

氏名	Yujin CHO
学位の種類	博士(工学)
学位記番号	博甲第 7679 号
学位授与年月日	平成 28 年 3 月 25 日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	

Effect of Si-doping on the Properties of AlN Powder
(AlN 粉末蛍光材料への Si ドーピングの効果の研究)

主査	筑波大学教授	理学博士	関口 隆史
副査	筑波大学教授	理学博士	中山 知信
副査	筑波大学教授	理学博士	秋本 克洋
副査	筑波大学准教授	博士(工学)	深田 直樹
副査	物質・材料研究機構	博士(工学)	武田 隆史

論 文 の 要 旨

波長 250~350nm 高輝度の紫外光は、白色照明の励起源だけでなく、水や空気の浄化、殺菌や医療などに応用されている。この紫外光源としては、水銀ランプ、ハロゲンランプ等が一般的であるが、これらは大きな電源が必要であったり、有害物質が含まれているなどの欠点がある。このため、これらに替わる紫外光源の開発は重要である。窒化アルミニウム (AlN) は、Ⅲ族窒化物半導体として、発光ダイオード (LED) などに応用されているが、その成長には高い技術が必要で、価格も高い。現在 AlN を蛍光材料として、電界放射ディスプレイに使うことも検討されているが、十分発光輝度の高い AlN 粉が得られていない。

本研究は、AlN 粉末を焼成する際に、Si をドーパントとして添加し、得られた AlN の特性を調べたものである。AlN 粉末に Si_3N_4 粉末を所定の割合で秤量し、ガス印加型の焼成炉にて焼成を行った。この試料の形状、組成、電気的・光学的特性を評価し、最適な添加割合を得るとともに、AlN 粉の焼成時に、Si が果たす役割を検証した。

本論文は、7章から成り、1章の序論、2章の実験法の記述ののち、3から5章で巨視的な測定結果を、6章で微視的な測定結果を述べ、7章に結論を置いている。

3章から5章は、Si の添加量による、粉末の形状(3章)、組成や不純物量の変化(4章)、電気的・光学的性質の変化(5章)を測定し、結果を議論している。3、4章では、Si の添加量が 2.4%までは、添加量に比例して O 不純物量が減少して 0.16%になることを見出した。一方、Si は 1.6%から上昇し、試料に取り込まれることがわかった。また、粒の成長などより、添加量 1.2%以下(A)、1.6~2.4%(B)、2.8%以上

(C)の3領域で、粒成長の具合が異なることを結論した。5章は、電子スピン共鳴(ESR)とカソードルミネッセンス(CL)について述べている。ESRでは、スペクトルが2つの幅広と、1つの鋭いピークに分解されることを示し、前者は、A領域のOの減少に比例して減少する成分、C領域のSiに比例して増加する成分に対応して、後者は、AとC領域で観察された。CLスペクトルも、3.6eV、3.2eVの主ピークと、2.8eV、4.3eVのサブピークに分解され、3.6eVはOの減少とともに減少しており、3.2eVは不純物の増減とはっきりした相関がないことがわかった。ESRの結果は組成の変化で良く説明できるが、CLは難しいことがわかる。

6章では、粉末試料の断面を切り出し、CLなどの観察を行った。これより、A領域ではSiNがAlN粒表面を覆い、粒内のOが外方拡散してSiNと反応しSiOとなって取り除かれることがわかった。次にB領域では、SiN層がAlN粒を凝集させ、粒成長を促進させる。粒成長に伴って、粒内に一様にSiが取り込まれることがわかった。C領域では、粒界にSiAlONが成長し始め、AlN粒の均一な成長が阻害されることがわかった。

7章のまとめでは、①1.6~2.4%のSi添加で、最良のAlNが得られることが結論された。②SiNは、焼成中にAl粒を覆って、初めはAlN中のOを有効に取り除き、次に粒同士を凝集させて結晶成長を促進する。しかしながら濃度が高くなるとSiAlONなどの二次相を形成して、結晶成長を阻害することがわかった。

以上の結果は、高品質のAlN粒を作製するために、Si₃N₄の添加が有効であり、バンド端発光は得られないものの、欠陥を介した紫外発光体として応用ができることを示している。今後この研究を発展させれば、AlN粉末の更なる高品質化や、他のワイドギャップ材料粉末の高品質化にも応用できるであろう。

審 査 の 要 旨

[批評]

本論文では、紫外発光体への応用を目指して、高品質のAlN粉末の作製を検討した。Si₃N₄粉末添加によるSiドーピングが有効であることをふまえ、Si量を変えてAlN粉末を焼成し、その結晶学的、化学的、電氣的・光学的性質を調べ、最適なSi添加量を導き出すとともに、粒成長におけるSiの役割を明らかにした。これらの結果は、高品質AlN粉末を育成するために重要であるだけでなく、ワイドギャップ材料粉末の高品質化にも応用可能であり、紫外発光体の創製に貢献する成果であると認められる。

審査では、測定データから導き出される実験結果について質疑がなされ、概ね満足のいく回答が得られた。また、欠陥の同定の信憑性や、測定誤差に関しても質問があり、回答がなされた。データ量は十分であるが、考察を充実されたいとのコメントがあった。質疑応答に関しても、合格であると判断された。

以上の理由から、本論文は博士論文として十分と判断された。

[最終試験結果]

平成28年2月15日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文についての説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(工学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。