

氏名(本籍・生年月日) 吉村 正文(山口県 昭和53年12月19日)
学位の種類 博士(工学)
学位記番号 甲第644号
学位授与の日付 平成27年9月30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Ceドープ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$ 共晶成長技術
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 吉川彰(東北大学)

論文内容の要旨

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)はその用途の拡大から新しい白色光源として研究開発が進められている。一般的な白色LEDの構成は青色LEDと黄色蛍光体を混合した樹脂からなり、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。そこで、高輝度、高耐久性の新しい白色LED用蛍光材料として、セラミックス材料であることから高耐久性があり、その組織構造から高輝度が期待されるCeドープ $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{YAG}$ 共晶体(以下Ce-doped MGCとする)が研究されている。しかしながら、これまでに $\phi 40\text{mm}$ 以上の大口徑Ce-doped MGCの報告はない。

本研究では、垂直ブリッジマン(VB)法により大口徑Ce-doped MGCを育成することを目的とし、坩堝から育成した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の検討を行った。

本論文は第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、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。従来の研究から酸化物共晶体の組織構造を紹介し、コロニー構造の発生や、育成速度における組織構造の制御について触れる。また、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、短所を述べる。Ce-doped MGC育成にVB法を適用する際の課題は、育成したCe-doped MGCを坩堝から取り出すことと、低コス

トで安定な製造プロセスを実現することであり、これらの課題を解決することが必要不可欠であることを示す。

第3章では、VB法におけるCe-doped MGCの育成に用いる坩堝の設計について述べる。MoとIr製の坩堝を用いて、VB法によるCe-doped MGCの育成を行った。Mo坩堝からMGCが取り出せたが、Ir坩堝からは取り出せなかった。Ce-doped MGCと坩堝材料の熱膨張係数を比較することにより坩堝からの取り出しの考察を行った。MoについてはMGCより熱膨張係数が小さいため、坩堝とMGCの間に隙間が生じ、取出しが可能となる。一方、IrについてはIrの熱膨張係数がMGCより大きい温度範囲があることから、坩堝とMGCの隙間に圧縮応力を生じ取り出しが不可となると考えられる。また、薄いMo坩堝を用いた場合、育成中に坩堝が変形し、MGCの取出しが不可となることがわかり、坩堝の厚みは坩堝からの取り出しに影響することを示した。

第4章では、*a*軸Al₂O₃種子を用いたVB法によるCe-doped MGC育成を行った。Al₂O₃種子はMGC融液に溶解し、溶解量が多いと育成したMGC内に粗大なAl₂O₃相が発生するが、種子付け時間の短縮により、Al₂O₃の粗大相を抑制できることを明らかにした。また、育成したMGCはEBSD法により結晶方位マッピング解析を行い、Al₂O₃種子からMGC中のAl₂O₃相は結晶方位を引き継ぐことができ、YAG相は一定の方位にならないことを確認した。しかしながら、育成が進むにつれてMGC内のYAG相の結晶方位は一定となることがわかった。Al₂O₃種子で育成したMGCとMGC種子で育成した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、Al₂O₃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示した。

第5章では、育成速度におけるCe-doped MGCの組織構造についての検討を行い、Ce-doped MGCの光学ムラの評価を行った。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。コロニー構造の発生は組成的過冷却発生によるものであると考えられる。光学特性評価の結果、コロニー構造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MGCの育成について述べる。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MGCの内部量子効率は97%であった。従来品や競合品と比較し、Ce-doped MGCの優位性を判断した。

第7章では、本研究をまとめ、結論を述べる。

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。