

(InGaAl)N 系青色発光ダイオード

日亜化学工業(株) 開発部 中村 修二

(InGaAl)N Based Blue-Light-Emitting Diodes

Shuji Nakamura

R&D Department
Nichia Chemical Industries Ltd.

我々は1993年11月に従来の SiC青色LEDよりも100倍明るい光度1カンデラの GaN系青色LEDを発表製品化した。また1994年4月には従来の GaP緑色LEDよりも20倍明るい2カンデラの青緑色LEDを製品化した。今年10月には2カンデラの GaN系青色LEDも製品化した。これらの青色LEDが製品化されたことで従来不可能であったLEDディスプレイのフルカラー化が可能となり大画面の平面LEDフルカラーディスプレイが街角、球場などに展示されるのも時間の問題である。従来から安全上、交通信号のLED化が望まれ赤色、黄色はあったが青色がなく実現できなかった。高輝度青色LEDの出現により可能となり、すでに愛知、徳島両県に設置され交通安全に貢献している(Fig.1参照)。また、従来の真空管式白色光源(蛍光灯、白熱灯)の代わりに将来は半導体固体発光素子である白色LEDを各種照明用として使用する可能性の道が開けてきた。これは電気回路の真空管が固体半導体であるトランジスターに変わっていったのと同様に光源、照明に関しても固体化が起きることを意味する。これらのブレイクスルーに関する技術的なことはすでにたくさんの雑誌に出ているので、ここでは、GaN

系青色LEDの開発秘話を自分の体験を基に述べたいと思う。

我が社はTV用、ランプ用蛍光体で国内50%近く、外国30%ぐらいのシェアを持つ蛍光体製造会社である。蛍光体は粉であり主な材料はZnSなどのII-VI系からできている。製造方法は簡単に言えば、化学反応から蛍光体母材を作り、電気炉で焼成し、粉碎して粉にして製品となる。蛍光体の売り上げは会社全体の90%にもなる。1979年に入社した当時は、ほぼ売り上げの100%は蛍光体であった。当時入社と同時に開発課所属になったが、開発課は課長を含めて男性4名、女性3名であり開発課ができて間もない時期であり、会社の開発課の研究方向に対して苦労しているように受けとれた。当時開発課の主なテーマはGaメタルの精製であった。Gaメタルは当時GaAs、GaP等の液層エピタキシャル成長用あるいはバルク結晶成長用原料として高純度のものが必要であった。このため会社としては半導体関係に新たな市場を求めて化学会社の立場から開発していたのである。すでに99.9999%純度のGaメタルの精製ラインができて少し売れてきそうな状況であった。

私はこのGaメタルの精製に関しても少し手伝ったが、主なテーマは液層エピタキシャル成長用に使用するGaP多結晶の合成を水平ブリッジ

〒774 徳島県阿南市上中町岡491
Tel. 0884-22-2311

マン法ですることであった。専門は電子工学であったが、初めて半導体結晶に踏み込むこととなった。水平ブリッジマン法とは透明石英管の一端にGaメタル、もう一端の赤燐を入れ、酸水素バーナーで透明石英管を真空封止して、電気炉に入れ温度を1100℃近くまで上げ赤燐とGaメタルを反応させ GaPを合成するのであった。この反応の問題点は爆発が頻繁に起こることであった。反応温度が1100℃と透明石英がほぼ軟化する温度であり、また燐の蒸気圧も1気圧以上に上げて反応していたので、よく反応中爆発したものである。爆発すると赤燐が非常な白煙を上げて燃え、大火災でも起きたような状況になる。ひどいときには電気炉から1 mと離れていない時に電気炉が爆発し石英の破片、赤燐が自分の回りに飛び散り運良くけがをしなかったものである。爆発の度に、社内の人々が“中村生きとるか”と冗談まじりに集まってきたものである。こちらは噴煙の中、消火作業と後始末でたいへんである。おまけに始末書のレポートまで書かされたものである。今、考えるとよくけがをしなかったものだと驚いている。こういう危険な反応であるが、始めてから2年ぐらいて、小量ではあるが初めて他社に売れた。このとき

は我ながら感動した。自分の作ったものが初めて売れたからである。しかし量が少量なので売り上げが少なくあまり会社には貢献はできなかった。

そうこうしているうちに、今度は営業サイドからGaAsの多結晶を作ってくれという要求が出て、GaAs多結晶の開発にまたもや一人でやらされた。1982年当時である。我が社の新規開発は原則的に一人でするのである。GaAsの合成はGaPよりは基本的に簡単であった。それは単に爆発しても大音響を立てて爆発しないのと、砒素が赤燐みたいに燃焼しにくいという、爆発の観点のみからの判断であった。量産とか品質とかそういう観点からではない。よく爆発させて苦労してきたからであった。このGaAsも2年ぐらいで多結晶は製品化して小量ではあるが売れ出した。このころは自分で開発し営業と一緒に売り込みにいき、クレームが出ると一番に行かされた。要は開発、製造、営業とほとんどの仕事をやらされた。これは小さい会社の長所または短所か良くわからない。やっている本人は全部の仕事がよくわかるのでおもしろい。今ではLEDの所帯が大きくなり過ぎ、自分で全部ができないのでおもしろくない面も多々ある。



Fig.1: LED traffic lights which were set up in Tokushima prefecture on October 21, 1994.

その後、その延長としてGaAs単結晶もやれということで単結晶の研究も引き続きやり始めた。この単結晶の研究をやり初めて半年くらいで、今度は営業が赤外LED用の液層エピタキシャル成長をやれという話しを持ってきた。急きょこれを新入社員1名とでスタートすることとなった。GaAsのバルク成長はすでに製造用ということで男性社員が入っており単結晶の研究も引き継いでくれた。この液層エピタキシャル結晶成長を急いでいたのと、コスト削減のためという理由で反応装置を最初から社内で作った。これは以前水平ブリッジマン用電気炉を自分で作っていたからできたことである。赤外LEDの液層エピも最初は反応のみをしていたが、自分でエピタキシャル膜、LEDの評価ができないとなかなか研究が進まないの、後工程用の設備も次々入れ、かなり投資して簡単なLEDは自分でできるようにした。結局、赤外LED用液層エピタキシャルウェーハーもスタートして3年ぐらいで最初の製品ができた。その後はいろんな構造の赤外LEDの構造を作った。それでも売り上げはそんなに伸びなかった。

そこで、1988年ごろ自分の研究のやり方に対して非常に嫌気がさしてきた。それは今までの研究テーマというのは全部営業が大手企業から言われて取ってきたテーマであり、それを社内の上司がするように決め、上司に言われてやってきたテーマなのである。上司に言われてその通りやるのが当然のように思っていたのである。しかし、ここまでいろんな開発テーマを全部3年くらいの周期で製品化まで持ってきて、売り上げが少ないといい、全く評価されないのが馬鹿らしくなってきたのである。そこでこの年、決心をし自分で開発テーマを決め、自分の好きなようにやろうと決めた。

そこで赤外LEDは新入社員にまかせ、単身青色LEDを開発すると決めた。これは今まで研究してきたテーマは大手企業から言われた、後追い下請け的な開発テーマで、製品はすでに世の中に出回っており、大手企業がやっても採

算に合わないの、小さな企業でやれば採算に合うだろうということで、もらってきたような開発テーマだったのである。このため製品ができて、世の中にあるので、値段を安くするか、品質が少し優れているとか、非常にきびしい状態で製品化するのであまり売れないのである。こういう経験があったので、まだどこも製品化に成功してない青色LEDを開発に選んだ。しかも開発の方法もよそとはなるべく違うようにやるように決めた。これも今まで大手がやってきたのと同じテーマ、やり方でやって製品化できて、あまり売れないことを幾度も体験してきたからである。

そういうことを考慮して青色LEDをスタートした。まず青色LEDの材料選択である。この当時青色LED材料は主に3つに絞られる。

SiC、ZnSe、GaNの3つである。このうちのどれかとなる。そこでこれを選択するのに独断と偏見で自分の好き放題にやるということでGaNを選択した。SiCは大手企業が製品化一步まで迫っており、やってもしょうがないと思った。ZnSeは当時青色LEDの本命材料とみなされ、ほとんどの大手企業、大学で研究されていた。

GaNは1大学、1企業が、細々と研究しており、まるで人気がなかった。これはGaNに格子整合する基板がなく、基板がなければまともな結晶ができないという考えに基づいていたからである。しかし今回はもうやけくそになっていたもので、そういう理屈よりも、どこもやってないということでGaNを選択した。GaNの文献をその当時調べると結晶性はぼろぼろで、こんな結晶性で青色LEDが将来できるとは半信半疑であった。

そういうことでGaNの結晶成長を1989年4月からMOCVD法で開発した。実際にGaNの結晶成長をするとほとんどGaN膜がサファイア基板上に成長しないことに気がついた。GaAsなどは同一条件でMOCVD法で成長すると容易に成長するのである。このため開始して2年間近くは反応して装置の改造をするのを繰り返し、非常に

苦労した。この間に営業がまたもや MOCVD法で GaAs を成長したらという話を大手企業から取ってきたが、今回は完全に無視した。このときは膜が成長しないので結果など皆無に等しくほとんど絶望的な時期であった。それでも2年後には新規なツーフロー MOCVD という装置を開発し、まともな膜が成長するようになった。その後はこの装置を使って、GaN、p 型 GaN、InGaN、AlGaIn などの世界最高品質の膜の成長に成功した。しかし1991年にアメリカの3M社が ZnSe 系でレーザー発振に成功し、世界中が ZnSe 系で沸き、青色 LED の本命はこれで ZnSe 系で決りだといほとんどの研究者が思った。雑誌などはほとんど毎日この3M社のレーザー発振の記事を載せ、学会などもほとんどこれを取り上げ ZnSe 系が花盛りであった。この時期かなりの研究者と研究予算がさらに ZnSe 系へ流れた。我々もこの時はかなりのショックを受け、しばし呆然としていた。しかし、この後学会でレーザーと同様に ZnSe 系で LED を作っても寿命が極端に短いという発表を聞き、元気をとりもどした。理由はその時すでに発光出力は低い、初歩的な青

色 LED を GaN 系で作っており寿命が長いことを確認していたからである。そこで学会から帰ってくると今度は発光出力をさらに上げるため、レーザーへの発展を期してダブルヘテロ構造に専念した。そして新規な構造の InGaIn/AlGaIn ダブルヘテロ構造の従来より100倍明るい1カンデラ高輝度青色 LED の発表製品化に1993年11月にこぎ着けた。この間 GaN 系では他社が輝度100ミリカンデラ級の M I S 型 LED を発表したりしたが、我々は最初から M I S 型には目もくれず p-n 接合型 LED 一本に絞っていたので M I S 型に関しては特に何も気にしなかった。

新聞発表後、1カンデラの光度を即信じる人は少なく、ほとんどの人は現物を見て初めて信じた。それほど良く光っていたのである。この時10ミリカンデラの SiC 青色 LED がかなり市場に出回っていたが、我々の LED 発表後、SiC の LED の研究、製造をやめたところが多い。以上自分の入社来の研究について述べたが要は研究で大事なことはなるべく他人の真似をしないことであると思う。

新技術事業団 創造科学技術研究発表会

- 日時 : 平成7年5月25日(木) 13:00~17:00
場所 : (財)大阪科学技術センター8階大ホール(大阪市西区鞆本町1-8-4)
入場料 : 無料
内容 : (ガラスに関係の深いプロジェクト)
平尾誘起構造プロジェクト (Hirao Active Glass Project)
総括責任者 : 平尾一之(京都大学人間工学部助教授)
研究期間 : 1994年10月~1999年9月
研究概要 : 電磁場などの外部場により、ガラスのような非晶質材料内に誘起される電子構造に着目し、その生成メカニズム、誘起構造と発現機能の相関の解明を目指します。このような研究は、新しい材料科学の概念の創出などにつながるものと思われま

(注)

このプロジェクトには、旭硝子、日本板硝子、セントラル硝子、山村硝子、NTT、ダイキンなどの企業の他に科学技術庁、東京大学などから研究員が参加しています。

21世紀のニューガラスの発展の礎として、本プロジェクトの成功に熱烈な声援を贈りたいと存じます。