

10 式 $[A_{1-y}(Sr_{1-x}Ba_x)_y][(Al_{1-z}Ga_z)_{1-u} \cdot D_u]O_3$ (Aは、希土類元素である；Dは、ニオブおよびタンタルからなる

群より選ばれた一種以上の元素である； $y = 0.3 \sim 0.98$ ； $x = 0$

~ 1 ； $z = 0 \sim 1$ ； $u = 0.15 \sim 0.49$ ； $x + z = 0.1 \sim 2$) の

立方晶系のペロブスカイト構造複合酸化物も使用できる。また、SCAM

15 ($ScAlMgO_4$) も使用できる。

下地膜を構成する III 族金属窒化物単結晶は、Ga、Al、Inから選ばれた一種以上の金属の窒化物であり、GaN、AlN、GaAlN、GaAlInN等である。好ましくはGaN、AlN、GaAlNであり、特に好ましくはAlNである。

20 下地膜の厚さは特に限定されない。下地膜のフラックスへのメルトバックを抑制するという観点からは、 $1 \mu m$ 以上であることが好ましい。

また、下地膜を厚くすると、下地膜の形成に時間がかかるので、この観点からは、下地膜の厚さを $50 \mu m$ 以下とすることができる。

本発明は液相法に対して適用可能である。このような液相法としては、
25 フラックス法、高圧溶液法、安熱法を例示できる。

本発明においては、フラックスの種類は、III 族金属窒化物単結晶を

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。

- フラックスには、目的とする III 族金属窒化物単結晶の原料を混合し、
- 5 使用する。この III 族金属窒化物単結晶は、Ga、Al、In、Bから選ばれた一種以上の金属の窒化物であり、GaN、AlN、GaAlN、GaAlInN、BN等である。

フラックスを構成する原料は、目的とする III 族金属窒化物単結晶に合わせて選択する。

- 10 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。アルミニウム原料物質としては、アルミニウム単体金属、アルミニウム合金、アルミニウム化合物を適用できるが、アルミニウム単体金属が取扱いの上からも好適である。インジウム原料物質としては、
- 15 インジウム単体金属、インジウム合金、インジウム化合物を適用できるが、インジウム単体金属が取扱いの上からも好適である。

- 本発明においては、III 族金属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
- 20 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℃とすることができる。

- 好適な実施形態においては、窒素ガスを含む混合ガスからなる雰囲気下で III 族金属窒化物単結晶を育成する。雰囲気的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、10気圧以上が好ま
- 25 しく、30気圧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、雰囲気的全圧は、2000気圧以下が好ましく、10

0.0 気圧以下が更に好ましい。

また、雰囲気中の窒素分圧も特に限定されないが、窒化ガリウム単結晶を育成する場合には 1.0 ~ 2.0 気圧が好ましく、1.0 ~ 1.0 気圧が更に好ましい。窒化アルミニウム単結晶を育成する場合には、

5 0.1 ~ 5.0 気圧が好ましく、1 ~ 1.0 気圧が更に好ましい。

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。窒素以外のガスの分圧は、全圧から窒素ガス分圧を除いた値である。

本発明における実際の育成手法は特に限定されない。例えばルツボ内でテンプレート基板をフラックス中に浸漬し、ルツボを耐圧容器に収容し、耐圧容器内に窒素含有雰囲気を供給しつつ加熱できる。また、テンプレート基板を所定位置に固定し、フラックスが収容されたるつぼを上方向へと上昇させることにより、下地膜の表面にフラックスを接触させることができる。

15 本発明は、m 面 GaN、a 面 GaN などの無極性面種結晶膜、及び r 面 GaN などの半極性面種結晶膜を備えたテンプレート基板を用いた場合においても、育成単結晶のクラック防止に有効であることが確認された。

20

実施例

(実施例 1)

図 1、図 3 (a) を参照しつつ説明した前記方法に従い、テンプレート基板 10 A 上に窒化ガリウム膜を形成した。具体的には、基板本体 1 の平面的寸法を 13×18mm の長方形とした。厚さ 30 μm の GaN を
25 HVPE 法で基板本体の主面 1 a に全面にわたって成膜し、下地膜を形成した。この下地膜を研磨加工し、縦 9 × 横 13 mm の下地膜 2 を残した。

d は 2 mm である。

原料として金属ガリウム(Ga) 3g、フラックスとして金属ナトリウム(Na) 4g および前記テンプレート基板を育成容器内に秤量および収容した。育成条件は、窒素圧力 4MPa、温度 875℃にして、200 時間育成
5 を行った。

育成終了後の GaN 単結晶の外観写真を図 7 に示す。また、GaN 単結晶を基板本体から剥離させた後の外観写真 (GaN 単結晶の裏面) を図 8 に示す。縁端部の 1 箇所においてサファイア基板本体の裏面にまで GaN 単結晶が成長しており、周辺領域にクラックが発生したが、GaN
10 単結晶の回り込みが見られなかった約 80%の領域においては、裏面のサファイアが育成終了後に自然剥離した。さらに、回り込んでいた GaN 単結晶を除去したところ、残りのサファイアも剥離した。

(実施例 2)

図 2、図 3 (b) を参照しつつ説明した前記方法に従い、テンプレート基板 10B の各主面上に窒化ガリウム膜を形成した。具体的には、
15 基板本体 1 の平面的寸法を 13×18mm の長方形とした。厚さ 5 μm の GaN を MOCVD 法で基板本体の主面 1a、1c にそれぞれ全面にわたって成膜し、下地膜を形成した。この下地膜を研磨加工し、縦 9 mm × 横 13 mm の下地膜 2 を残した。d は 2 mm である。

20 原料として金属ガリウム(Ga) 3g、フラックスとして金属ナトリウム(Na) 4g および前記テンプレート基板を育成容器内に秤量および収容した。育成条件は、窒素圧力 4MPa、温度 875℃にして、200 時間育成を行った。

育成終了後の GaN 単結晶の外観写真を図 9 に示す。また、GaN 単結晶を基板主面から剥離させた後の外観写真 (GaN 単結晶の裏面) を図
25 10 に示す。テンプレート基板の裏と表に成長した GaN 単結晶は縁端

部で全くつながっていなかった。育成終了後、両面の GaN 単結晶は共にサファイアから自然剥離しており、一方の GaN 単結晶にクラックは確認されなかった。もう一方の GaN 単結晶には、1箇所のみクラックが発生した。

5 (実施例 3)

図 1、図 3 (a) を参照しつつ説明した前記方法に従い、テンプレート基板 10 A 上に窒化ガリウム膜を形成した。具体的には、2 インチサイズのサファイアからなる基板本体の縁端部に、 SiO_2 膜でマスキングし、マスク部分を除く縦横各 1.5 インチの領域に GaN 種結晶からなる下地膜 2 を成膜した。d = 6.3 mm である。

原料として金属ガリウム(Ga) 30g、フラックスとして金属ナトリウム(Na) 40g、および前記テンプレート基板を育成容器内に秤量および収容した。育成条件は、窒素圧力 4MPa、温度 875℃にして 200 時間育成を行った。育成終了後、GaN 単結晶がサファイアから自然剥離しており、さらにクラックは確認されなかった。GaN 種結晶の端とサファイアの端の間隔が空いている事により、成長した GaN 単結晶がサファイア裏側まで回り込まず、GaN 単結晶とサファイアの剥離性が向上したことが分かる。さらには、剥離性向上によってクラックが防止されたと推察される。

20 (比較例 1)

図 4 (a) を参照しつつ説明した方法に従い、GaN 単結晶を育成した。具体的には、13×18mm 角のサファイアからなる基板本体 1 の主面 1 a 上に、厚さ 30 μm の GaN からなる下地膜 12 を HVPE 法で成膜した。下地膜 12 は主面 1 a の全面を被覆している。このテンプレート基板上に、実施例 1 と同じ秤量方法、育成条件で GaN 単結晶育成を行った。

育成終了後の GaN 単結晶の表面の外観写真を図 1 1 に示す。また、GaN 単結晶の形成されたテンプレート基板の裏面側の外観写真を図 1 2 に示す。更に、GaN 単結晶およびテンプレート基板を横から見た外観写真を図 1 3 に示す。単結晶がサファイアの裏側にまで回りこんで成長しており、剥離しなかった。さらに GaN 単結晶表面にクラックが多数発生した。

(比較例 2)

10×10mm 角のサファイアからなる基板本体 1 を準備した。基板本体の主面 1 a 上に、厚さ 10 μm の種結晶からなる細長い下地膜をストライプ状にパターンニングした。下地膜の周期は 9 μm であり、各下地膜の幅は 3 μm であり、隣接する下地膜の間隔は 6 μm である。実施例 1 と同じ秤量方法、育成条件で GaN 単結晶育成を行なった。育成終了後、GaN 単結晶はサファイアからは剥離しておらず、クラックが確認された。

(比較例 3)

15 図 4 (b) を参照しつつ説明した方法に従い、GaN 単結晶を育成した。具体的には、縦 10 mm×横 10 mm のサファイアからなる基板本体 1 を準備した。基板本体の主面 1 a 上に、直径 3 μm、厚さ 10 μm の GaN 種結晶からなる円形の下地膜 2 2 を多数形成した。隣接する下地膜 2 2 の間隔 D は 6 μm である。

20 実施例 1 と同じ秤量方法、育成条件で GaN 単結晶育成を行なった。育成終了後、GaN 単結晶は一枚の膜として一体化していた。GaN 単結晶はサファイアからは剥離しておらず、クラックが確認された。

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

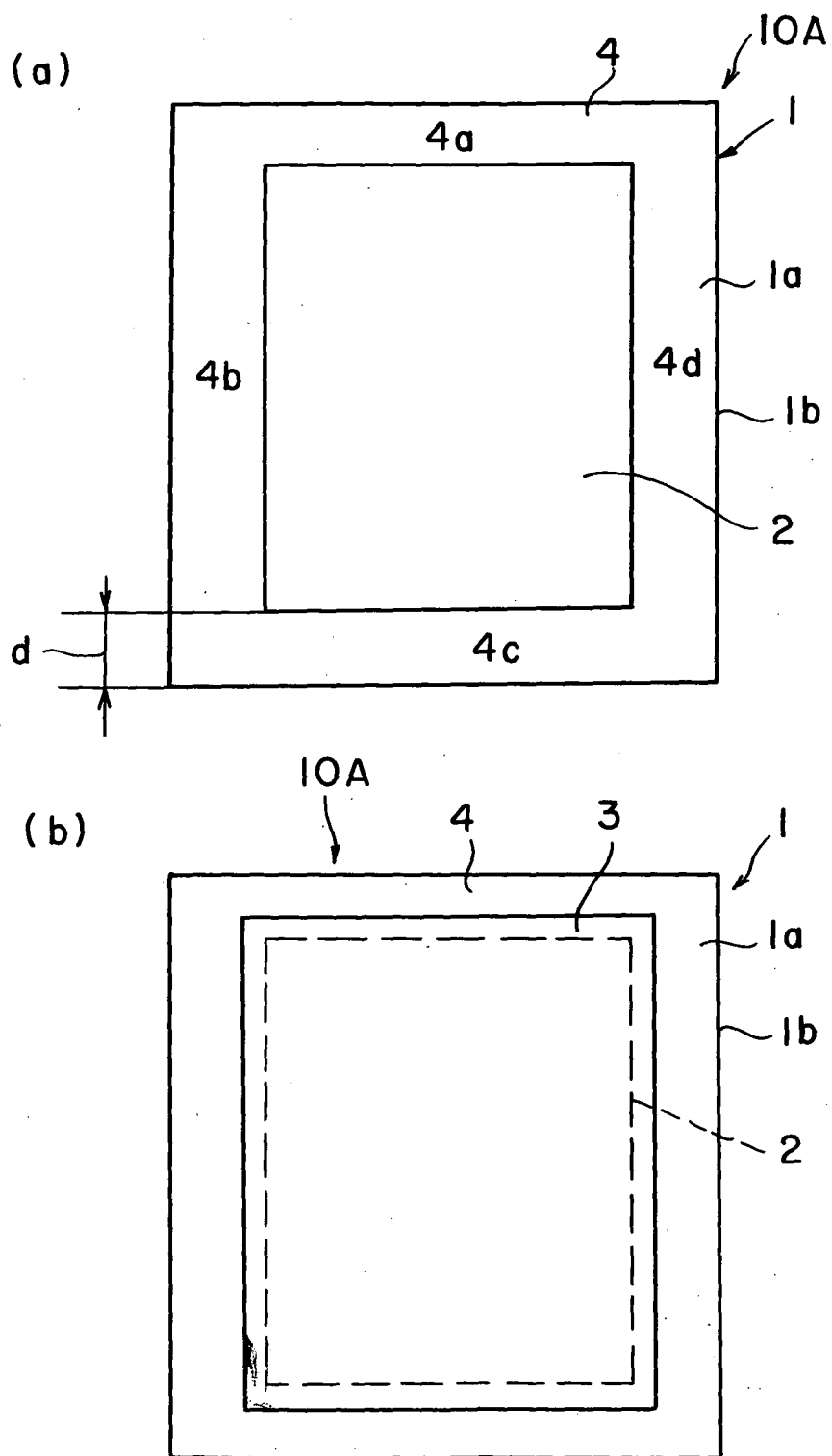
1. 側面および一对の主面を有する基板本体と、基板本体の少なくとも一方の前記主面に形成された III 族金属窒化物単結晶の下地膜とを
5 備えているテンプレート基板を使用し、前記下地膜上に液相法によって
III 族金属窒化物単結晶を育成する方法であって、

前記下地膜が平面的に見て凸図形をなしており、前記下地膜が形成されて
いない未成面が前記下地膜の全周を包囲しており、かつ前記下地膜
から成長した前記 III 族金属窒化物単結晶が他の下地膜から成長した
10 III 族金属窒化物単結晶と接触しないことを特徴とする、III 族金属窒化
物単結晶の製造方法。

2. 一つの前記基板本体に一つの前記下地膜が形成されており、前
記未成面が、前記下地膜と前記基板本体の縁部との間に設けられている
15 ことを特徴とする、請求項 1 記載の方法。

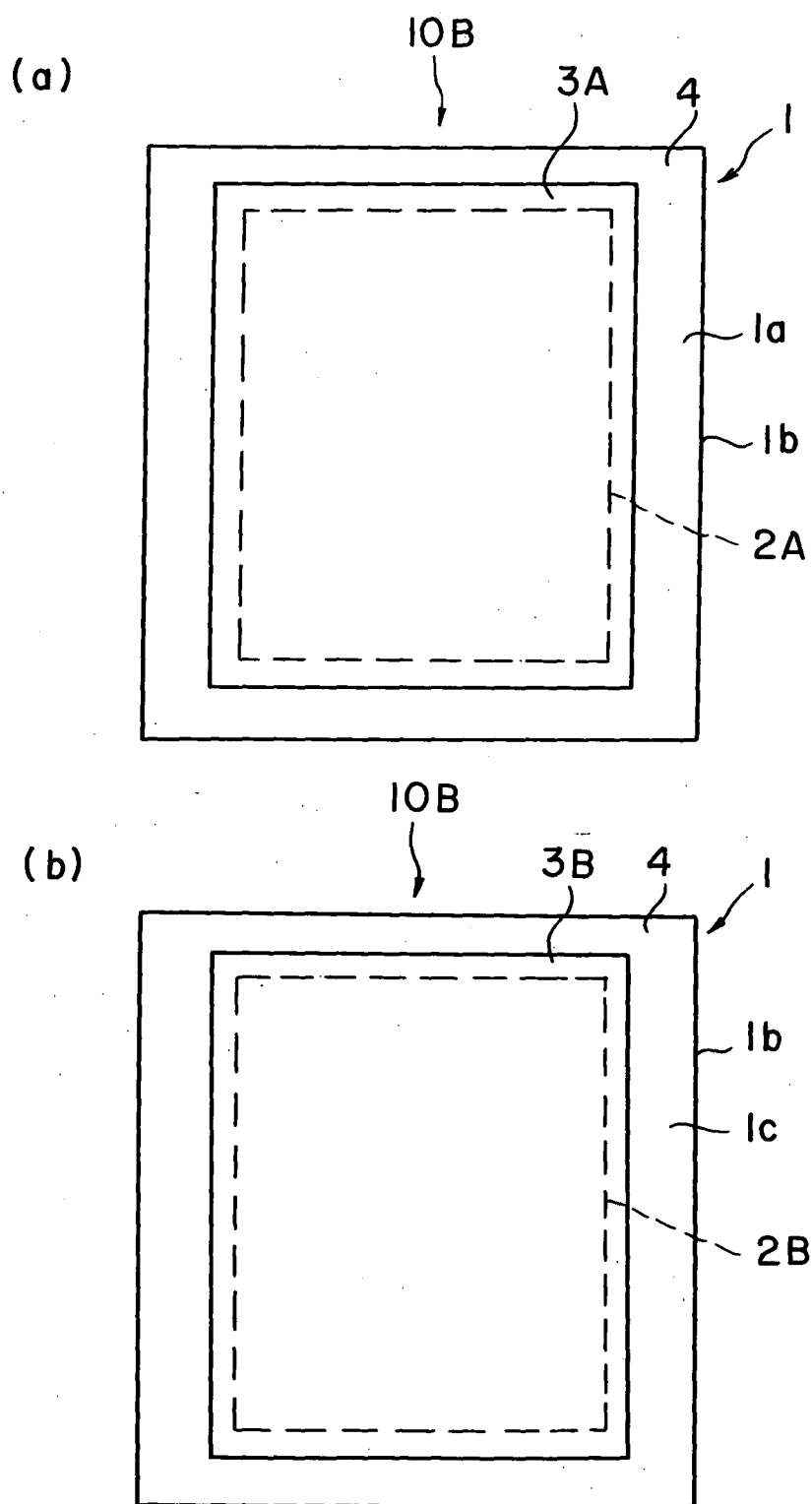
1/13

第 1 図



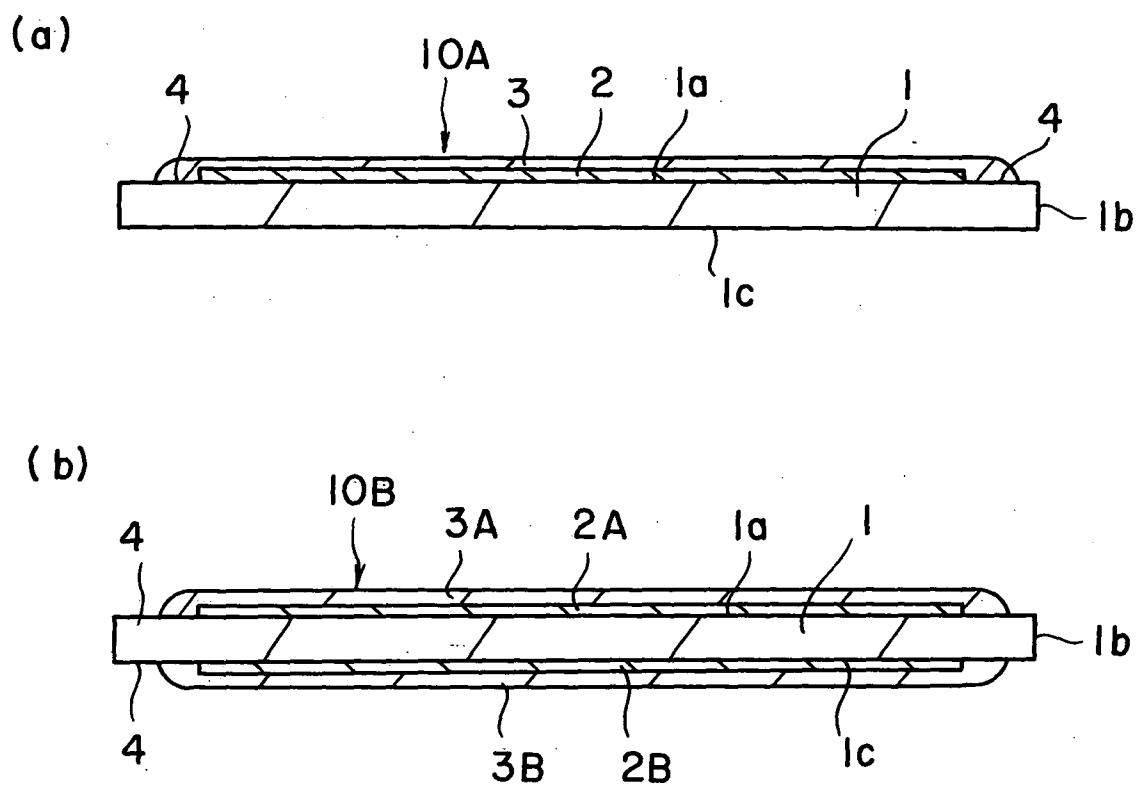
2/13

第 2 図

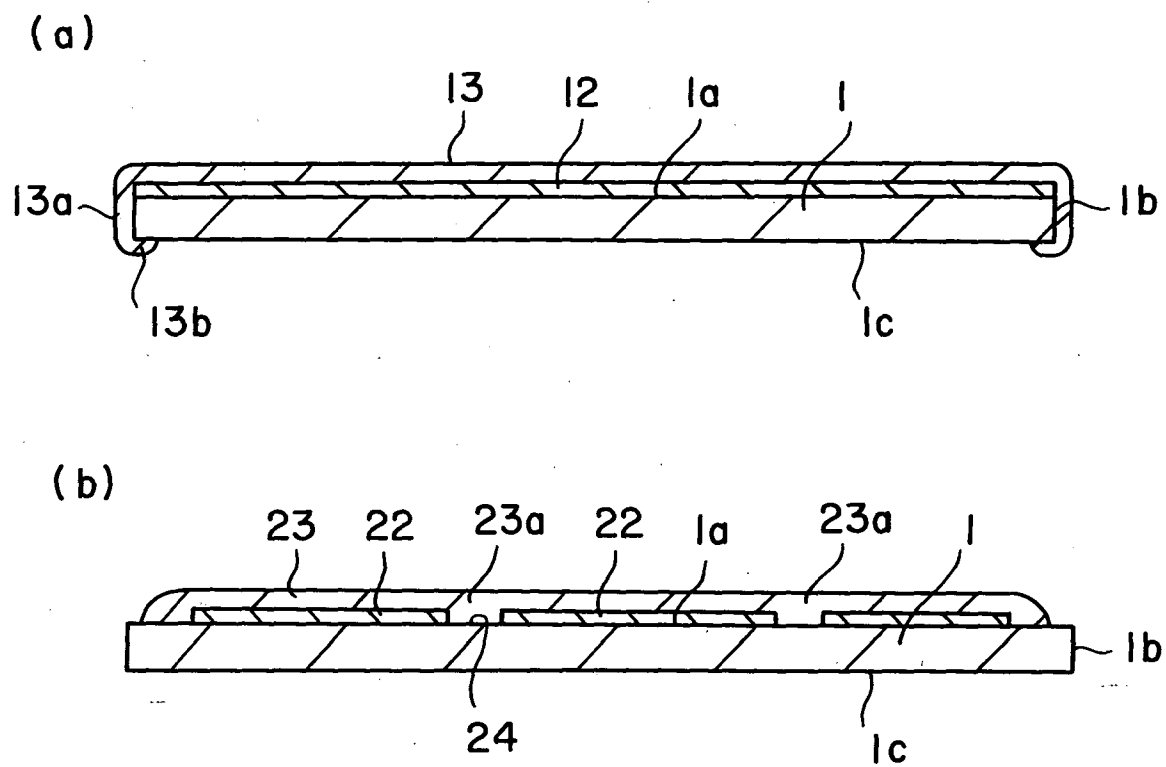


3/13

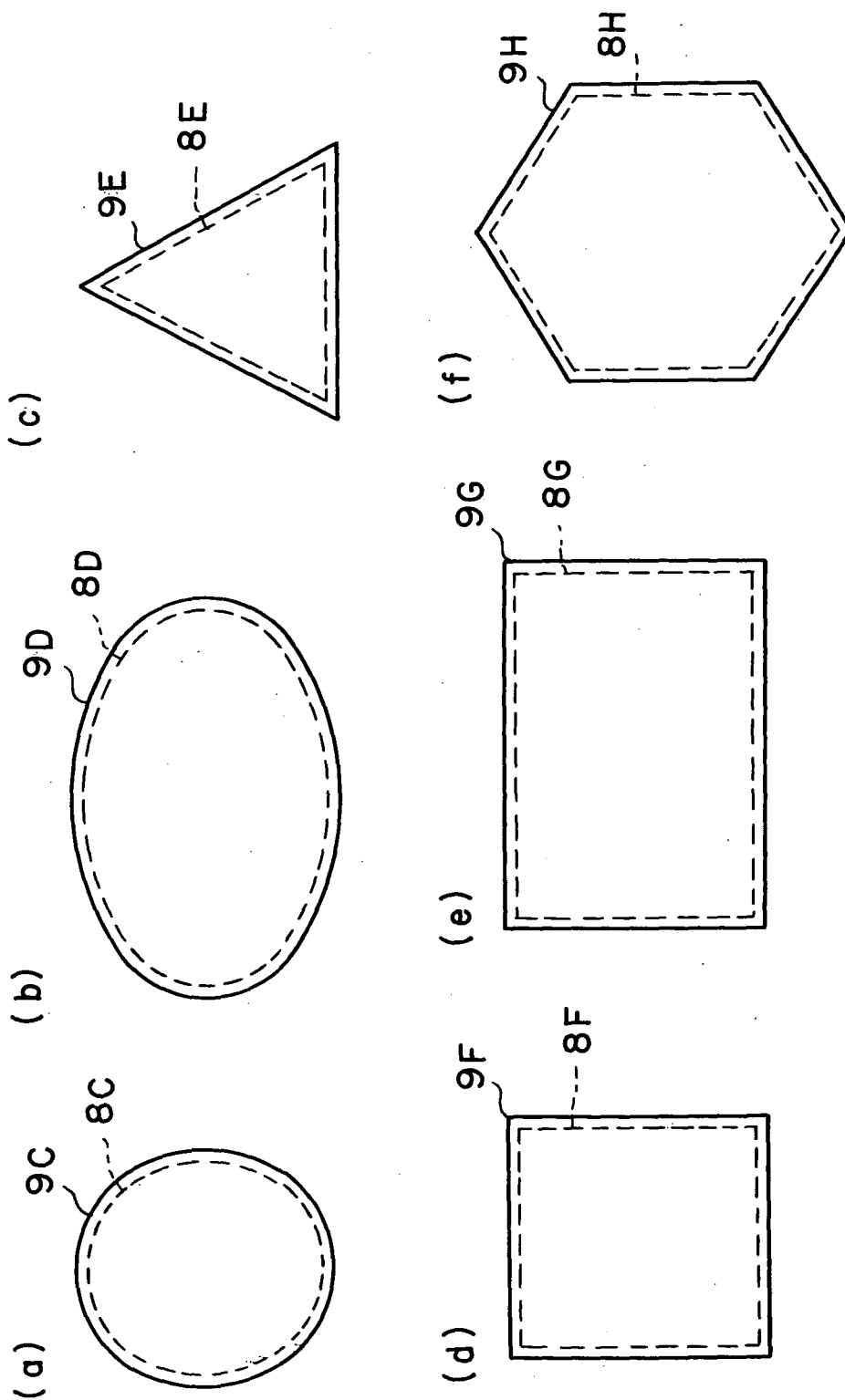
第3図



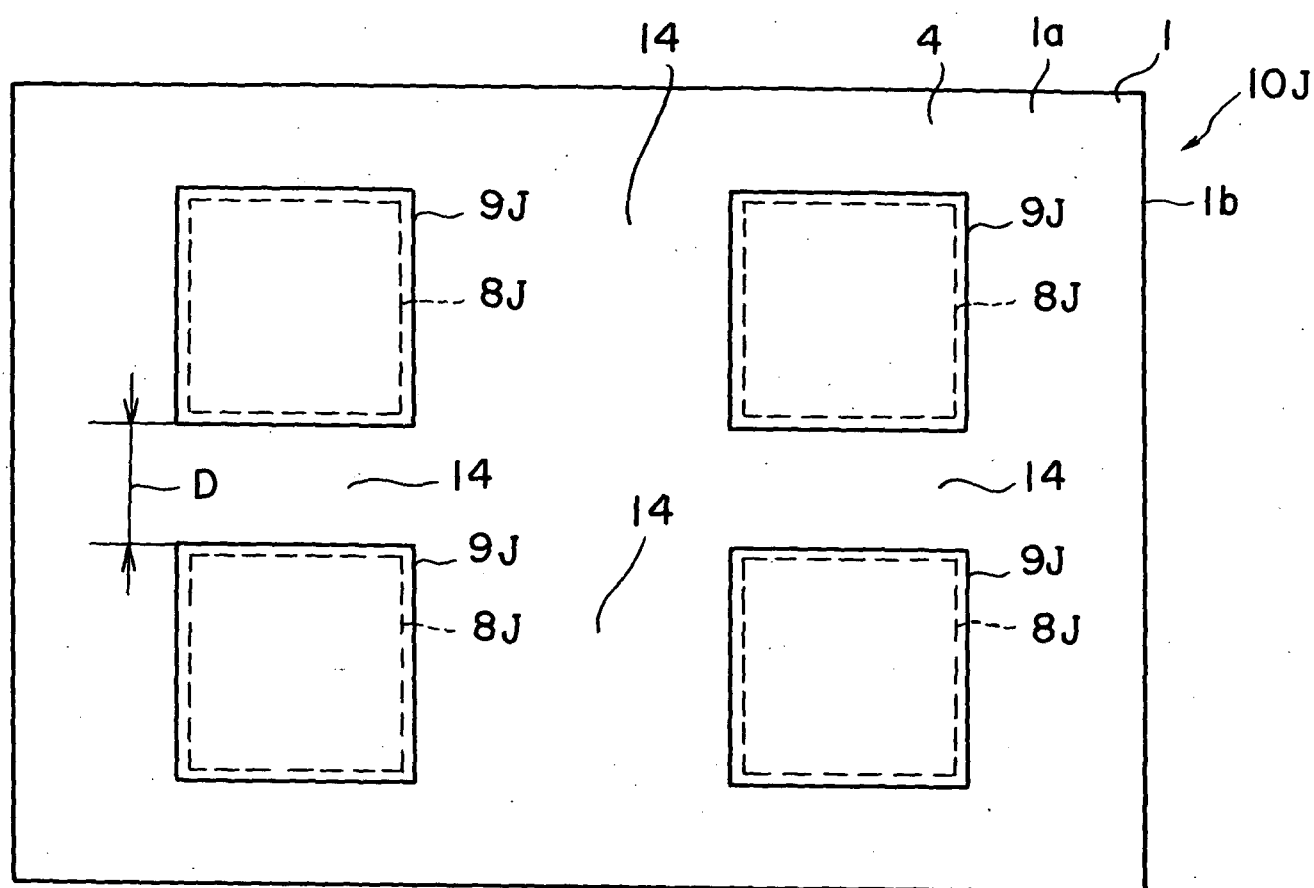
第 4 図



第 5 図

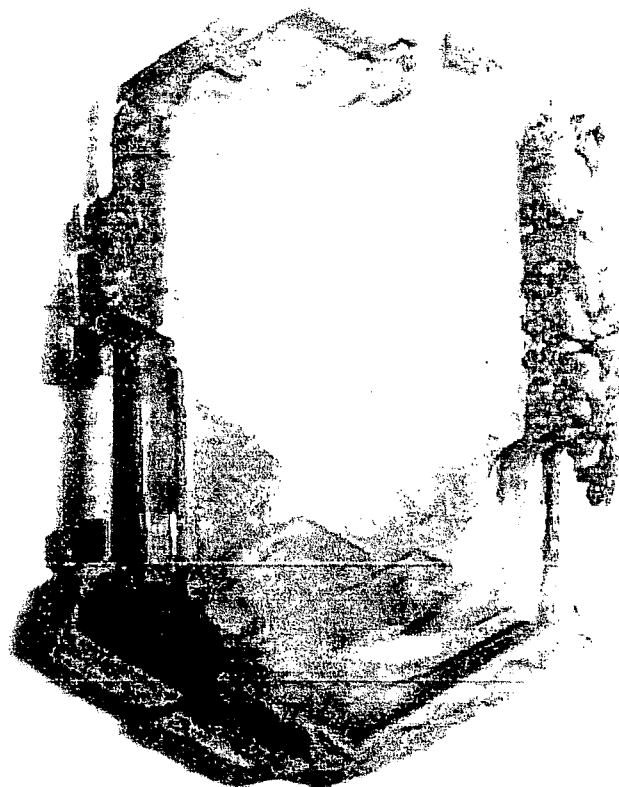


第 6 図



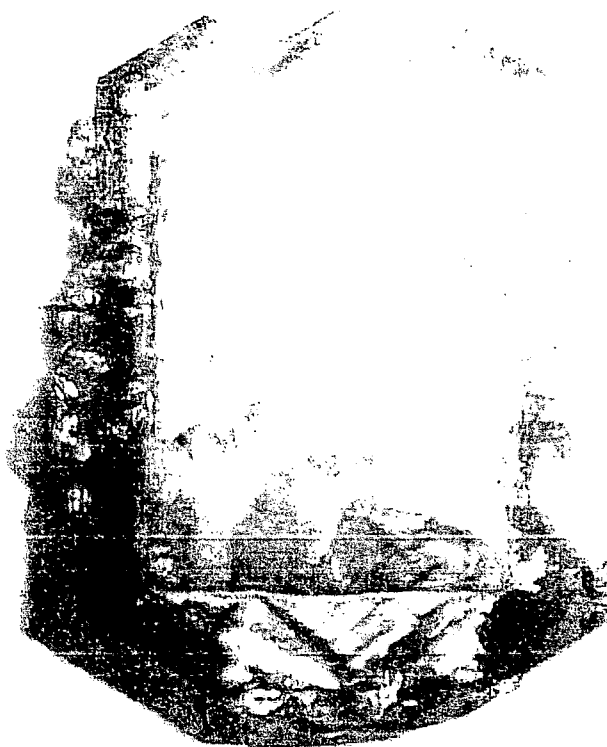
7/13

第 7 図



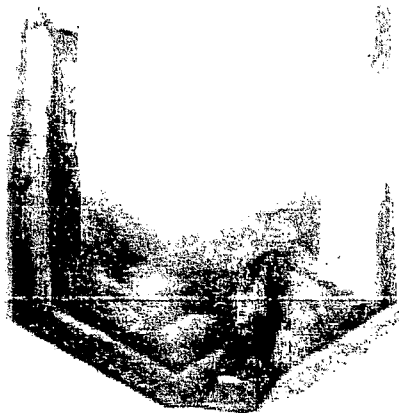
8/13

第 8 図



9/13

第 9 図



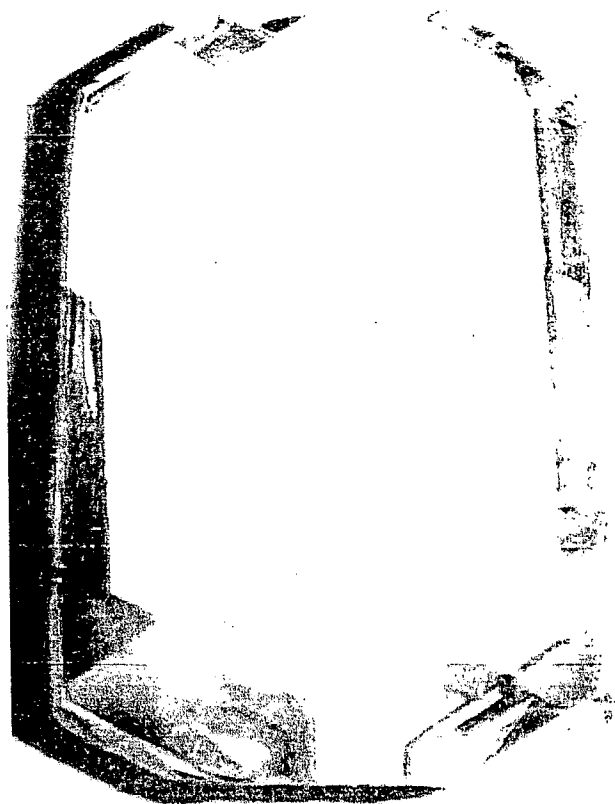
10/13

第10図



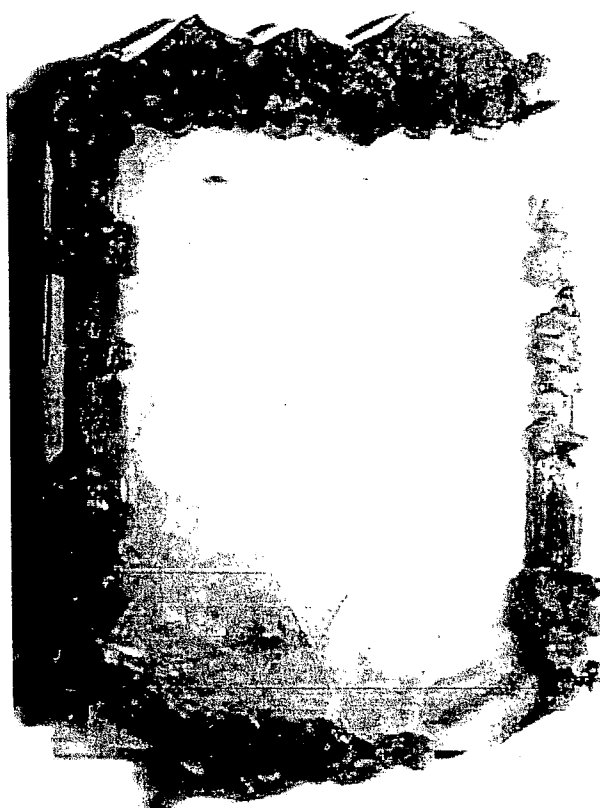
11/13

第11図



12/13

第12図



13/13

第13図



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/051394

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)

C30B1/00-35/00

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	1996-2009
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2009	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2009

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	JP 2007-246368 A (Toyoda Gosei Co., Ltd.), 27 September, 2007 (27.09.07), Full text & US 2007/0101931 A1 & DE 102006035377 A	1, 2
A	JP 2007-335484 A (Mitsubishi Cable Industries, Ltd.), 27 December, 2007 (27.12.07), Full text (Family: none)	1, 2
A	JP 2004-244307 A (Matsushita Electric Industrial Co., Ltd.), 02 September, 2004 (02.09.04), Full text & US 2004/0144300 A1 & US 2007/0187700 A1	1, 2

☒ 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
17 April, 2009 (17.04.09)

Date of mailing of the international search report
28 April, 2009 (28.04.09)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2009/051394

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 2002-043223 A (Independent Administrative Institution National Institute for Materials Science), 08 February, 2002 (08.02.02), Full text & US 2002/0038892 A1 & EP 1176231 A2	1,2

A. 発明の属する分野の分類（国際特許分類（I P C））
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（I P C））

Int.Cl. C30B1/00-35/00

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 0 9 年
日本国実用新案登録公報	1 9 9 6 - 2 0 0 9 年
日本国登録実用新案公報	1 9 9 4 - 2 0 0 9 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 2007-246368 A（豊田合成株式会社）2007.09.27, 全文 & US 2007/0101931 A1 & DE 102006035377 A	1, 2
A	JP 2007-335484 A（三菱電線工業株式会社）2007.12.27, 全文（ファミリーなし）	1, 2
A	JP 2004-244307 A（松下電器産業株式会社）2004.09.02, 全文 & US 2004/0144300 A1 & US 2007/0187700 A1	1, 2

☒ 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 7 . 0 4 . 2 0 0 9

国際調査報告の発送日

2 8 . 0 4 . 2 0 0 9

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）

亀代 陽子

4 G

3 9 4 6

電話番号 0 3 - 3 5 8 1 - 1 1 0 1 内線 3 4 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
A	JP 2002-043223 A (独立行政法人物質・材料研究機構) 2002.02.08, 全文 & US 2002/0038892 A1 & EP 1176231 A2	1, 2