

2014年ノーベル物理学賞に赤崎勇，天野浩，中村修二の3氏

佐藤勝昭 (東京農工大学, 科学技術振興機構 katsuki.sato@nifty.com)



赤崎勇氏 (名城大学提供)



天野浩氏 (名古屋大学提供)



中村修二氏 (応用物理学会提供)

2014年10月7日スウェーデン王立科学アカデミーのノーベル賞選考委員会は、今年のノーベル物理学賞を赤崎勇終身名城大学教授、天野浩名古屋大学教授、中村修二カリフォルニア大学教授の3名に授賞すると発表した。授賞理由は、「高輝度で省電力の白色光源を可能にした青色発光ダイオードの発明」である。¹⁾ 日本における研究成果がノーベル物理学賞を受賞したことは誠に喜ばしく、赤崎、天野、中村の3氏に心からお祝いを申し上げます。

1895年11月27日にパリで出されたアルフレッド・ノーベルの遺言(Alfred Nobel's Will)によれば、ノーベル賞は「人類に偉大な利益をもたらした者」に授与されるべきで、物理学賞については「物理学分野における最も重要な発見または発明を行った者」に対して授与すると書かれている。²⁾

しかし、物理学賞のうち授賞理由に「発明」が明示されている例は、これまで極めて少なかった。「ガス貯蔵器に取り付ける自動調節機」(1912)、「サイクロトロン」(1939)、「位相差顕微鏡」(1953)、「泡箱」(1960)、「ホログラフィ」(1971)、「比例計数管」(1992)、「集積回路」(2000)、「CCDセンサー」(2009)のみで、今回の「青色発光ダイオード」(2014)は9件目なのである。2000年以降の3件とも社会に対するインパクトの大きさが評価されているが、

これは、1993年に出されたOECDの*Frascati Manual*第5版に記述されたOriented basic researchの考え方を反映していると考えられる。³⁾ ここに、Oriented basic researchとは「現在または将来の問題解決の背景になりうる幅広い知識基盤を創出すると期待される基礎研究」と定義されるが、1970年代という早い時点で、青色発光デバイスの社会的重要さを予見し、その実現に向けて、幾多の困難を乗り越えながら、地道に問題点をひとつひとつ解決してきた赤崎氏の研究は、この言葉がぴたり当てはまると言えよう。

青色発光ダイオードの実現がなぜ難しかったのであろうか。青色発光素子実現のための半導体は、2.7 eVより大きな直接遷移型バンドギャップ(E_g)をもつものでなければならない。ワイドバンドギャップ化合物半導体を使ってデバイスを作ることは一般に難しいとされる。結合のイオン性が強いこと、誘電率が低いため不純物準位の束縛エネルギーが大きくドーピングが難しいこと、格子整合する適切な基板がないことなどがその理由である。

ワイドギャップ半導体の候補としてGaN(バンドギャップ $E_g=3.4$ eV)とZnSe($E_g=2.7$ eV)とが検討されたが、1970年代のはじめ頃はGaNより結晶成長と伝導性制御の容易なZnSeが主として研究されていた。しかし、赤崎

氏(当時の所属:松下電器東京研究所)は、「結晶成長と伝導度制御の困難を克服すれば、結晶学的に安定で、より短波長のデバイスの実現が可能と考え、あえて未踏のGaNのpn接合に挑戦することとした」と当時を振り返って述べている。⁴⁾ 実際、赤崎氏のグループは、1978年に選択成長HVPE法で作製したGaN結晶を用いたMIS(金属/絶縁体/半導体)構造の青色発光素子の製作に成功したが、市販されることはなかった。

赤崎氏は、1981年に名古屋大学教授の席を得てから、MOVPE(有機金属気相エピタキシャル成長)法を用いて鏡面のGaN単結晶薄膜を得るための試行錯誤を繰り返した。当時GaN単結晶基板は存在せず、16%もの格子不整合のあるサファイア単結晶基板が用いられたため界面の転位密度が高く結晶性の悪い結晶しか得られなかった。1985年赤崎氏は、天野氏(当時大学院生)の協力を得て、低温成長AlNバッファ層を挿入することによって格子不整合による界面エネルギーを緩和できることを見出し、鏡面の高品質GaNの結晶成長に成功した。⁵⁾ このことが後の伝導度制御、pn接合LEDにもつながっている。

次に赤崎氏らはp型結晶への挑戦を開始する。1960年代、ワイドギャップ半導体に不純物をドーブしようとす

ると、キャリアを補償するような欠陥ができる「自己補償効果」についての理論的な予言⁶⁾があり、良質のpn接合の作製は難しいというのが定説であった。赤崎氏は「GaNでは自己補償効果を議論するにはまだ早い。まず残留ドナーが 10^{10} – 10^{15} cm⁻³以下の高品質結晶を実現してから論ずるべきである」と考え、低温成長バッファ層技術で得られた残留ドナー濃度の低い結晶においてZn添加を試みた。

1987年、天野氏がZn添加GaN単結晶のカソードルミネッセンス測定をしている際に、青紫色発光の増大を確認した。しかし、同結晶は室温でのp型伝導は確認できなかった。1989年になり、今度はMg添加GaNに電子線照射を行ったところ、青紫色のドナー・アクセプター発光が明瞭に確認でき、ホール測定によるp型伝導を確認し、世界で初めてp型GaN結晶の作製に成功、さらに世界初のpn接合青色LEDを実現した。⁷⁾

一方、1978年日亜化学工業株式会社に入社した中村氏は、青色発光デバイスの開発を志し、1988年結晶成長学を学ぶため渡米する。1989年に帰国した中村氏は、独自に2フロー型MOVPE装置を開発、低温成長GaNバッファ層を用いたGaNの高品質結晶成長法を確立した。⁸⁾ 中村氏は1991年電子照射によらず熱処理のみでもp型結晶の作製は可能であることを示した。⁹⁾ 1992年には、InGaN混晶の作製に成功、1993年日亜化学は高輝度青色LEDの販売を開始した。

高効率のLEDを目指して赤崎氏のグループは1991年AlGaIn/GaN量子井戸構造の作製に成功した。¹⁰⁾ 一方、中村氏のグループは1993年InGaIn/AlGaInダブルヘテロ構造¹¹⁾のLEDをはじめ作製、1994年に量子効率2.7%を得た。¹²⁾

当初のInGaInエピタキシャル薄膜

は転位密度が 10^8 – 10^{10} cm⁻²に達するような多数の結晶欠陥を含んでいるにも関わらずLEDはよく光った。GaAs系では 10^5 cm⁻²を超えると光らないのに窒化物ではなぜ光るのであろうか。これはIn/Ga組成比が局所的に揺らいでおりIn-richな領域がポテンシャルの谷となって励起子(電子正孔対)を閉じ込めるため、転位など非発光中心に捕捉されにくくなるということで説明された。¹³⁾

赤崎氏は、AlGaIn/GaN/GaInN量子井戸構造によるレーザー発振に成功、¹⁴⁾ ついで中村氏はInGaIn系多重量子井戸構造による青色半導体レーザー発振に成功した。¹⁵⁾

現在市販されている照明用の白色LEDは高効率の青色LEDからの青色と青色光で励起された蛍光体からの黄色発光との加色混合によってもたらされており10万時間という長寿命と低価格化が進んでいるが、将来的には赤、青、緑の3原色LEDによる白色照明が普及することが期待される。

以上述べたように青色LEDの発明の成功は、長年にわたって多くの研究者が既存の定説や理論に立ち向かって多くの困難を克服し果敢に挑戦し、苦境にあっても諦めない地道な努力の賜物といえる。特に、「結晶工学」の果たした役割が大きい。結晶工学は、物理学、化学、鉱物学、材料科学、電子工学までを広く含む学際分野である。赤崎氏は著書で、この学問領域は「サイエンス&アート」であると述べている。¹⁶⁾ 国際結晶年の今年、結晶工学という学際研究がもたらした発明がノーベル物理学賞を受賞したことは、長年この分野に関係したものとして喜ばしい。

ノーベル物理学賞選考委員会の発表した「2014年ノーベル物理学賞の科学的背景」には、3氏が著者となるJJAP (Japanese Journal of Applied Physics) に

掲載された論文が10編も引用されている。JJAPは、応用物理学会と日本物理学会が物理系学術誌刊行協会を作って育て、現在は応用物理学会が運営している国際誌である。筆者は、JJAPの運営にかかわったものの一人として、感慨ひとしおである。

赤崎・天野氏は、今後GaInNのパワー半導体としての特性改善に取り組むと話しており、中村氏は、より高効率のLEDの実現を目指すとして述べている。お三方の、今後ますますのご活躍を祈りつつ、筆を置く。

参考文献

- 1) http://www.nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/2014/
- 2) http://nobelprize.org/alfred_nobel/will/will-full.html
- 3) OECD: *Frascati Manual* (1993) Fifth ed. para. 227, p. 50.
- 4) 赤崎 勇, 天野 浩: *Crystal Letters* **30** (2005) 100.
- 5) H. Amano, N. Seki, I. Akasaki and Y. Toyoda: *Appl. Phys. Lett.* **48** (1986) 353.
- 6) F. Mandel: *Phys. Rev. A* **134** (1964) 1073.
- 7) H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu and I. Akasaki: *Jpn. J. Appl. Phys.* **28** (1989) L2112.
- 8) 中村修二: 日本国特許公告・平8-8217および日本国特許3257344 (1991).
- 9) 中村修二, 岩佐成人: 日本国特許2540791 (1991).
- 10) K. Itoh, T. Kawamoto, H. Amano, K. Hiramatsu and I. Akasaki: *Jpn. J. Appl. Phys.* **30** (1991) 1924.
- 11) S. Nakamura, M. Senoh and T. Mukai: *Jpn. J. Appl. Phys.* **32** (1993) L8.
- 12) S. Nakamura, T. Mukai and M. Senoh: *Appl. Phys. Lett.* **64** (1994) 1687.
- 13) S. Nakamura: *Science* Aug 14; **281** (5379) (1998) 955.
- 14) I. Akasaki, H. Amano, S. Sota, H. Sakai, T. Tanaka and M. Koike: *Jpn. J. Appl. Phys.* **34** (1995) L1517.
- 15) S. Nakamura, M. Senoh, S. Nagahama, N. Iwasa, T. Yamada, T. Matsushita, H. Kiyoku and Y. Sugimoto: *Jpn. J. Appl. Phys.* **35** (1996) L74.
- 16) 赤崎 勇: 『青い光に魅せられて: 青色LED開発物語』(日本経済新聞出版社, 2013).

(2014年10月28日原稿受付)