

「発光デバイスの再結合理論モデルと  
そのシミュレーションの研究」

指導教員 ルジェロ・ミケレット

副指導教員 大月俊也

副指導教員 野嶋俊司

横浜市立大学大学院

生命ナノシステムコース

ナノシステム専攻博士前期課程2年

小松潤一郎

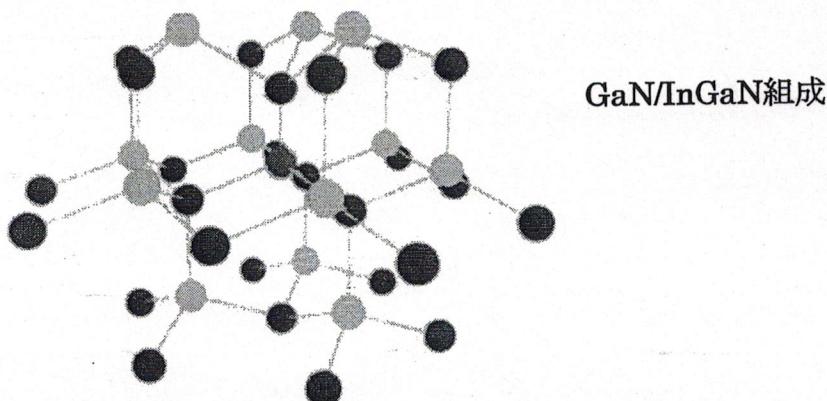
105218

## 目次

- Summary
- <研究概要>
- 1, 研究背景と目的
- 2, 扱う現象について
- 3, モデリングについて
- 4, プリンキングメカニズムについて  
(二値化の発光、複数レベルの発光)
- 5, 考察、展望
- 6, 参考文献

## Summary

Chaos in solid state optical emission : Material commonly used for modern LEDs as InGaN show mysterious properties. For example, we noticed in previous research that in some nanometer sized confined areas, the optical emission is "alive". It shows chaotic behavior, the light intensity goes up and down, like a broken fluorescent tube. Recent advances in studies for InGaN/GaN have led to high-brightness blue LED. InGaN/GaN are currently used for many applications, for example, full color display, white (RGB) lighting or illumination and the creation of shorter wavelength devices for optical data storage. Those nanoscopic light sources, enabling virtually infinite measurement times, were semiconductor Nano crystals, commonly referred to as colloidal quantum dots. On the Nano scale, almost all light sources BLINK. Such blinking behaviors are observed on a time scale much larger than which are predicted through quantum mechanics and it has statistics governed by nonergodicity. Those nanoscopic light sources enables virtually infinite measurement times. We observed a previously unknown optical instability blinking phenomena in the photoluminescence of InGaN single quantum well. We made a comparison with a simulation using Python and studied time/Events (intensity signal of these phenomena in local area ) for analysis of the blinking behavior. Using numerical calculations to validate possible models will be a new approach to carrier dynamic sensing, and will fits with the Nano science too.



## 〈研究概要〉

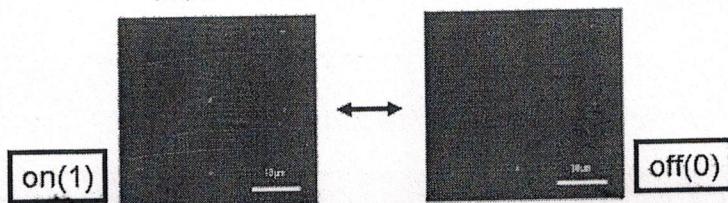
近年の窒化物半導体を用いたLEDの研究による開発は、窒化物化合物半導体InGaNを用いた高効率青色LEDなど半導体発光デバイス研究に大きな成果をもたらしている。なかでもポピュラーなInGaN/GaNは現在、フルカラーディスプレイや白色(RGB)照明またはイルミネーション、さらには表示素子や照明、光記録デバイスなどに使用され、多くのアプリケーションとして活躍している。

InGaN系青色LEDと青色LEDベースの黄色発光蛍光体(YAG : Ce)から構成される20 lm/W以上の発光効率を有する白色LEDが既に実用化され、商品化されている。最近では、UV-LEDも商品化され、演色性に富み、色温度の設計幅の大きい、近紫外(NUV : Near Ultra-Violet)-LEDと赤色/緑色/青色の3波長型の蛍光体とを組合せて実現する白色LEDが、照明用白色LEDとして応用できるのではないかと検討され、期待されている。

これら高効率LEDの開発で、従来表示用で使われていたLEDが固体照明用光源として期待され始めた。LEDの光放射は、半導体のpn接合に順方向電流を流すことにより注入されたキャリア(電子-正孔)が、発光再結合する現象であり、熱や放電の光とは本質的に異なる。従って、LEDを使って作製されたLED照明用光源は、通常の白熱電球と違って手で触っても熱くなく、安全性が高い。また、寿命も長く、水銀などの有害物質を含まないので地球に優しい照明用光源として期待されている。

ところで、ナノスケールでは多くの材料に点滅現象が見られる。このような振る舞いは量子力学の観点から予測したものよりずっと長い時間スケールで起きている。これは先述の構造欠陥との関係性が指摘されている。先行の研究では不安定点滅現象の観測に近接場走査型光学顕微鏡を用い発光表面の局所領域における時間的な光学強度の測定をすることで、不安定点滅現象の定量化を試みた。本研究ではPythonを用いたシミュレーションとの比較を行うことで、点滅のon/off頻度を解析し点滅現象を解析した。実験的アプローチに加えて、数的モデルのシミュレーションによる理論解析をすることでキャリアダイナミクスの物理的解釈を図る。

**キーワード：** 窒化物半導体、発光ダイオード、白色、蛍光体、  
発光マッピング、発光機構解明、輻射再結合



# 1、研究背景と目的

## 〈背景〉

窒化物半導体デバイスは、サファイア基板、あるいはSiC上へのヘテロエピタキシャル成長で実現されているが、GaNとこれらの基板との間の格子定数、熱膨張係数などの差異により、非常に高密度の貫通転位が半導体層中に残存している。サファイア基板上に作製された初期の青色LEDの転位密度は、 $10^9 \sim 10^{10} \text{ cm}^{-2}$  に及ぶと報告されている。

ところが、高密度の転位が存在しているにも関わらず、青-緑色高効率LEDが実現されている。

これは、

「発光層を構成するInGaNの、In組成の不均一性によって生じるポテンシャル揺らぎにキャリアが局在する。」

などのモデルで説明されている。

即ち、局在化したキャリアの拡散長が短いために、非発光再結合中心として働く転位などの欠陥との相互作用が小さいからである。しかし、発光波長の短いNUV (Violet) -LEDでは、発光層のIn濃度が低くIn組成揺らぎが小さくなり、キャリアの拡散長が長くなるために転位などの欠陥が非発光中心として強く働き始める。従って、従来の高密度の転位の存在下では高効率NUV (Violet) -LED は実現されておらず、素子の信頼性向上のためにも転位密度の低減が望まれている。

III族窒化物半導体：AlN, GaN, InN

…III族混晶組成比によってバンドギャップが紫外域 (AlN) から可視域 (GaN : 3.4 eV) を通って赤外域 (InN : 0.7eV) までをカバー  
→InGaNを発光層に用いたLED, LDが実用化

実用化されたデバイス

- ・ LED…紫外から緑  
→LEDフルカラーディスプレイ
- ・ LD…紫外から青  
→Blu-ray Disc

## ＜目的＞

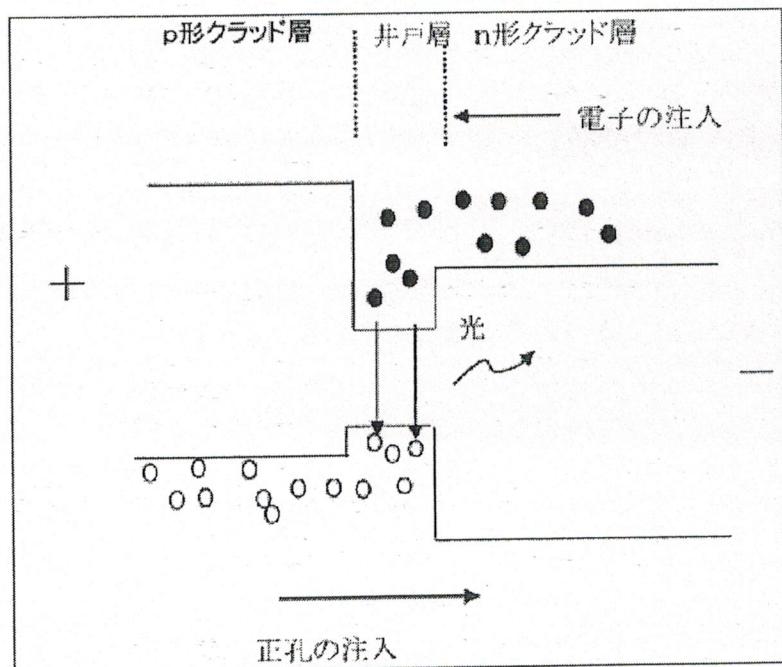
しかしその材料である窒化物系化合物半導体(GaN系半導体)の物性について、完全な物理的解釈がなされていない。一般にInGaN系発光ダイオードは多量の構造欠陥を含んでいるのにも関わらず、超高輝度LEDとして高性能電子機器の多くに応用されている。InGaN系発光ダイオードの不安定点滅現象は構造欠陥との関係性が指摘されており、デバイスの発光現象に少なからず影響が現れているのである。

実用化の進むInGaN系発光ダイオードのさらなる改良（発光効率など）には発光プロセスや材料物性の研究が必要である。InGaN系発光ダイオード発光表面の局所領域における時間的な光学強度の測定をすべく、不安定点滅現象観測には実空間・実時間分解光学測定で可能な近接場走査型光学顕微鏡を用いた。この観測による不安定点滅現象の定量化されたデータと理論計算とを対応させることを試みる。

## ＜発光効率の改善の可能性＞

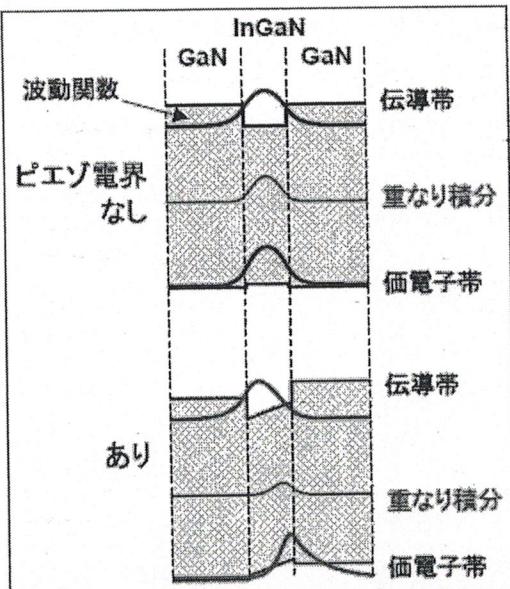
- ・従来品では、70%程度といわれている内部量子効率（=注入キャリアのうち光生成に寄与するキャリアの割合）  
→原理的には100%に近づけることが可能
- ・面内偏光特性を持つ。→省エネが期待される。

デバイス内を移動するキャリアのモデル



|                      |
|----------------------|
| GaN ( undoped ) 5nm  |
| InGaN 3nm            |
| GaN ( undoped ) 4 μm |
| Sapphire             |

InGaN層に歪みが入る。



### 発光効率に関して

従来の発光素子構造：c軸配向した歪み量子井戸構造

格子不整合 (GaN/AlN 2%,、GaN/InN 11%)

⇒歪

⇒ピエゾ電界

⇒再結合確率の低下

⇒電界：増加

⇒電子・正孔の重なり減少 それに比例する再結合確率も減少

⇒光りにくい

## 2、扱う現象について

〈あらまし〉

プラズモン励起子による局在化が半導体を利用した発光デバイスの物性と関与していると考えられる。

本研究で用いられる、金属やプラズマのように自由電荷を持つ発光デバイス物質の表面に局在した電荷の集団振動である表面プラズモン。

この集団振動と外部から与えた電磁波と結合した系は、表面プラズモンポラリトンと呼ばれる。

この表面波が存在する条件は、磁場が横波である場合だけである。

1つの境界面に電磁波を入射した場合、振幅反射率の特異点が表面プラズモンの共鳴条件に一致すると、この条件から表面プラズモンの正確な分散関係を得ることができる。

ところで、この分散関係から物質の表面に直接光を当てても表面プラズモンを励起することはできないことがわかる。

そこで、代わりに光が全反射する時にできる、境界面に沿って伝搬する波を用いて表面プラズモンを励起する。この伝搬は、波数の垂直成分が虚数になっている為に1波長程度まで低媒質側の内部に電磁波が浸透することによるもので、この波はエバネッセント波と呼ばれる。エバネッセント波を用いれば、その位相速度を表面プラズモンの位相速度に一致させることができ、表面プラズモンを共鳴的に励起することになる。

実際の実験系に見られるような条件、すなわち複数の境界面(ガラス、金属、大気など)を想定すると、一つの境界に於けるプラズモンの分散関係とは異なる性質を示す。

本研究の理論に取り入れるべく複数の境界面がある場合について上記のような多波干渉理論を用いて得られた表面プラズモンの正確な分散関係、さらには磁場の境界条件を導き、利用することは実用的な知見につながる。

この分散関係を用いて、表面プラズモン共鳴を応用した高時間分解かつ高空間分解のイメージング測定法について議論された先行の実験研究と比較し理論的アプローチを行う。

## 〈表面波について〉

電磁場に対する物質の応答（物質の巨視的な性質）は、誘電率： $\epsilon$ と透磁率： $\mu$ で表される。

誘電率は分極による応答を、透磁率は磁化による応答をそれぞれ表すものである。通常の物質においては、分極は光の周波数に応答するが、磁化は光の周波数に追従できない。したがって、光の周波数領域では透磁率： $\mu$ は真空中の透磁率： $\mu_0$ に等しい。

この場合、マックスウェル方程式（ファラデーの法則およびアンペールの法則）は

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\mu_0 \frac{\partial \mathbf{H}}{\partial t} \quad \cdots \text{①}$$

$$\nabla \times \mathbf{H} = \epsilon \frac{\partial \mathbf{E}}{\partial t} \quad \cdots \text{②}$$

と書ける。

但し、 $\mathbf{E}$ は電場強度を、 $\mathbf{H}$ は磁場強度をそれぞれ表す。

ここでは、媒質1と媒質2に挟まれた平滑な境界面を考える。

（媒質1が物質で、媒質2が真空の場合、この境界面が物質表面となる）

境界面に対して法線方向をz方向にとり、境界面の位置をz=0とする（図1）。

また、この境界面に対する法線ベクトルをNとする。

この境界面での電場および磁場に対する境界条件は

$$\mathbf{N} \times (\mathbf{E}_1 - \mathbf{E}_2) = 0 \quad \cdots \text{③}$$

$$\mathbf{N} \times (\mathbf{H}_1 - \mathbf{H}_2) = 0 \quad \cdots \text{④}$$

で与えられる。

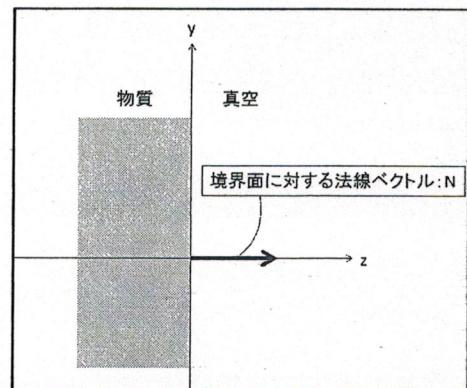


図1：2つの媒質に挟まれた  
境界面の座標系

これらの式は電場および磁場の境界面での接線成分が連続であることを意味する。一般に、境界面に対する電磁波の解は、磁場が横波であるTMモード(transverse magnetic mode)と電場が横波であるTEモード(transverse electric mode)に分離することができる。

TMモードの場合、電場および磁場のゼロでないベクトル成分は

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} \mathbf{Ex} \\ \mathbf{0} \\ \mathbf{Ez} \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{H} = \begin{pmatrix} \mathbf{0} \\ \mathbf{Hy} \\ \mathbf{0} \end{pmatrix}$$

である。

式①および②から、磁場のy成分に対して

$$\frac{\partial^2 H_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 H_y}{\partial z^2} = \epsilon \mu_0 \frac{\partial^2 H_y}{\partial t^2} \quad \cdots \text{⑤}$$

を得る。

これは横波の波动方程式を表している。

ここでは、x方向に波数kで伝搬する單一周波数の表面波を考える。

この場合、磁場のy成分を

$$H_y = h(z) \exp i(kx - \omega t) \quad \cdots \text{⑥}$$

とおいて、式⑤に代入すると

$$\frac{\partial^2 h(z)}{\partial z^2} = (k^2 - \omega^2 \epsilon \mu_0) h(z) \quad \cdots \text{⑦}$$

を得る。

但し、 $\omega$ は角周波数である。

誘電率： $\epsilon$ が実数（吸収のない媒質）の場合、上式の右辺の括弧内の値は実数となる。この場合、解は指数関数で与えられるので

媒質1 ( $z < 0$ )において

$$h^{(1)}(z) = h_0^{(1)} e^{\beta^{(1)} z} \quad \cdots \text{⑧}$$

媒質2 ( $z > 0$ )において

$$h^{(2)}(z) = h_0^{(2)} e^{-\beta^{(2)} z} \quad \cdots \text{⑨}$$

とする。

ここで、 $\beta^{(j)} = (k^2 - \omega^2 \epsilon^{(j)} \mu_0)^{\frac{1}{2}}$ とした。

但し、jは媒質1または2を表すものとする。

この解が表面に局在する波であるためには、 $\beta^{(j)}$ はいずれも正の実数でなければならぬ。この条件 ( $\beta^{(j)} > 0$ ) を書き直すと、

$$\frac{\omega}{k} < \frac{c}{n^{(j)}}$$

となる。

但し、cは光速で、 $n^{(j)}$ は媒質jの屈折率である。

のことから、表面波の位相速度は媒質中での光の位相速度と一致しないことがわかる。

境界条件③および④から、z=0では

$$H_y^{(1)} = H_y^{(2)}$$

かつ

$$E_x^{(1)} = E_x^{(2)}$$

である。

$$H_y^{(1)} = H_y^{(2)}$$

から

$$h_0^{(1)} = h_0^{(2)}$$

を得る。

また

$$E_x^{(1)} = E_x^{(2)}$$

と式②から

$$-\frac{\beta^{(1)}}{\epsilon^{(1)}} = \frac{\beta^{(2)}}{\epsilon^{(2)}} \quad \cdots \textcircled{10}$$

を得る。

この式が満たされるためには $\beta^{(1)}$ 、 $\beta^{(2)}$ がいずれも正の実数であることから、

と $\epsilon^{(1)}$ 、 $\epsilon^{(2)}$ の符号は逆でなければならないことがわかる。

一般に、金属やプラズマのように自由電荷を持つ物質では、プラズマ周波数以下の周波数領域で誘電率が負の値を持つ。

したがって、金属やプラズマと真空の境界面においては、式⑩を満たす表面波が存在し得る。

次に、TEモードの場合を考える。

電場および磁場のゼロでないベクトル成分は

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} 0 \\ E_y \\ 0 \end{pmatrix}$$

$$\mathbf{H} = \begin{pmatrix} H_x \\ 0 \\ H_z \end{pmatrix}$$

である。

式①および②から、電場のy成分に対して

$$\frac{\partial^2 E_y}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 E_y}{\partial z^2} = \epsilon \mu_0 \frac{\partial^2 E_y}{\partial t^2} \quad \cdots \text{⑩}$$

を得る。

この式は、式⑤と全く同じものであり、TMモードの場合と同様の解（式⑧および⑨）を得る。

境界条件③および④から、 $z=0$ では

$$H_x^{(1)} = H_x^{(2)}$$

かつ

$$E_y^{(1)} = E_y^{(2)}$$

である。

これらの関係と式①から

$$-\beta^{(1)} = \beta^{(2)}$$

なる条件を得る。

しかしながら、この条件は $\beta^{(1)}$ 、 $\beta^{(2)}$  がいずれも正の実数であることと矛盾する。

従って、TEモードの場合は、境界条件を満足する表面波が存在できないとい

うことが示唆される。

### 〈境界面での反射と透過〉

表面波が存在できるのは、TM モードの場合だけであることがわかったので、ここからはTM モードに限って議論を進める。

まず、電磁波がある角度で1つの境界面へ入射する場合を考える（図2）。

ここでは、境界面をxy面にとっているので、電磁波の入射面をxz面とする。入射波：i、反射波：r、透過波：t の各成分に対する境界条件は、式③及び式④で与えられ、

$$E_x^i + E_x^r = E_x^t \quad \cdots(12)$$

$$H_x^i + H_x^r = H_x^t \quad \cdots(13)$$

となる。

アンペールの法則（式②）のx成分と式⑫から、

$$\frac{1}{\varepsilon_1} \frac{\partial (H_y^i + H_y^r)}{\partial z} = \frac{1}{\varepsilon_2} \frac{\partial H_y^t}{\partial z} \quad \cdots(14)$$

を得る。

但し、 $\varepsilon_1$ および $\varepsilon_2$ はそれぞれ媒質1および2の複素誘電率である。

（ここからは、一般性のある理論を展開するために誘電率はすべて複素量とする。）

ここでは、入射面をxz面にしているので、波数ベクトルkのy成分はゼロである。また、入射波、反射波および透過波の位相が境界面（z=0）で連続であることから、これら3つの波の波数ベクトルのx成分は同じであり、ここでは $k_x$ と表す。

この波数ベクトルの接線成分が等しいことは、スネルの法則を一般化したものであり、図2に示した反射波および透過波の角度について、

$$\theta^i = \theta^r$$

および、

$$\sqrt{\varepsilon_1} \sin \theta^i = \sqrt{\varepsilon_2} \sin \theta^t$$

という関係を与える。

この場合、3つの波の磁場の成分は以下のように書ける。

$$H_y^i \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = b^i \exp i(k_x x + k_{z1} z - \omega t) \quad \cdots(15)$$

$$H_y^r \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = b^r \exp i(k_x x + k_{z1} z - \omega t) \quad \cdots(16)$$

$$H_y^t \begin{pmatrix} x \\ y \\ z \end{pmatrix} = b^t \exp i(k_x x + k_{z2} z - \omega t) \quad \cdots(17)$$

ここで、 $k_{z1}$ 、 $k_{z2}$ は媒質1および媒質2における波数ベクトルのz成分である。また、 $b^i$ 、 $b^r$ 、 $b^t$ は入射波、反射波、透過波の境界面における振幅強度である。

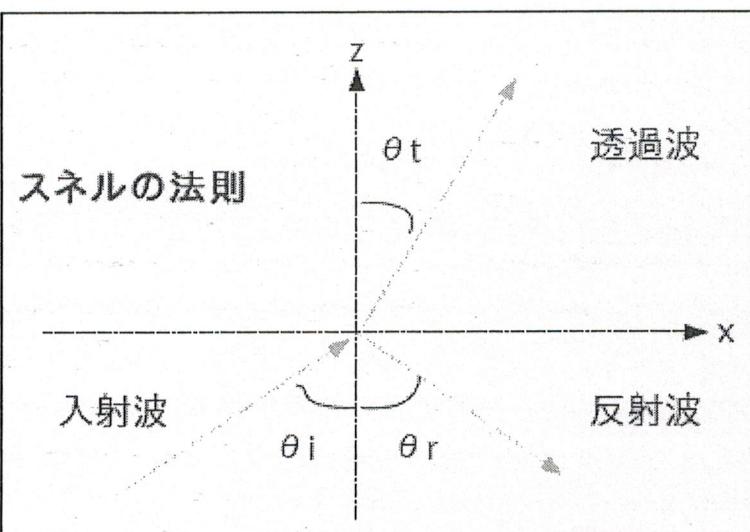


図2：1つの境界面における入射波、反射波、透過波

これらの式を式⑬および⑭に代入すると、

$$b^i + b^r = b^t \quad \cdots(18)$$

$$\alpha_1(b^i - b^r) = \alpha_2 b^t \quad \cdots(19)$$

を得る。(但し、ここで、 $\alpha_j = \frac{k_{zj}}{\varepsilon_j}$ と置いた。)

上の2つの式から、磁場の振幅強度の反射率および透過率は

$$\frac{b^r}{b^i} = \frac{\alpha_1 - \alpha_2}{\alpha_1 + \alpha_2} \quad \cdots (20)$$

$$\frac{b^t}{b^i} = \frac{2\alpha_1}{\alpha_1 + \alpha_2} \quad \cdots (21)$$

で与えられる。

但し、式⑤から、それぞれの媒質において波数ベクトルと誘電率は

$$k_x^2 + k_{zj}^2 = \omega^2 \varepsilon_j \mu_0 \quad \cdots (22)$$

の関係にある。

〈表面プラズモンの分散関係〉

振幅強度の反射率と透過率を表す式⑩および式⑪において、分母がゼロとなる場合は特異点である。

すなわち、

$$\alpha_1 + \alpha_2 = 0 \quad \cdots \text{---(23)}$$

の条件を満たす場合には、解が発散することになる。

この特異点の条件は、表面波が存在する条件である式⑩に一致し、周波数： $\omega$  の系が固有振動する場合に相当する。

つまり、この条件を満たす場合は、外部から与えた揺らぎが非常に弱くても系が共振することになる。

式⑬を書き直すと、

$$k_x^2 = \omega^2 \mu_0 \frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2} \quad \cdots \text{---(24)}$$

となる。

金属のように自由電荷がある場合は、表面電荷の集団振動（表面プラズモン）が存在できるが（図3）、この集団振動が電磁波と結合して周波数： $\omega$ で固有振動する系（表面プラズモンポラリトン）をつくることが可能となる。

式⑭は、この表面プラズモンポラリトンの分散関係を表している。

媒質1と媒質2がプラズマと誘電体（真空を含む）の場合は、プラズマ表面波の分散関係に一致する。また、この式は自由電荷によるプラズモンの場合に限らず、表面ポラリトンの一般的な分散関係でもある。

表面プラズモンの分散関係を表す式⑭から、伝搬方向の波数を求めるとき、

$$R(k_x) = \frac{\omega}{c} R \left( \sqrt{\frac{\hat{\varepsilon}_1 \hat{\varepsilon}_2}{\hat{\varepsilon}_1 + \hat{\varepsilon}_2}} \right) \quad \cdots \text{---(25)}$$

となる。

但し、 $\hat{\varepsilon}_j$ は $\varepsilon_0$ で規格化した誘電率で、 $R()$ は実数部を取り出す関数を表す。

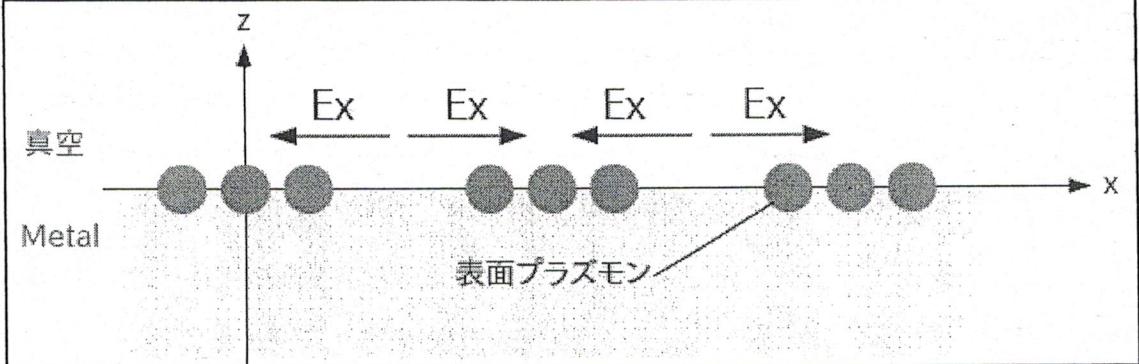


図3：表面電荷の集団振動

この式②⑤から、表面プラズモンの分散関係と真空中を伝搬する光の分散関係

$$k_x = \frac{\omega}{c}$$

とは一致しないことがわかる（図4）。

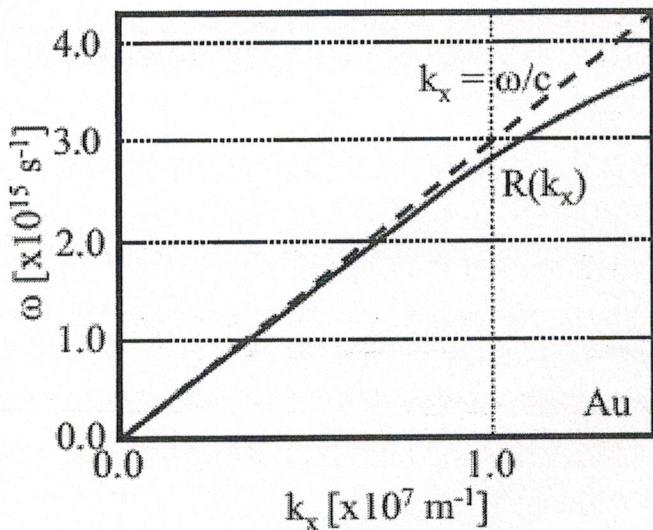


図4：表面プラズモンの  
分散関係 [1]  
(金と真空の境界面)

すなわち、物質の表面に直接光を当てても表面プラズモンを励起することはできない。

そこで、光が全反射する時にできるエバネッセント波を用いて表面プラズモンを励起する場合を考えてみる。

光が入射する側の媒質の屈折率をn、入射角をθとすれば、エバネッセント波の波数ベクトルのx成分（エバネッセント波の分散関係）は

$$k_x = \frac{\omega}{c} \sin \theta \quad \cdots (26)$$

となる。

したがって、入射角を適当に選ぶことによって、エバネッセント波の分散関係と表面プラズモンの分散関係とを一致させることができる。

この場合の入射角は

$$\sin \theta = \frac{1}{n} R \left( \sqrt{\frac{\hat{\epsilon}_1 \hat{\epsilon}_2}{\hat{\epsilon}_1 + \hat{\epsilon}_2}} \right) \quad \cdots (27)$$

で与えられる。

但し、ここで $\epsilon_1$ と $\epsilon_2$ は、それぞれ金属と真空の誘電率を表す。

この式(27)が金属と真空の境界面で表面プラズモンを励起するための共鳴条件となる。

最初に、エバネッセント波によって表面プラズモンを励起したのはオットである。プリズムを用いた全反射によってエバネッセント波を発生させ、このプリズムの反射面のすぐ近くに金属面を配置する方式（この方式をオット配置と呼ぶ。図5（1））で実験を行っている。その後は、金属の薄膜をプリズムの反射面に直接蒸着したもの用いて、より簡便な方式（この方式をクレッチマン配置と呼ぶ。図5（2））

で実験が行われるようになった。[14][15]

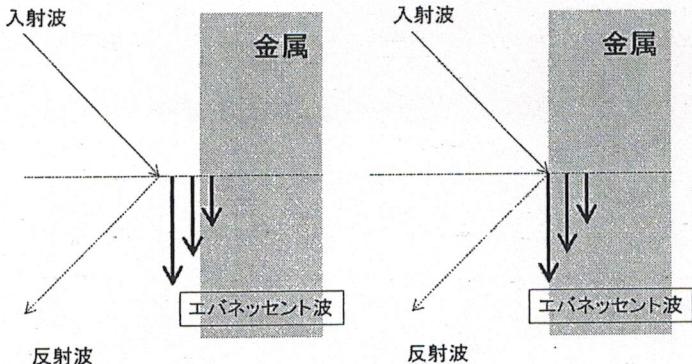


図5：オット配置(1:左)  
クレッチマン配置(2:右)

クレッチマン配置では、光の入射側からプリズム（ガラス）、金属、大気の順に3つの媒質があり、複数の境界面が存在することになる。

したがって、1つの境界面だけを考えた場合の表面プラズモンの分散関係<sup>②</sup>は正確でない。

〈多波干渉による反射と透過〉

クレッチマン配置の場合からもわかるように、実際の実験系においては複数の境界面が存在することになる。

ここでは、より一般的な場合として、N層の境界面（したがってN+1層の媒質）を考える。

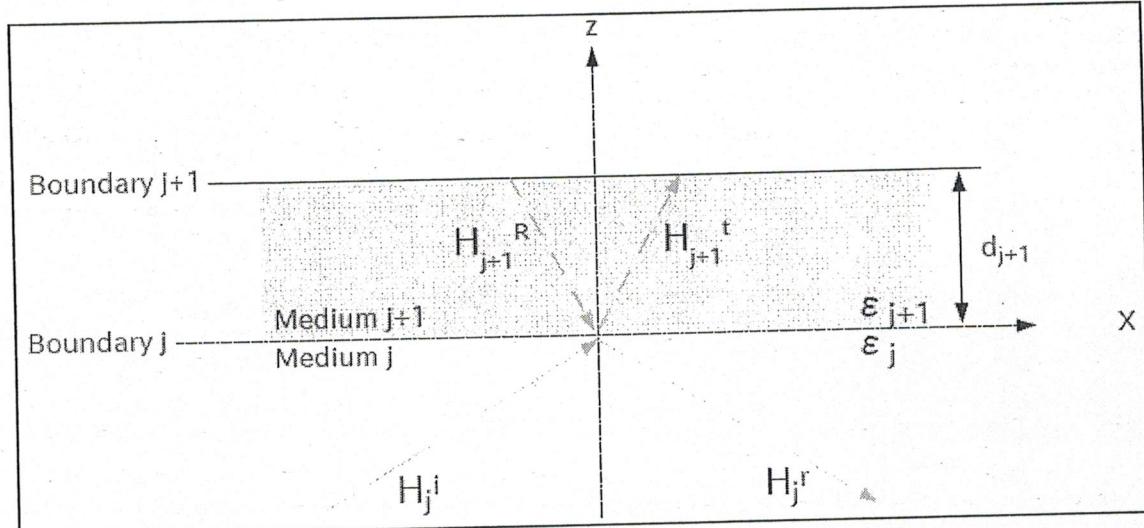


図6：第 $j$ 番目の境界面における4つの波

第 $j$ 番目の境界面については、

$j$ 番目の媒質からの入射波、 $j$ 番目の媒質への反射波、 $j+1$ 番目の媒質への透過波、 $j+1$ 番目の媒質から帰ってくる反射波の4つが存在する(図6)。それぞれの波の磁場のy成分を

$$H_j^i = b_j^i \exp i(k_{xj}x + k_{zj}z - \omega t) \quad \cdots (28)$$

$$H_j^r = b_j^r \exp i(k_{xj}x - k_{zj}z - \omega t) \quad \cdots (29)$$

$$H_{j+1}^t = b_{j+1}^t \exp i(k_{xj+1}x + k_{zj+1}z - \omega t) \quad \cdots (30)$$

$$H_{j+1}^R = b_{j+1}^R \exp i(k_{xj+1}x - k_{zj+1}z - \omega t) \quad \cdots (31)$$

とする。

ここでは、第 $j$ 番目の境界面の位置を $z=0$ とし、4つの波の境界面での振幅強度を $b_j^i$ 、 $b_j^r$ 、 $b_{j+1}^t$ 、 $b_{j+1}^R$ とした。

また、 $k_{xj}$ と $k_{zj}$ は j 番目の媒質における波数ベクトルの x 成分と z 成分である。磁場に対する境界条件の式④より境界の両面において磁場の y 成分は等しくなる。

したがって、

$$(b_j^i + b_j^r)e^{ik_{xj}x} = (b_{j+1}^t + b_{j+1}^R)e^{ik_{xj+1}x} \quad \cdots(32)$$

である。

境界の両面において位相は連続であることから、上式の位相項は一致しなければならない。

のことから、一般化されたスネルの法則

$$k_{xj} = k_{xj+1} \quad \cdots(33)$$

が得られ、磁場についての境界条件は

$$b_j^i + b_j^r = b_{j+1}^t + b_{j+1}^R \quad \cdots(34)$$

となる。

複数の境界面があつて多波干渉する場合は、磁場の振幅強度の反射率、および、透過率の特異点が、共鳴条件（表面プラズモン共鳴の分散関係）となる。その周波数： $\omega$ に対して  $k_x$  を求めれば、表面プラズモン共鳴の正確な分散関係が得られる。

単層膜のように 2 つの境界面を持つ場合は、

$$1 + r_1 r_2 e^{2i\delta_2} = 0$$

が共鳴条件となる。

複数の境界面に於いて上式は

$$(\alpha_1 + \alpha_2)(\alpha_3 + \alpha_4) + (\alpha_1 - \alpha_2)(\alpha_3 - \alpha_4)e^{2i\delta_2} = 0$$

と記述され、さらに、媒質 2 の厚みをゼロにすれば ( $\delta_2 = 0$ ) 、

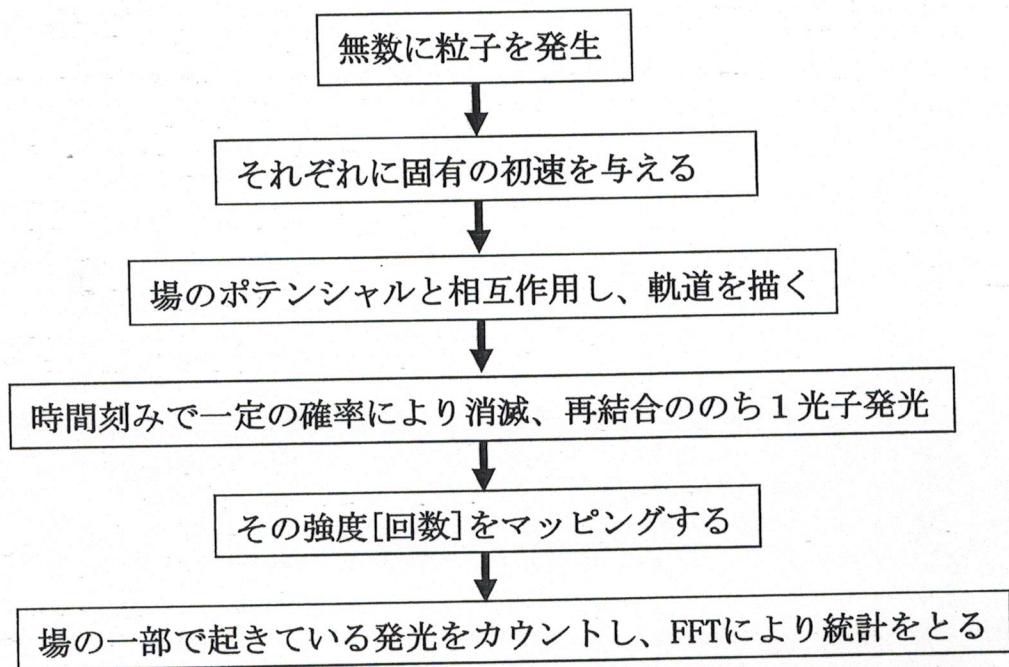
$$\alpha_1 + \alpha_3 = 0$$

となり、1 つの境界面の共鳴条件に一致する。

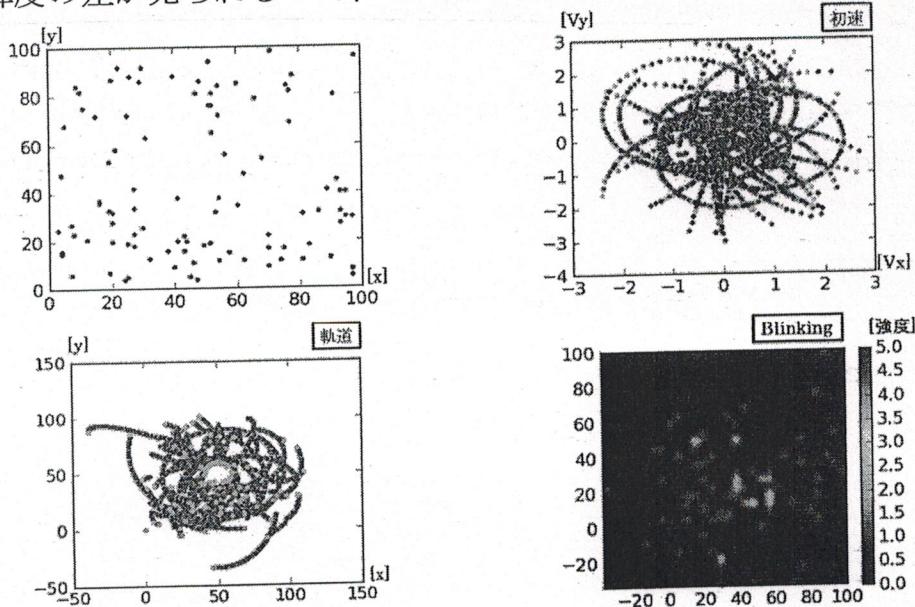
プリズムに金属膜をつけただけの単純なクレッチマン配置では、この単層膜の共鳴条件から分散関係を求めるべき。

### 3、モデリングについて

〈シミュレーションの流れ〉



- ・確率による擬似的なrecombinationを考察する。
- ・場：量子ドットポテンシャルから始まり、キャリアの相互作用など含めシミュレーションに取り入れる。
- ・輝度の差が見られるので、その周期特性をFFTにより統計処理する。



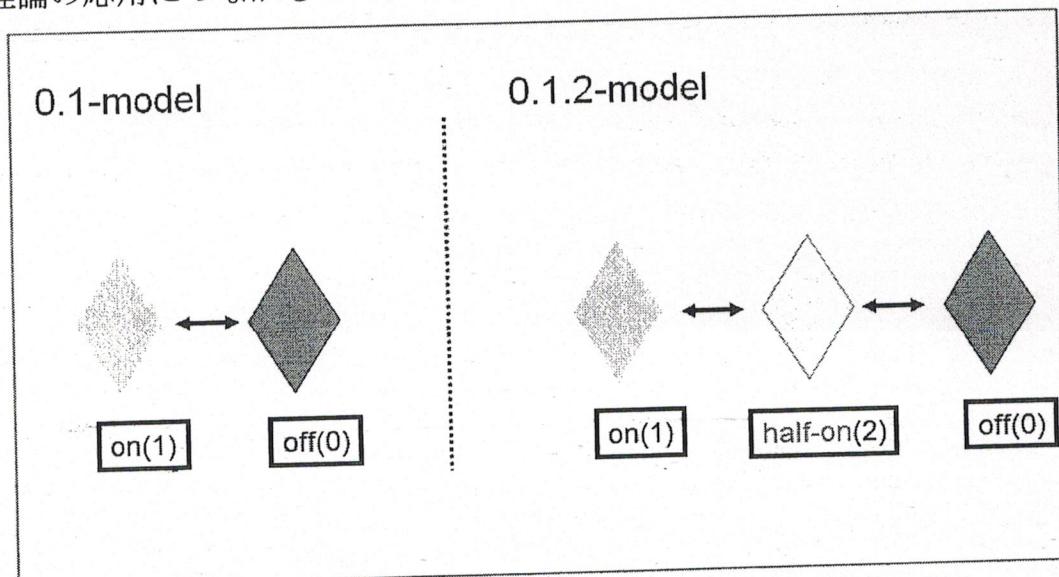
## 4、プリンティングメカニズムについて(二値化の発光、複数レベルの発光)

GaN系発光ダイオードの発光表面では空間的な光学強度の不均一性だけでなく、時間的に光学強度が変化する現象が観測されている。

量子ドットポテンシャル中のキャリアの挙動はAuger過程・電子の活性層からのリーク・局を中心からのキャリアのリーク・トンネリング・格子欠陥(活性層でのホールの欠如)などの影響で、本来量子ドットモデルでみられる単純な2状態(価電子帯・伝導帯)では完全に説明することができない。そのため、中間状態の準位にトラップされた第3の遷移状態にまれに存在している確率を考慮する必要がある。

特に半導体中のAuger過程は、過剰電子の非発光再結合の原因の一つであり、電子や正孔が存在する結晶中に於いて重要になる。Auger過程は、散乱理論と帯構造理論の検証をするものとして興味深い。

また、発光・受光デバイスの特性向上の障害にもなるので、工業技術のテーマとしても重要である。長い間、Auger過程の研究は、純粋衝突過程の理論に基づいていたので、結果の正確な理解が得られなかった。フォノンや不純物による散乱を考慮する近年の理論に至り、理論と実験の一一致はよくなるであろうと思われる。相互作用ポテンシャルの遮蔽の理解は、デバイス面での理論の応用につながるのではないか。



点滅現象(左)、明滅現象(右)

## 5、考察・展望

シミュレーションによるon/off時間統計を、時間に対する明滅の相関を表すグラフに乗せて現象を説明できる解釈を与える。

この統計は両対数グラフに於いて、ある直線に乗ることが多くの実験結果で報告されている。つまり  $y = x^a$  で表すことができる。

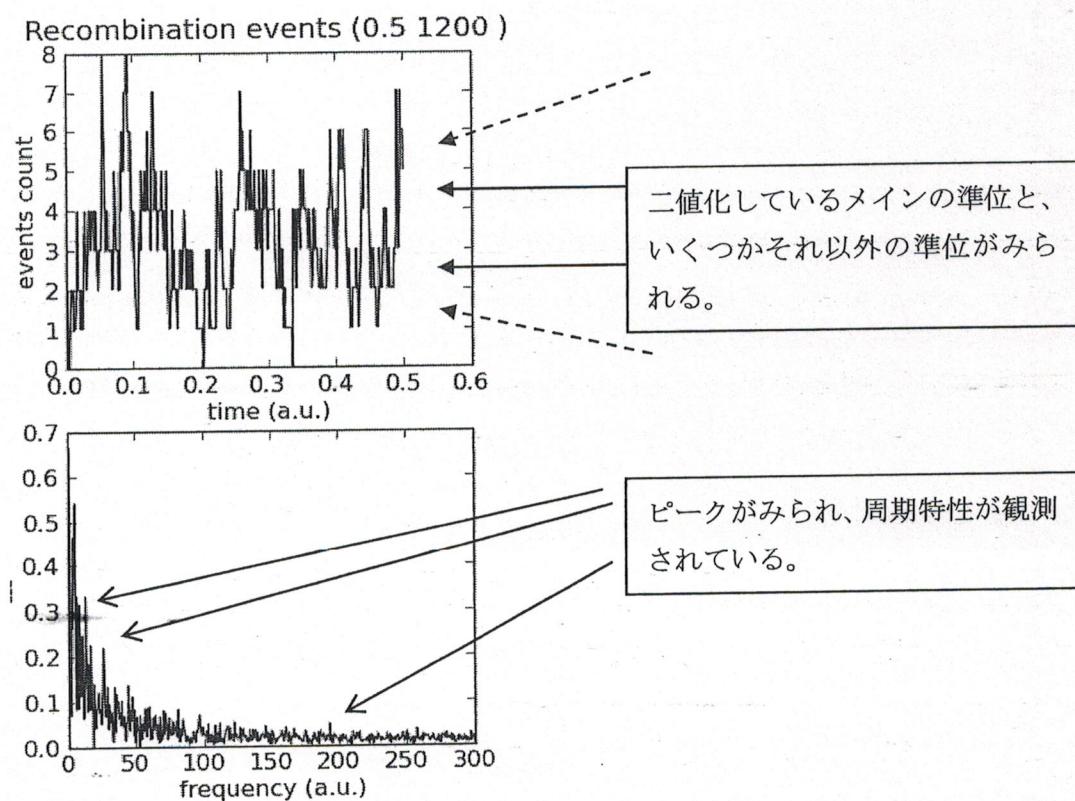
本研究では理論的に点滅現象を考察し、キャリアダイナミクスの数的モデルと近接場走査型光学顕微鏡を用いた実験データとの比較を試みた。

このモデルはオブジェクト指向のプログラム：pythonを用いており、金属表面(平面)上の挙動を扱っている。

キャリアダイナミクスのシミュレーションによるon/off時間統計を、時間に対する明滅の相関を表すグラフに乗せて現象を説明できる解釈を与える。

多くの実験結果で、点滅の統計が幂関数： $y = x^a$  で表すことができ、両対数グラフに於いて直線に乗ることが報告されている。

この幂則との比較により、単純な2状態遷移モデルとの差異を解析する。



光デバイスの基礎的な発光プロセスの理解は機能材料としての可能性を研究することにつながり有益である。これに加えて今後の結晶成長技術の向上、蛍光体材料技術の向上により、半導体照明は必ず実用化すると考えている。

## 6、参考文献

- [1] 「表面プラズモンの基礎と応用」 永島圭介
- [2] "Observation of optical instabilities in the photoluminescence of InGaN single quantum well"  
Ruggero Micheletto, Masayoshi Abiko, Akio Kaneta,  
Yoichi Kawakami, Yukio Narukawa and Takashi Mukai
- [3] "Beyond quantum jumps: Blinking nano-scale light emitters"  
Fernando D.Stefani, Jacob P.Hoogenboom, Eli Barkai
- [4] "Fluorescence intermittency in single cadmium selenide nanocrystals"  
M. Nirmal, B. O. Dabbousi, M. G. Bawendi, J. J. Macklin,  
J. K. Trautman, T. D. Harris, L. E. Brus
- [5] "Fluorescence Intermittency in Self-Assembled InP Quantum Dots"  
Mitsuru Sugisaki, Hong-Wen Ren, Kenichi Nishi,  
Yasuaki Masumoto
- [6] "Development of White LED Fabricated by RGB Phosphor and Near Ultra-Violet LED"  
K. Tadatomo, H. Okagawa, T. Jyoichi, M. Kato, M. Harada,  
T. Taguchi
- [7] 「LEDハンドブック」 JLEDS
- [8] 「半極性バルクGaN基板上へのLEDの開発  
—実用レベルの発光効率と面内偏光の実現—」  
船戸充、川上養一、上田雅也（京都大学工学研究科電子工学専攻）  
成川幸男、小杉卓生、高橋正良、向井孝志（日亜化学工業株式会社）
- [9] 「固体物理学入門」 Charles KITTEL
- [10] "Band-to-Band Auger Process in Semiconductors"  
Takeshima Masumi
- [11] 「XAFSの基礎理論」 宮永崇史（弘前大学理工学研究科）
- [12] 「応用光学」 鶴田匡夫
- [13] 「光学入門」 宮本健郎
- [14] E. Kretschmann, Z. Phys. **241**, 313 (1971).
- [15] A. Otto, Z. Phys. **216**, 398 (1968).

## 謝辞

本論文の作成にあたり、終始適切な助言を賜り、また貴重な時間を割き丁寧に指導して下さったルジェロ・ミケレット先生に感謝します。  
また、同研究室の仲間であった及川虎太郎さんと岸野崇久さんには調査のあり方や考察の方法など、細部にわたるご指導をいただきました。  
ここに感謝いたします。