

氏名(本籍・生年月日) 宮川 千宏(長野県 昭和49年11月8日)
学位の種類 博士(工学)
学位記番号 甲第633号
学位授与の日付 平成27年3月20日
学位授与の要件 信州大学学位規程 第5条第1項該当
学位論文題目 垂直ブリッジマン法によるc軸方位の
大型サファイア単結晶育成に関する研究
論文審査委員 主査 准教授 太子 敏則 教授 橋本 佳男
教授 佐藤 敏郎 准教授 番場 教子
教授 塚田 隆夫(東北大学)

論文内容の要旨

青色 LED は、YAG 蛍光体との組み合わせにより、白色を発光させることができ、省エネルギー化に有効な照明手段として普及してきている。GaN 系半導体で構成される青色 LED では、その下地基板として c 面サファイアウェーハが使用されており、ウェーハ口径は、直径 2-inch から 4-inch そして 6-inch に拡大する傾向のため、大型で高品質な c 軸方位のサファイア結晶の育成方法が求められている。

本研究では、c 軸方位のサファイア結晶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、研究開発を実施した。VB 法の優位点は、るつぼ中で結晶成長させるため直径制御が不要であることと、低温度勾配中で結晶成長が可能であり、再現性高く品質の良い結晶が得られることにある。VB 法による c 軸方位のサファイア結晶育成の実用化のために、それに適したるつぼ材質と形状について検討した。そして、実験結果に基づいて構築した数値解析モデルとその数値解析モデルを適用した大型のサファイア結晶育成について論述した。

本論文は全7章で構成されている。

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る。

第2章では、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について述べる。そして、本研究で用いる VB 法の結晶育成プロセス、その優位点と欠点、各種結晶成長の研究事例について述べる。

第3章では最初に、VB法によるサファイア結晶育成において、種子付け成功例と失敗例について述べる。次に、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実験及び冷却プロセス時の収縮による直径変化を示し、実用的なるつぼ材質について検討した。Mo、Wるつぼを使用した場合共に、室温でるつぼ内壁と成長結晶外周の間に僅

かな隙間があり、るつぼと結晶を損傷することなく結晶を取り出すことが出来た。一方、成長結晶には相違が見られ、Wるつぼではクラックない結晶が再現性良く得られたことに対し、Moるつぼではしばしば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直径変化を計算した結果、Moるつぼでは、るつぼより結晶への圧縮応力の発生が推測された。一方で、Wるつぼでは、結晶外径とるつぼ内壁の間に常に隙間がある結果となった。

第4章では、中心支持の定径種子るつぼ、外周支持の定径種子るつぼ、テーパー種子るつぼの3種類のるつぼ形状を使用したサファイア結晶育成により得られた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った。中心支持の定径種子るつぼの場合、サファイア融液が種子結晶側面から底部にまで流れ込み、その部分が種子結晶と方位がずれた状態で急速に固化し、そこを起点として外周部分においてリング状の小傾角境界が発生した。外周支持の定径種子るつぼの場合、温度分布の改善により、融液の種子結晶底部への流れ込みが抑制され、小傾角境界発生領域の縮小に繋がった。テーパー種子るつぼの場合、成長結晶の外周部分に小傾角境界が生じないことがわかった。

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、数値解析による温度分布と比較検討し、半透明サファイア結晶中の内部輻射による固液界面形状への影響を含め、VB法によるサファイア結晶育成機構について検討した。直径 3-inch の数値解析による固液界面形状は、実験で得られた種子付け界面形状と良く一致した。また実験でるつぼ底に配置した熱電対により得られた温度と数値解析による温度は、非常に近い値となった。半透明サファイア結晶中の内部輻射による熱の移動により、界面形状が上凸形状になることを実証した。論文中で示した各物性値は、数値解析によるサファイア結晶育成の温度分布、融液流れの予測のために有用である。

第6章では、第5章で確立した数値解析モデルを大型の直径 6-inch のVBサファイア結晶育成に適用し、2種類のホットゾーンモデルにおける温度分布について検討した。そして、計算結果をもとに実際に1種類のホットゾーンを準備して、直径 6-inch のサファイア結晶育成を行った。2種類のモデルでは、大小異なる温度勾配の数値解析結果が得られたが、サファイア結晶の内部輻射の効果により、両方共に結晶内部の成長方向の温度勾配は小さく、固液界面は上凸形状となった。そして種子付けプロセスの安定性や再現性の良い温度勾配大となるホットゾーンを準備し、世界で初めてVB法により直径 6-inch でc軸方位の単結晶育成に成功した。そして数値解析により得られた固液界面形状と、実験の種子付け界面形状がよく一致することを示した。

第7章では、本研究を総括し結論を述べる。

以上より、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、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。