

学位論文の審査結果の要旨

水銀フリー、低消費電力、高寿命である白色発光ダイオード (LED) は青色LEDと黄色蛍光体を混合した樹脂から成り、蛍光体混合樹脂は白色LEDの高輝度化に伴い、その耐久性に課題が生じる。それに対して、高輝度、高耐久性の新しい白色LED用蛍光材料として、オール無機でその組織構造から高輝度化が期待されるCe添加 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$ 共晶体（以下Ce-doped MGCとする）の研究開発が進んでいる。本論文では、垂直ブリッジマン (VB) 法によりCe-doped MGC大口径結晶を育成することを目的とし、坩堝からの育成したCe-doped MGCの取り出し、低コストで安定製造につながる Al_2O_3 種子によるCe-doped MGC育成、これまでに報告例がないCe-doped MGCの組織構造と光学特性の関係について論述した。

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、本研究で扱うCe-doped MGCの概略について述べ、一般的な共晶反応や共晶体の組織構造、成長条件の関係について紹介する。一方、これまでに報告されているCe-doped MGCの育成方法の特長と各方法の長所、短所を示した。VB法におけるCe-doped MGCの課題は育成したCe-doped MGCを坩堝から取り出し、低コストで安定な製造プロセスを実現することで、これらの課題を解決することにより大口径MGCの生産が可能となることを示している。

第3章では、VB法におけるCe-doped MGCの育成に用いる坩堝の材質、形状について論じている。MoとIr製の坩堝を用いて、VB法によるMGC種子からのCe-doped MGCの育成を行った。Ir坩堝を用いた場合には結晶を取り出せなかった。一方Mo坩堝の場合は、ある一定の厚みがあれば結晶を取り出すことができ、坩堝の再利用が可能であることが示された。結晶の取り出しには、結晶と坩堝材の熱膨張係数の大小と、結晶と坩堝の固着現象（引っ張り）が関係していることを理論的に考察している。

第4章では、*a*-軸 Al_2O_3 種子を用いたVB法によるCe-doped MGC育成について論じている。 Al_2O_3 種子を用いて育成したCe-doped MGCをEBSD法により結晶方位解析を行った結果、 Al_2O_3 種子からMGC中の Al_2O_3 相は結晶方位を引き継ぐことができ、YAG相は任意の方位となることを確認した。しかしながら、育成が進むにつれてMGC内のYAG相の結晶方位は数種類に限定されることがわかった。 Al_2O_3 種子およびMGC種子で育成したCe-doped MGCの光学特性の比較し、二つのMGCは色度、発光効率共にほぼ一致したため、 Al_2O_3 種子を使用したMGCについても光変換材料として使用可能であることを明らかにした。

第5章では、育成速度の違いによるCe-doped MGCの組織構造についての検討を行い、Ce-doped MGCの光学ムラの評価について論じている。育成速度が5mm/hで

は共晶に特有のコロニー構造が生じたが、2mm/hではコロニー構造は観察されなかった。コロニー構造が生じた場合に、異相 $\text{CeAl}_{11}\text{O}_{18}$ が晶出することが示され、状態図を用いての考察がなされている。光学特性評価の結果、コロニー構造や異相の存在が光学ムラに影響することを明らかにした。

第6章では、VB法におけるMGC光変換材料の大口径となる3インチのCe-doped MGCの育成について述べている。Mo坩堝からの取り出しができ、コロニー構造が見られない直径3インチのMGC育成に成功した。光学ムラのないCe-doped MGCの内部量子効率 97% であり、優れたLED特性を有することがわかった。

第7章では、本研究をまとめ、結論を述べている。

以上の結果から、光学特性に優れた直径3インチのCe-doped MGCの安定かつ再現性の良い育成が実現できた。

申請学位論文は、審査付発表論文2件（うち筆頭著者のもの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、学術的新規性が高く、実用的にも将来の高輝度白色LEDの普及、量産化に大きく貢献すると判断される。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

- M. Yoshimura, S. Sakata, H. Iba, T. Kawano, K. Hoshikawa, Vertical Bridgman growth of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ melt growth composite, Journal of Crystal Growth **416** (2015) 100-105.
- M. Yoshimura, S. Sakata, S. Yamada, T. Taishi, K. Hoshikawa, The growth of $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}:\text{Ce}$ melt growth composite by the vertical Bridgman technique using an *a*-axis Al_2O_3 seed, Journal of Crystal Growth **427** (2015) 16-20.