

照明用 LED の現状と将来展望

Recent Development and Future Prospects of LEDs for General Lighting

天野 浩



Ⅲ族窒化物半導体 (AlGaInN) を用いた白色発光ダイオード (LED) 電球が多く見受けられるようになった。携帯電話のバックライトや巨大ディスプレイはもちろんのこと、現在液晶 TV 用のバックライトも急速に LED に置き換わりつつある。LED 電球の普及は、一般照明としても認知されたことを示している。寿命を考慮した性能一価格比が、蛍光灯を凌駕するに至ったことが急速な普及の大きな理由である。ここでは、白色 LED 開発の歴史、他光源との比較、及び更なる高性能化に向けての今後の開発の方向性、取り組むべき課題等を整理し、LED 照明の未来を展望する。

キーワード：Ⅲ族窒化物半導体、青色 LED、蛍光体、性能・価格

1. はじめに

アルミニウム (Al)、ガリウム (Ga)、インジウム (In) などのⅢ族金属元素と窒素 (N) の化合物であるⅢ族窒化物半導体 (AlGaInN) を用いた白色発光ダイオード (LED: Light Emitting Diode) 電球が多く見受けられるようになった。交通信号機、携帯電話、モバイル端末、PC のバックライトや巨大ディスプレイはもちろんのこと、現在では液晶 TV 用のバックライトも急速に LED に置き換わりつつある。LED 電球の普及は、一般照明として LED が認知されたことを示している。寿命を考慮した性能一価格比が、蛍光灯を凌駕するに至ったことが急速な普及の大きな理由である。

照明用の白色 LED について概略を紹介する。まず白色について、白色の基準・語源ともなっている太陽光のスペクトルは、可視光領域では波長ごとの光のパワーが大体同じである。半導体チップ単体で太陽光と同じスペクトルの光を発する LED は、現状では市販されていない。用途によって異なるが、人工的な白色光源では必ずしも太陽光のようにスペクトル的に完全な白色である必要はない。人の目の可視光に対する反応機構は、人の目

の網膜にある色素層にレチナールと呼ばれる分子があり、赤色、緑色、青色それぞれの光に対して反応する分子が決まっています。それぞれの光を感知する。それぞれの色の光が入射すると、分子の立体構造が変化して視神経を刺激し脳に伝達され、脳で信号処理されて色を認知する。白色光というのは様々な波長の光の重ね合わせであるから、数種類の分子が反応する。赤色光、青色光、緑色光に反応する分子が、それぞれある一定の割合で反応すれば白色と認識する。したがって、(a) 赤色 LED + 緑色 LED + 青色 LED を用いて、パワーがほぼ同じになるように調整すれば白色光源が実現できる。方法はそれだけではない。蛍光灯と同じ原理で、より高いエネルギーの光子によって可視蛍光体を励起すればよいので、(b) 紫外 LED または紫色 LED に複数の蛍光体を組み合わせる方法がある。また、人の目の中の分子の反応をうまく使うと、より簡易に白色光ができる。例えば、黄色の光では緑色光と赤色光に反応する分子が両方とも反応する。したがって、更に青色光が加わればよいので、(c) 青色 LED と黄色系の蛍光体を組み合わせる方法がある。図 1 にそれぞれの方法による白色 LED の概略を示す。

従来の光源の代表である白熱電球の発光原理は黒体放射であるため、照明用としては余分な赤外線も同時に放射され、効率は 20 lm/W 程度にとどまる。またフィラメントは 3,000 K 程度の高温で動作させるために、寿命が 1,000 時間程度と短い。蛍光灯は放電により生成され

天野 浩 正員 名古屋大学大学院工学研究科電子情報システム専攻
E-mail amano@nuee.nagoya-u.ac.jp
Hiroshi AMANO, Member (Graduate School of Engineering, Nagoya University, Nagoya-shi, 464-8603 Japan).
電子情報通信学会誌 Vol.93 No.11 pp.954-957 2010 年 11 月
©電子情報通信学会 2010

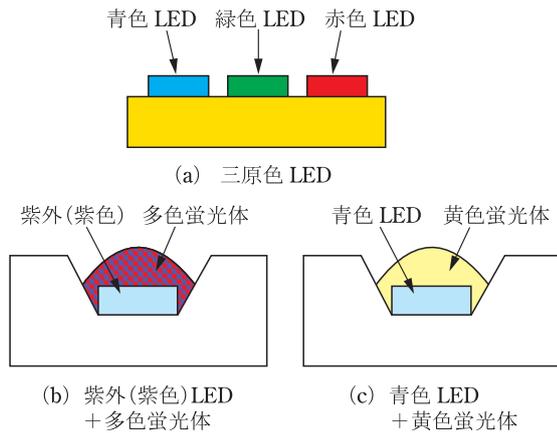


図1 主な白色LEDの構造

た高エネルギーの紫外線光子により、ガラス内部に塗布された蛍光体を励起する。効率率は白熱電球と比較して高く100 lm/W程度まで実現可能である。しかし、現状では放電時の紫外線の高効率生成のために水銀を用いざるを得ず、また、放電時に生成されたイオン衝撃による電極スパッタリングなどが原因で、寿命は1万時間には届かない。LEDでは、半導体内部のエネルギーバンドを乾電池程度の電圧で少しエネルギー的に動かし、電子と正孔を発光層において再結合させる。光は発光層のバンドギャップで決まるため、余分な他の波長の光を出さない。また、ジュール損や蛍光体利用時のストークス損等を除けば、原理的にエネルギーの無駄がないので、LED構造さえ理論的にできれば、究極効率の光源となる。また寿命も現在市販されているLED電球の保証は4万時間以上である。これらの特徴を生かして、初期単価は高いものの、寿命及び4万時間の使用まで考慮に入れた光束／(単価×寿命)が蛍光灯を凌駕し、一般照明用LED電球として普及するに至った。

先に述べた三つの方法のうち、LED電球として利用されているのは、(c)の青色LEDと蛍光体の組合せである。この白色LED実現の鍵は、可視短波長LED、特に青色LEDである。以後、白色LEDの基になった青色LED開発の歴史、及び更なる高性能化や普及に向けての今後の開発の方向性、取り組むべき課題等を整理

用語解説

平均演色評価数 光源の演色性の程度、すなわち色の再現性の良い・悪いを表す指数。中程度の明度及び彩度を持つ8色の試験色票に対する色ずれの平均値から求められる。ある光源の下で各色彩が基準光と全く同じ色彩に見える場合、その光源のRaは100となる。白熱電球は100である。

相関色温度 色温度とは、黒体放射の色に対応する光源の温度である。蛍光灯やLEDなどの発光原理は黒体放射ではないので、一般に黒体放射のスペクトルにならない。そのような光源において、光源色と最も近い色に見える黒体放射色で色温度を表したものが相関色温度である。

し、LED照明の未来を展望する。

2. 白色LEDチップの基幹技術開発の歴史

Ⅲ族窒化物半導体による青色LEDが最初に作られたのは1971年で、構造は残留ドナーによるn形の窒化ガリウム(GaN)と、Znを添加した半絶縁性のGaNのホモ接合による金属—半絶縁性半導体—半導体(MIS: Metal-Insulator-Semiconductor)型であった⁽¹⁾。効率は 10^{-5} 以下、動作電圧は7Vを超えた。1970年代～1980年代前半の明るい明期に作られ、現在も利用されている技術の一つに、当時の松下技研(株)から特許申請されたフリップチップ構造がある。Ⅲ族窒化物半導体による青色LEDは、サファイアまたはSiCを基板として作製され、特にサファイア基板が主流である。サファイアは絶縁体であり加工も難しいので、p形の電極とn形の電極は両方ともチップの上部に形成せざるを得ない。サファイアは可視光に対して透明であるので、n形とp形用が一体化したリードの上にチップの上下をひっくり返して置き、エポキシ樹脂でモールドし、pとnのリードを切り離し、基板であるサファイア側から光を取り出すのがフリップチップ構造である。当時の青色LEDは蛍光体を励起して白色化するには光度が不十分であったため、現在の蛍光体+青色LEDに関する報告は残っていない。三原色のLEDを組み合わせたフルカラー化の報告は1983年になされている⁽²⁾。前述のMIS型LEDの作製には、塩化水素と金属Gaを反応させて生成した塩化ガリウムとアンモニアを原料として、基板であるサファイアの上に単結晶を成長させるHVPE法が用いられた。しかしp形ができないことや薄膜多層構造作製が困難なことから開発は停滞した。

現在の白色LED作製の主流は、Ⅲ族原料ガスとして有機金属化合物を用い、窒素原料ガスとしてアンモニアを用いる有機金属化合物気相成長(MOVPE: Metal-Organic Vapor Phase Epitaxy)法である。1971年にManasevitがサファイア及びSiC基板上へのGaN及び窒化アルミニウム(AlN)の成長を行っている⁽³⁾。MOVPE法は単一箇所の加熱であり、ガス流量のみで膜厚制御できるため、薄膜多層構造作製に適している。しかし、1980年代前半までは、MOVPE法を用いても現在のようない白色LEDはできなかった。基板として用いるサファイアとの非常に大きな格子不整合に基づく結晶品質の劣悪さ、及び伝導性制御、特にp形結晶ができなかったことによる。

MOVPE法によるサファイア基板上へのGaNの結晶成長に関する標準技術は低温たい積緩衝層であり、1986年に報告された⁽⁴⁾。MOVPE法によるGaN薄膜の結晶成長は約1,000℃で行われる。その直前に温度を450℃程度と低温にしてAlNを20～30nm程度たい積させ、

その上に GaN 薄膜を 1,000°C 程度で成長することにより、結晶の品質や発光特性、電気的特性がけた違いに向上した。1991 年には AlN の代わりに GaN を低温たい積層として用いても同様の効果があることが示された。

HVPE 法が結晶成長の主流であった時代には実現しなかった p 形 GaN は、以下のような経緯で実現された。GaN:Zn のカソードルミネセンスを評価中、時間とともに青色発光強度が増加する現象が発見され、低加速電子線照射効果 (LEEBI 効果: Low Energy Electron Beam Irradiation) と名付けられた。LEEBI 処理された GaN:Zn は極めて高抵抗であった。アクセプタとして従来用いられていた Zn の代わりに、より活性化エネルギーが低いと考えられる Mg が選択され、MOVPE 法を用いてドーピングが行われた。しかし、成長したままではやはり高抵抗であった。HVPE 法の時代にも Mg のドーピングは行われ、1972 年に MIS 型 LED も試作されている⁽⁵⁾。1989 年、GaN:Mg に LEEBI 処理が施され、ホール効果測定により室温で 10^{16} cm^{-3} 台の正孔濃度を持つ p 形 GaN が得られたことが確認された⁽⁶⁾。またこの p 形 GaN と n 形 GaN のホモ接合により、初めて pn 接合青色・紫外 LED が実現された。1992 年には、成長したままでは GaN:Mg が高抵抗である理由について、水素の混入による Mg アクセプタのパッシベーションであることが提案され、電子線照射部分のみ脱水素化する LEEBI 処理のほかに、脱水素に関する大量処理が可能な熱処理によって p 形 GaN:Mg が実現できることが実証されている^{(7), (8)}。

n 形伝導性制御も重要である。低温たい積緩衝層による結晶成長技術の進歩や原料、特にアンモニアの高純度化により、故意に不純物をドーブしない場合、残留ドナー濃度は 10^{15} cm^{-3} 以下にまで減少した。このように高純度 GaN の成長が可能な状態で Si をドーブすることにより、 10^{19} cm^{-3} に至るまで Si 原料の供給量に比例して幅広く自由電子濃度、あるいは抵抗率を制御することが可能となった。

青色発光や緑色発光のための GaInN 混晶は、青色 LED の中で最も重要な技術の一つである。GaN の禁制帯幅は室温で約 3.43 eV であり、紫外域である。したがって、青色発光させるには、前述のようにバンドギャップ内に青色発光準位を形成するために Zn や Mg などの不純物をドーブする必要がある。その場合の発光効率は発光準位の再結合速度と濃度に依存し、高注入では発光が飽和する。1981 年に松下技研株式会社よりサンプル出荷された青色 LED は、この発光原理が用いられていた。赤色 LED などと同水準の高輝度 LED を実現するには、禁制帯幅を青色光付近の 2.6~2.8 eV 程度に制御すること、すなわち InN との混晶である GaInN 発光層が必須である。GaN の単結晶成長温度は 1,000°C 以上であり、一方、InN の成長温度は 600°C 以下と大き

な差がある。しかも、GaN の格子定数と InN の格子定数は約 11% 程度異なる。NTT の吉本・松岡らは、Ⅲ族原料に対するアンモニア供給量の比を、GaN の成長時と比べて 1 けた以上極端に高くすることが重要であることを実証し、GaInN から強いフォトルミネセンス発光を観測した⁽⁹⁾。

活性層の構造に関しては、GaInN 井戸層と GaN 障壁層の多重量子井戸の発光効率が、井戸層である GaInN 層の膜厚に強く依存し、6 nm 以下と超薄膜化することにより高効率発光が可能であることが明らかにされた⁽¹⁰⁾。

これらの技術の集大成として、1993 年、pn 接合ダブルヘテロ構造青色 LED が商品化された。以来、同材料を用いた LED は年々効率が向上している。現在商品化されている青色 LED と YAG:Ce 系黄色の蛍光体との組合せによる白色 LED が最初に特許登録されたのは 1997 年である⁽¹¹⁾。

そのほか、光取出し効率の向上に関しても重要な技術開発が多数なされているが、ここでは省略する。

3. 今後の課題

現在の青色 LED + 蛍光体による白色 LED は、発売当初演色評価数が低く、特に赤色成分が少ないことが問題視されたが、徐々に改善され、白色光源として日常生活に利用しても問題ない水準に達している。LED 電球としての総合効率も 100 lm/W を超え、蛍光灯を凌駕するまでに達した。しかしⅢ族窒化物半導体デバイスとしての潜在能力は、まだまだ開発の余地を残している。

今後は、一つのチップからどれだけの光束を取り出せるかが重要となる。電流密度が数 A/cm² 程度と少ないうちは、内部量子効率も 90% 以上になるが、電流密度の増加とともに効率が低下する、いわゆる効率ドループ現象は大きな課題の一つである。これは発熱の問題ではなく、活性層内で注入キャリア密度が増加するとオージェ過程のような非発光再結合や、活性層からのキャリア、特に電子の漏れが増加するためと考えられている。欠陥を生じない範囲内で活性層厚を厚くするなど、素子構造の工夫が必要である。

白色用光源の指標として用いられる値は、スペクトルとしては平均演色評価数^(用語) Ra、及び相関色温度^(用語) CCT である。平均演色評価数は 8 個の参照プレートへの反射率の平均のため、当然のことながら、同じ Ra でもスペクトルが同じとは限らない。また、一般照明用光源として見た場合、LED は白熱電球のような黒体放射と発光原理が異なるため、相関色温度を用いざるを得ない。色温度が同じでもスペクトルが同じとは限らないため、相関色温度が同じでも、異なる色目の白色が存在することになる。現状の指標だけでは、標準化するのには容

易ではないと思われる。現在はアメリカの NIST が LED 光源の標準化に関する策定を積極的に進めているが、白色 LED の母国ともいえる我が国でも、是非世界に率先して白色 LED 光源の標準化を進めてもらいたいと願っている。

更に、現在日本で販売されている LED 電球の外形は、白熱電球の外形をほぼ踏襲している。LED の構造や特性から考えると、理想的とは言い難い。白熱電球の代替から、徐々に LED の特性に合わせた照明器具へと変化することが必要である。

更に、効率の理想を追求するならば、現在の図 1 の (c) の方式では、青色の光子をエネルギーの小さい黄色の光子に変換するためにストークス損があり、250 lm/W 程度が理論極限である。(b) の方式では平均演色評価数を高めることはできるが、理論極限効率は (c) よりも更に低い。最も理論極限効率が高いのは (a) の方式であり、350 lm/W 程度までの効率の光源の実現が期待される。混色が難しいことに加えて、緑色の LED の外部量子効率が現状では 20% 程度にとどまっていることから、現状の (a) 方式の効率は 50 lm/W に満たない。今後、究極効率の白色光源を目指し、緑色から黄色領域の LED の効率の大幅な向上が囑望される。

文 献

- (1) J. Pankove, E. Miller, D. Richman, and J. Berkeyheiser, "Electroluminescence in GaN," *J. Lumin.*, vol. 4, no. 1, pp. 63-66, 1971.
- (2) M. Hashimoto, I. Akasaki, and N. Sawaki, "A fullcolor LED," *Japan Display '83*, no. PD1, 1983.
- (3) H.M. Manasevit, F.M. Erdman, and W.I. Simpson, "The use of metalorganics in the preparation of semiconductor materials," *J. Electrochem. Soc.*, vol. 118, no. 11, pp. 1864-1867, 1971.

- (4) H. Amano, N. Sawaki, I. Akasaki, and Y. Toyoda, "Metalorganic vapor phase epitaxial growth of a high quality GaN film using an AlN buffer layer," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 48, no. 5, pp. 353-355, 1986.
- (5) H.P. Maruska, W.C. Rhines, and D.A. Stevenson, "Preparation of Mg-doped GaN diodes exhibiting violet electroluminescence," *Mater. Res. Bull.*, vol. 7, no. 8, pp. 777-782, 1972.
- (6) H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu, and I. Akasaki, "P-type conduction in Mg-doped GaN treated with low-energy electron beam irradiation (LEEBI)," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 28, no. 12, pp. L2112-L2114, 1989.
- (7) J.A. Van Vechten, J.D. Zook, R.D. Horning, and B. Goldenberg, "Defeating compensation in wide gap semiconductors by growing in H that is removed by low temperature de-ionizing radiation," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 31, no. 11, pp. 3662-3663, 1992.
- (8) S. Nakamura, N. Iwasa, M. Senoh, and T. Mukai, "Hole compensation mechanism of p-type GaN films," *Jpn. J. Appl. Phys.*, vol. 31, no. 5A, pp. 1258-1266, 1992.
- (9) N. Yoshimoto, T. Matsuoka, T. Sasaki, and A. Katsumi, "Photoluminescence of InGaN films grown at high temperature by metalorganic vapor phase epitaxy," *Appl. Phys. Lett.*, vol. 59, no. 18, pp. 2251-2253, 1991.
- (10) I. Akasaki and H. Amano, "Fabrication and properties of GaN-based quantum well structure for short wavelength light emitter," *Ext. Abstr. Intl. Conf. Solid State Devices and Materials*, no. V-7, p. 683, 1995.
- (11) 日亜化学工業株式会社, "LED ランプ," 特許第 3246386 号, 出願番号平 9-69042, 1997.

(平成 22 年 7 月 14 日受付 平成 22 年 7 月 26 日最終受付)



あまの ひろし
天野 浩 (正員)

昭 58 名大・工・電子卒。昭 63 同大学院博士課程退学。同年名大・工・助手。平 4 名城大・理工・講師。以降助教、教授を経て平 22 名大・工・教授。一貫して III 族窒化物半導体の結晶成長及びデバイスの研究に従事。工博。平 10 英国 Rank 賞、平 13 丸文学術賞、平 14 武田賞、平 20 日本結晶成長学会論文賞、平 21 文部科学省科学技術政策研究所企画課ナイスステップな研究者 2009 など。著書「青色発光デバイスの魅力」など。