

学位論文の審査結果の要旨

本研究では、窒化ガリウム(GaN)系半導体で構成される青色LED用基板となる c 軸方位のサファイア結晶の育成に垂直ブリッジマン(vertical Bridgman: VB)法を適用し、大型の結晶育成を実現することを目的とし、研究を行った。直径制御が不要で、再現性高く品質のよい結晶が得られるVB法による c 軸方位のサファイア結晶育成の大型化、実用化のために、それに適したるつぼ材質と形状について検討した。実験結果に基づいて数値解析モデルを構築し、そのモデルの拡張とそれに基づいた大型のサファイア結晶育成について論述した。

第1章では、本研究の背景と目的を示し、本論文の構成について述べている。

第2章では、本研究に関わるサファイア結晶構造及びGaN薄膜成長と、4種類の主要なサファイア結晶育成方法と数値解析の利点、本研究で用いるVB法の結晶育成プロセス、その優位点と各種結晶成長の研究事例について述べている。

第3章では、モリブデン(Mo)とタングステン(W)材質のるつぼを使用した直径3-inchで c 軸方位のサファイア結晶育成について検討した。どちらのるつぼの場合も、るつぼを損傷することなく結晶を容易に取り出すことができた。成長結晶には相違が見られ、Wるつぼではクラックフリーの結晶が再現性良く得られたことに対し、Moるつぼでは結晶にクラックや割れが観察された。Mo、W、サファイアの線膨張係数より冷却プロセスでの寸法変化およびるつぼから結晶が受ける圧縮応力の有無を考察した結果、Moるつぼでは圧縮応力が発生し、Wるつぼでは発生しないことがわかった。この差異が結晶のクラックの有無に起因していると考えられ、VB法サファイア結晶育成ではWるつぼの使用が適切であると結論した。

第4章では、3種類の形状のるつぼを使用したサファイア結晶育成と成長結晶の評価を行い、るつぼ形状と成長結晶の品質との関係について論じた。種子付け界面形状は、るつぼ形状によらずすべての場合で成長結晶側に上凸形状となり、るつぼ形状によって結晶外周部に発生するリング状の小傾角境界の領域が異なることがわかった。VB法で育成したサファイア結晶中の品質は、現在主流のKP法結晶の品質と比して同等であることを示した。

第5章では、第3章で得られた直径3-inchの種子付け界面形状について数値計算により解析し、VB法によるサファイア結晶育成機構について検討した。数値解析により得られた固液界面形状は実験で得られた種子付け界面形状と一致し、るつぼ底の温度は計算値と炉内実測値がよく一致した。半透明サファイア結晶中の内部輻射による熱移動により、界面形状が上凸形状になることを実証し、炉内温度分布や結晶育成時の界面形状を明確にした。

第6章では、第5章で確立した数値解析モデルをもとに、大型の直径6-inchの

VBサファイア結晶育成の数値解析を行った。そして温度勾配大となるホットゾーンを準備し、実際に直径6-inchのサファイア結晶育成を行った。その結果、世界初でVB法により直径6-inchの *c*軸方位サファイア単結晶育成に成功した。固液界面形状について、数値解析の結果と実験結果がよく一致しており、数値解析モデルおよび諸物性値が妥当であることを明確にできた。

第7章では、本研究を総括し結論を述べている。

本研究により、VB法サファイア結晶育成技術に関する知見を得ることができ、小口径の結晶育成の実験結果に基づいた数値解析を介して、大型の*c*軸方位のサファイア単結晶育成を実現した。

申請学位論文は、審査付発表論文3件（うち筆頭著者のもの2件）、レフリー制のある国際会議発表論文2件に基づいてまとめられており、学術的に十分高い評価を得ている。得られた研究成果は、今後予想される大型サファイアのニーズに応えるものであり、これによる照明用白色LEDの普及および低価格化など、将来の環境貢献に繋がる内容である。従って、本論文は博士（工学）の学位論文として十分に価値あるものと審査委員全員一致で判断した。

公表主要論文名

- C. Miyagawa, T. Kobayashi, T. Taishi, K. Hoshikawa, Development of the vertical Bridgman technique for 6-inch diameter *c*-axis sapphire growth supported by numerical simulation, *Journal of Crystal Growth* **402** (2014) 83-89.
- K. Hoshikawa, J. Osada, Y. Saitou, E. Ohba, C. Miyagawa, T. Kobayashi, J. Yanagisawa, M. Shinozuka, K. Kanno, Vertical Bridgman growth of sapphire —Seed crystal shapes and seeding characteristics, *Journal of Crystal Growth* **395** (2014) 80-89.
- C. Miyagawa, T. Kobayashi, T. Taishi, K. Hoshikawa, Demonstration of crack-free *c*-axis sapphire crystal growth using the vertical Bridgman method, *Journal of Crystal Growth* **372** (2013) 95-99.
- T. Taishi, T. Kobayashi, M. Shinozuka, E. Ohba, C. Miyagawa, K. Hoshikawa, Morphology and formation mechanism of metallic inclusions in VB-grown sapphire crystals, in: *Proceedings of 17th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy*, Warsaw, Poland, 2014, pp.388-391.
- K. Hoshikawa, T. Taishi, E. Ohba, C. Miyagawa, T. Kobayashi, J. Yanagisawa, M. Shinozuka, Vertical Bridgman growth of sapphire crystals, with thin-neck formation process, in: *Proceedings of 17th International Conference on Crystal Growth and Epitaxy*, Warsaw, Poland, 2014, pp.146-149.