窒化物半導体における不安定点滅現象に関する研究

平成２３年度　修士論文

横浜市立大学大学院
生命ナノシステム科学研究科
ナノシステム科学専攻
及川虎太郎

目次

第１章 序論

1.1　研究背景と目的
1.2　本論文の構成

第２章 不安定点滅現象について

2.1　不安定点滅現象とは
2.2　窒化物半導体
2.3　量子ドットにおける点滅現象
2.4　不安定点滅現象の定性的解釈
2.5　不安定点滅現象の実験報告

第３章　不安定点滅現象の観測

3.1　測定試料
3.2　実験装置の概要
3.3　動画データの処理方法
3.4　解析手法と結果
3.5　考察

第４章　不安定点滅現象の理論モデル

4.1　概要
4.2　流れの発生
4.3　構造欠陥と流れの乱れ
4.4　電子輸送係数

第５章　総合考察

参考文献

謝辞

窒化物半導体における不安定点滅現象に関する研究

及川虎太郎

主研究指導教員名
ruggero micheletto

副研究指導教員名
重田　諭吉
立川　仁典

第１章 序論

1.1　研究背景と目的

現在、窒化物半導体は発光デバイスとして実用化されている。GaN/InGaN/GaN（ダブルヘテロ構造）による青色発光ダイオードの実用化が代表的な例である。InGaN のバンドギャップは、In のドープ量に依存して 3.4 eV から 2 eV 程度の値である。（In のドープ量とバンドギャップの関係性については、第２章で述べる。）これらのエネルギーは、波長 350 nm から 620 nm（紫から燈色域）にあたる。このように窒化物半導体は、高バンドギャップ（短波長）発光デバイスとしての適性を有しているにも関わらず、実際に発光デバイスとして実用化されたのは１９９３年以降からである。実用化に至るまでの間、その製造過程（MOCVD）において多量の構造欠陥（貫通転移や積層欠陥等）を含むことに起因し、高品質な結晶を得ることができなかった。[1]　その後、結晶成長法に関しては two-flow MOCVD 法などにより、構造欠陥の量は改善されたが、従来の材料と比較するとその構造欠陥は多量で発光デバイスとしての実用化には至らなかった。１９９３年、ダブルヘテロ構造によるデバイス設計（高輝度青色発光ダイオード）がブレークスルーとなり、窒化物半導体の発光デバイスとしての応用は急速な発展を遂げた。

上述した背景から発光デバイスとして開発の進む窒化物半導体であるが、一方でその光物性に関して未解明な部分が存在する。そのため、デバイス設計における最適化など効率的な開発は困難である。例えば、Ruggero Micheletto らによって報告された窒化物半導体における不安定点滅現象は、窒化物半導体膜（GaN/InGaN）フォトルミネッセンス（Photoluminescence : PL）測定において数 μm 程度の領域の光学強度が時間的に変化する現象であるが、その物理的機構の統一的な説明はなされていない。[2][3][4][5]　また、類似の現象として量子ドット（Quantum dot : QD）における点滅現象は、窒化物半導体における不安定点滅現象の観測以前から数多く報告されているが、未だにその解釈について様々な議論が存在している。[6][7]これらの現象の関連性に関して、厳密に議論することは困難であるが、本論文ではその類似性から各々の特性を示す。尚、本論文では上述した二つの点滅現象をそのバンド構造から区別し、以下では次の略記を用いる。

窒化物半導体における不安定点滅現象
Blinking Phenomena in Quantum Well : BPQW

量子ドットにおける点滅現象
Blinking Phenomena in Quantum Dot : BPQD

本研究は、このような未解明な現象に着目することで、窒化物半導体における光物性を解明することを目指している。また、光物性解明のため実験や解析結果からBPQW の物理的機構のモデル化を試みた。本論文では、モデルの定量的な議論には至らないが、定性的なモデルから定量的な研究が深まることを期待したい。

1.2　本論文の構成

本論文では、まず第２、３章において不安定点滅現象の今までの研究経緯や関連事項について述べる。第４章では、測定試料や実験装置の概要について述べた後、動画データの取り込みを利用した PL 測定結果とその解析結果を述べる。第５章では、これまでの研究を通じて考察した不安定点滅現象のモデルについて紹介する。最後に第６章では、実験結果とモデルを総合的に考察することで本論文の結論を述べる。

第２章 不安定点滅現象について

2.1 不安定点滅現象とは

不安定点滅現象は、窒化物半導体の発光面に観測された時間的に光学強度が変化する現象である。[2]　図１には、室温における窒化物半導体膜（InGaN/GaN）に対する PL 測定中の様子を示した。

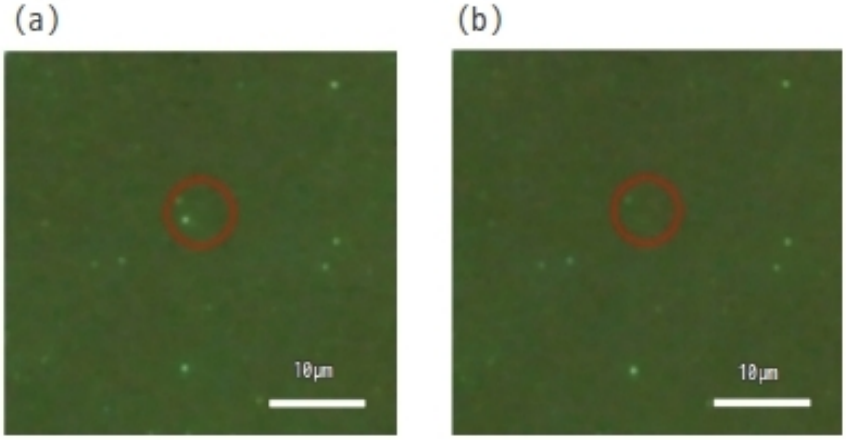
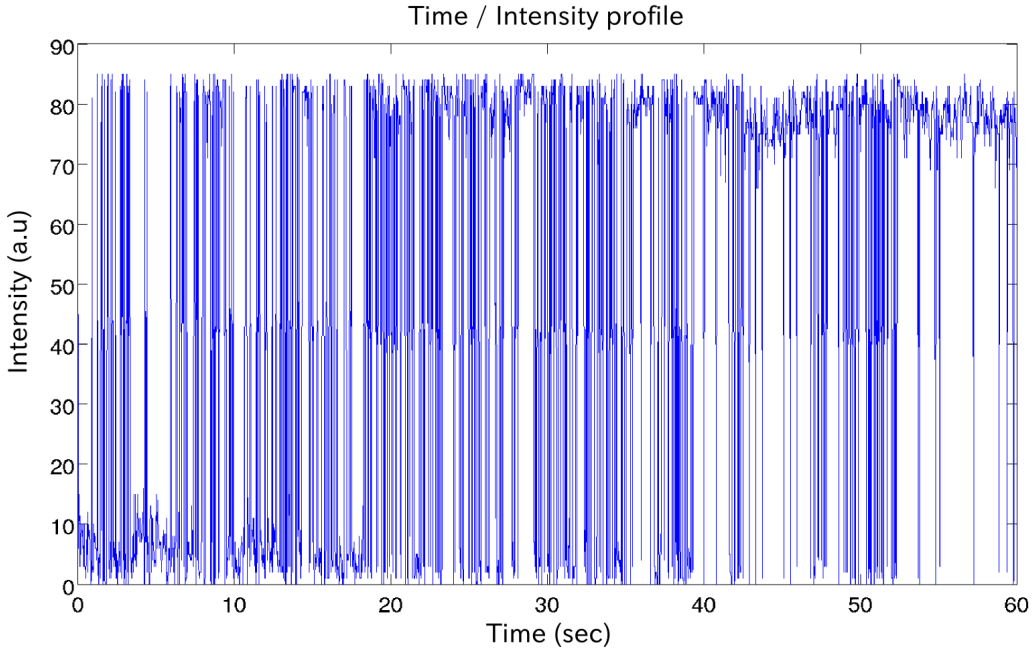
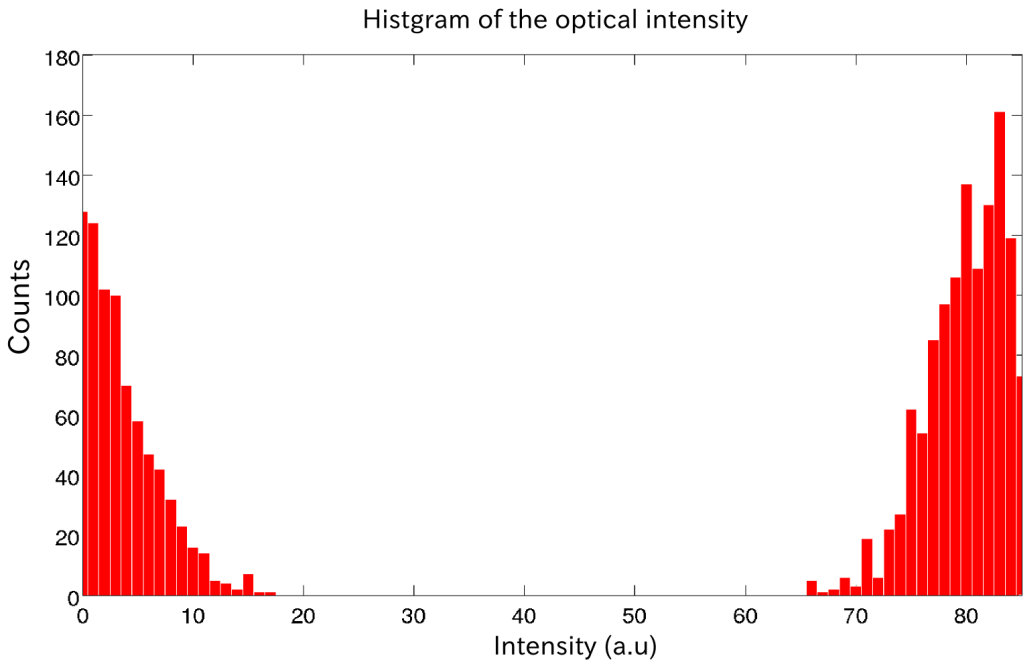


図１　CCD カメラによる InGaN/GaN 膜の PL 像
不安定点滅現象：時間的に光学強度が変化する領域を観測（図の赤円中）。
（a） on 状態から（b） off 状態へ時間的に変化する様子。

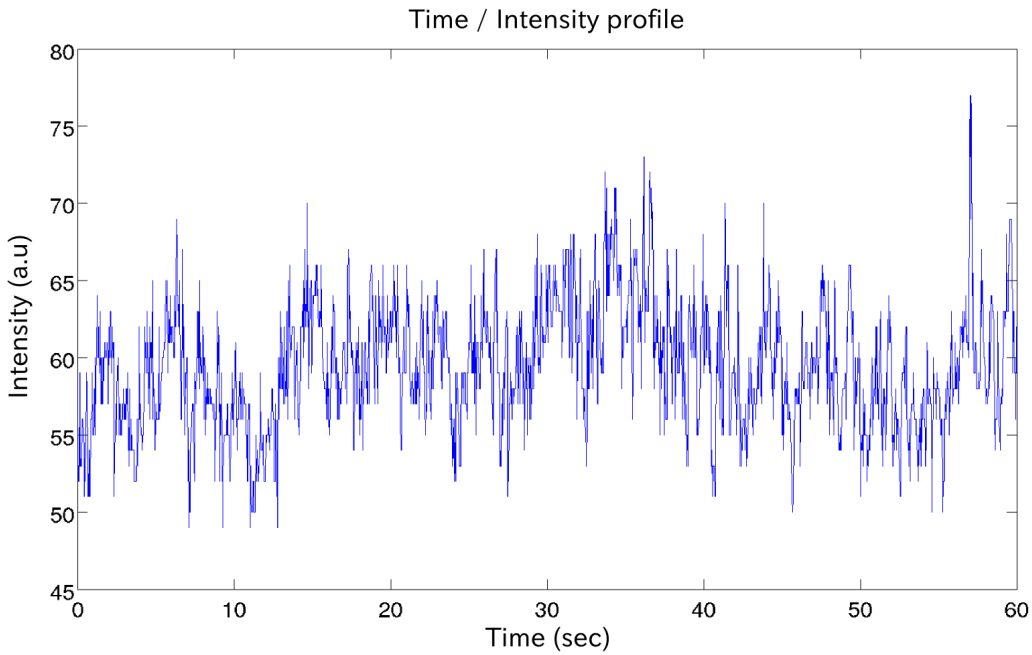
点滅点のサイズは数 μm 程度であり、点滅周期は秒からミリ秒程度である。また、観測された時間と光学強度の信号から不安定点滅現象を２つに分類することができる。ここでは、それぞれを２値化された点滅、多値化された点滅と呼ぶことにする。２値化された点滅は、発光の時間推移において点灯と消光の２つの状態のみを繰り返している。このような点滅は、QD において報告例があり、詳しくは　2.3 「量子ドットにおける点滅現象 」において述べる。一方で、多値化された点滅は時間的に光学強度が様々な値になり複雑な振る舞いを示す。図２には、これら２種類の点滅の例として窒化物半導体膜（InGaN/GaN）に観測された不安定点滅現象の信号（光学強度の時間推移）と光学強度の分布をそれぞれ示す。

(a)


Time / Intensity profile
Intensity (a.u)
Time (sec)
0
10
20
30
40
50
60
70
80
90


Histgram of the optical intensity
Counts
Intensity (a.u)
0
20
40
60
80
100
120
140
160
180

（b）



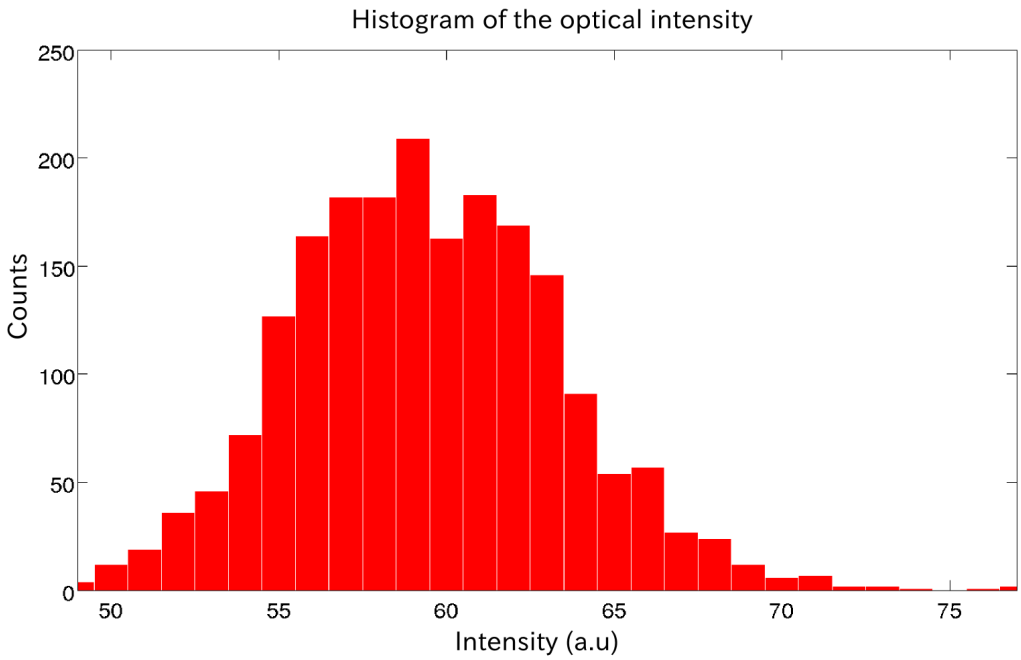


図２　光学強度の時間推移と分布図　　（a）２値化された点滅　（b）多値化された点滅

2.2 窒化物半導体

次に不安定点滅現象が観測された窒化物半導体について、その特徴やデバイス応用としての構造に関して述べる。３－５族窒化物半導体は、GaN と InGaN からなるダブルヘテロ構造をとることにより高輝度発光デバイスとしての応用を実現した。（GaN と InGaN からなるダブルヘテロ構造とは、GaN に In をドープした InGaN を GaN で両側から挟み込んだ構造である。）[1]　室温における InN と GaN のバンドギャップはそれぞれ、約 0.7eV と 3.4eV である。[8]　InGaN のバンドギャップは次式により計算できる。

$$E_{g,InGaN}(x) = xE_{g,InN} + (1-x)E_{g,GaN} - bx(1-x)$$

式中の b はボーイングパラメータ、x は InN の量、(1-x)は GaN の量を示している。つまり、InGaN は、In のドープ量によって発光波長を変化させることができる。このことから、３－５族窒化物半導体は、可視光（緑）から近紫外の領域で光学デバイス応用が可能な材料として注目されている。また、デバイス構造とバンドギャップを対応させることで、量子井戸（Single Quantum Well : SQW）構造をとることがわかる。図３には、GaN/InGaN のダブルヘテロ構造とそのバンド構造の概略を示す。

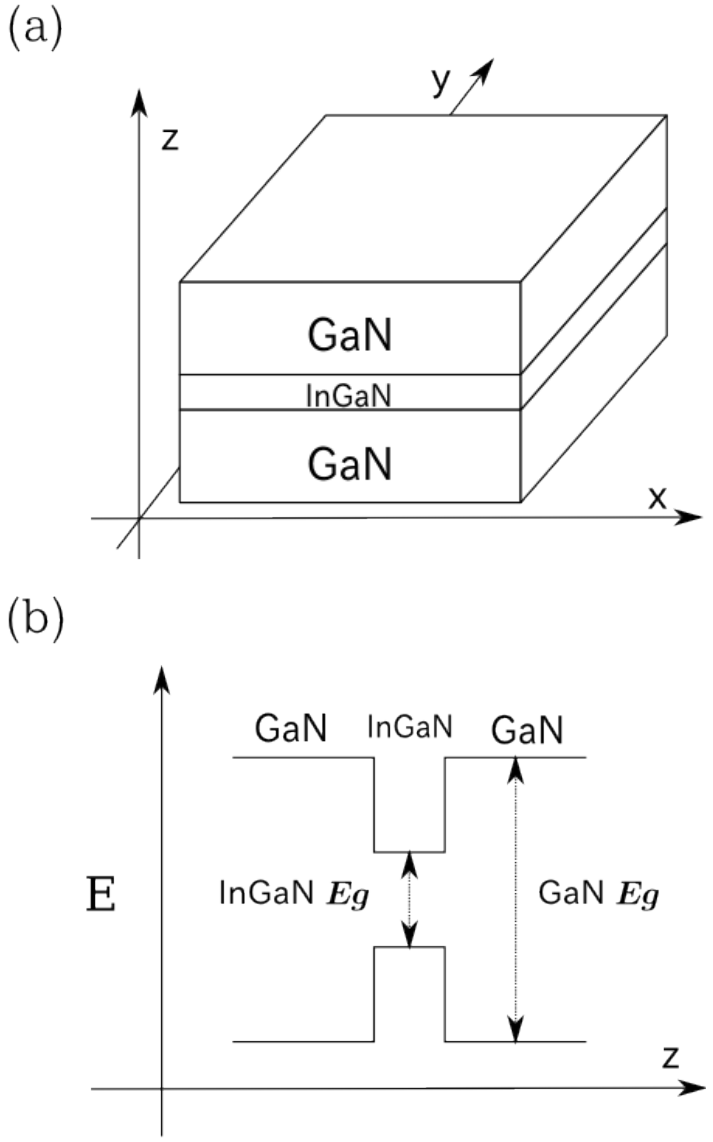


図３　窒化物（GaN/InGaN） 半導体における（a）ダブルヘテロ構造と（b）そのバンド図の概略

窒化物半導体によるダブルヘテロ構造の製造過程では、格子定数のミスマッチにより多くの構造欠陥が生じる。格子定数のミスマッチは、主にサファイヤ基盤と窒化物半導体の格子定数の違いによるものである。表１に、InN と GaN のバンドギャップと格子定数をまとめた。

表１　InN, GaN のバンドギャップと格子定数

	InN	GaN
Band gap　E_g [eV]	0.7	3.4
Lattice constant a [Å]	3,545	3,189
Lattice constant c [Å]	5,703	5,185

これまで述べてきたように、窒化物半導体発光デバイスには、構造欠陥（特に、貫通転移）が数多く存在する。その数は従来の発光デバイスに比べ 10^6 倍になる。[9]　しかしながら、このように多量の構造欠陥を含む窒化物半導体発光デバイスは、従来の発光デバイスと同様に実用可能な輝度を実現している。また、蛍光顕微鏡などによる窒化物半導体の PL 測定では、実空間における光学強度のばらつきが観測されている。この光学強度のばらつきと構造欠陥の関係は明らかでないが、貫通転移と非輻射中心の間に良い相関があるとする報告がなされている。[10]

2.3　量子ドットにおける点滅現象

この章では、BPQW を理解するために、Nirmal らによってはじめて観測が報告された BPQD について述べる。[7]　1996 年に観測された BPQD は、BPQW の観測以前から知られている現象であるが、未だその統一的な解釈は存在しない。[6]
BPQD は、前章で述べた分類では 2 値化された点滅が多く報告されている。またその点滅周期は、窒化物半導体の場合と類似している。これまでに、BPQD では、その実験結果との対応から 2 つの考察（量子ジャンプモデル、べき乗則）について議論されている。[6]　尚、BPQW と BPQD は類似した現象ではあるが、その関連性については未解明である。

（a）量子ジャンプモデル Quantum jump model
量子ジャンプモデルは、1985 年に cook、kimble らによって示された。[11]　量子ジャンプモデルでは、光学強度の高い状態（on 状態）または光学強度が低い状態（off 状態）の時間間隔（T）の頻度分布は次式で示される。

$$W_{on}(T) = R_{+}\exp(-R_{+}T)$$
$$W_{off}(T) = R_{-}\exp(-R_{-}T)$$

この時、 R_{+} と R_{-} は、 P_{+} と P_{-} を用いて次式で示される。（但し、 P_{+} と P_{-} は、状態間の遷移確率である。）

$$P_{+} = \frac{R_{+}}{R_{+}+R_{-}}$$
$$P_{-} = \frac{R_{-}}{R_{+}+R_{-}}$$

しかし、QD における点滅現象の実験では、上式と観測結果が一致しないとする報告がなされている。[6]

（b）べき乗則　Power law
一方で、QD における点滅現象の時間間隔の頻度分布は、べき乗則に従うとする実験結果が報告されている。[6]　これは、次式で表される。

$$P(t) \propto t^{-\alpha}$$

ここで、α はスケーリングパラメータとよばれ、その値は $1<\alpha<2$ であることが報告されている。[6]　一般に、べき乗則は、それに従う現象が複雑な過程に基づいていることを示している。

2.4　不安定点滅現象の解釈（深い準位、量子閉じ込めシュタルク効果）

現在、BPQW は、深い準位と量子閉じ込めシュタルク効果によって説明できると考えられている。[3] [5]

（a）深い準位　（Deep trap）

窒化物半導体中では、多くの欠陥が存在することはすでに述べた。一般に、これらの欠陥によって半導体中のエネルギー準位は、一様ではなくなり深い準位が発生する。レーザーなどにより価電子帯に励起された電子は、この深い準位にトラップされる。また、深い準位にトラップされた電子は、熱放射などによってデトラップされる。

（b）量子閉じ込めシュタルク効果　（Quantum-confined Stark effect : QCSE）

深い準位にトラップされた電子は、内部電界を発生させる。この内部電界により波動関数の重なりは減少し、キャリアの再結合確率も減少する。この内部電界による効果を、量子閉じ込めシュタルク効果と呼ぶ。[9]　図４では、SQW 構造における深い準位による QCSE の各過程の様子と、それに対応する光学強度の概略を示した。

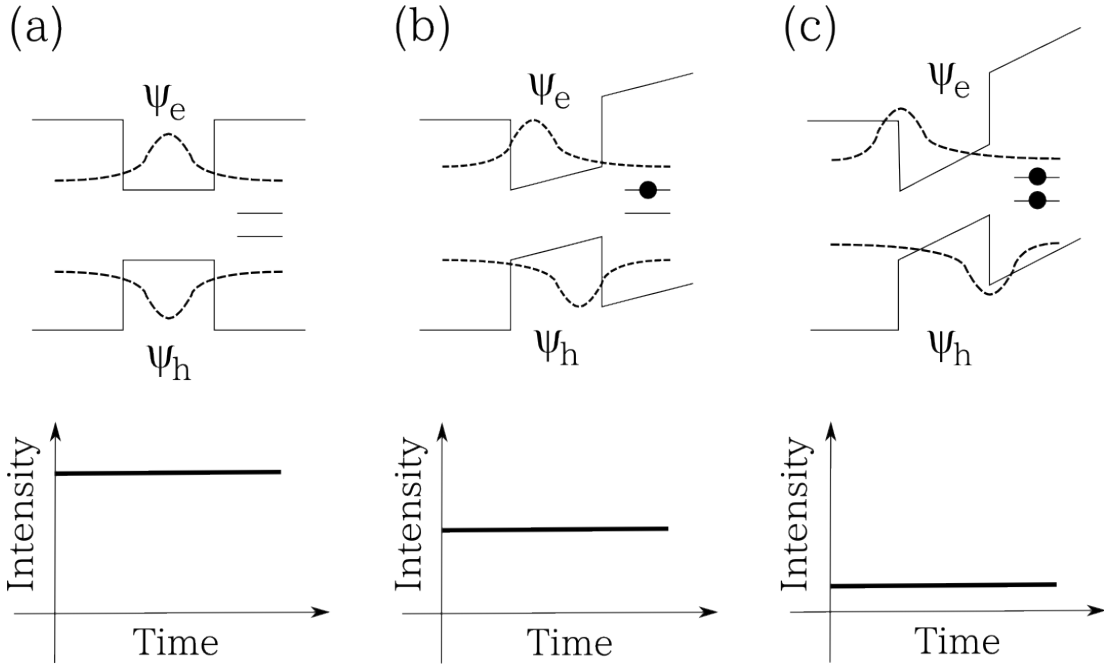


図４　SQW 構造における深い準位による QCSE の各過程の様子と、それに対応する光学強度の概略図

（a）は、電子のトラップのない状態で対応する光学強度は、他の状態に対して光学強度は相対的に高い。（b）,（c）は、電子がトラップされ内部電界が発生し、トラップされた電子の数の応じて光学強度が減少する。

図４に示した、これらの過程が時間経過に伴って繰り返されることで、窒化物半導体における不安定点滅現象を説明することができる。しかし、BPQD と同様に頻度分布などの実験結果から未だ確立された説明はなされていない。[3][5]

2.5　不安定点滅現象の実験報告

これまでに、本研究と同試料による実験が我孫子正義や Christian Feldmeier らによって報告されている。[3] [5]　ここでは、BPQD の観測結果の報告をまとめる。図５には、実験で使用された試料についてその構造と発光波長のスペクトルを示した。

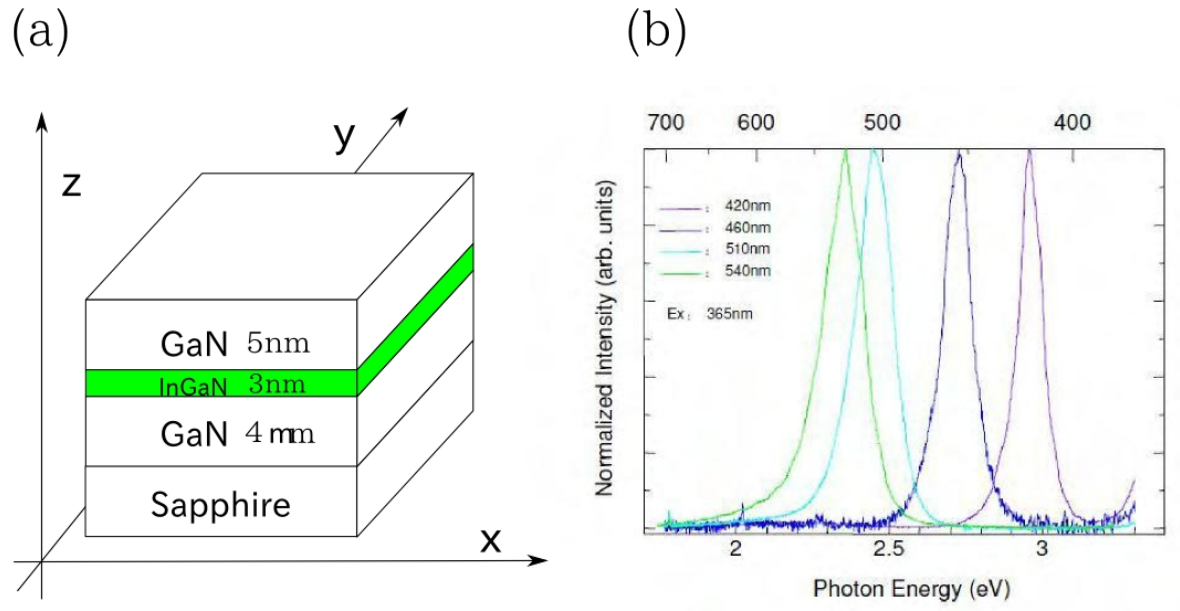


図５　窒化物（InGaN/GaN）半導体膜試料の（a）構造と（b）発光波長スペクトル
発光波長は In 濃度に依存し、４種類の試料に対する発光波長スペクトル示す。また、これら４種類の試料構造は（a）で同一である。

（a）励起波長による依存性

図６には、窒化物半導体膜の PL 蛍光像を励起波長、試料ごとに示した。（460nm,510nm,540nm）　選択した励起波長は 365nm と 405nm である。365nm の励起波長では、InGaN/GaN 層の両層を励起することができる。また、405nm の励起波長では、GaN のバンドギャップ約 3.4eV は励起することができず、InGaN 層のみを励起することになる。図６からわかるように、365nm（励起波長）では不安定点滅点が多く観測されているのに対して、405nm（励起波長）では不安定点滅点は観測されていない。つまり、InGaN/GaN 層の両層が励起されることで不安定点滅現象が起きている。

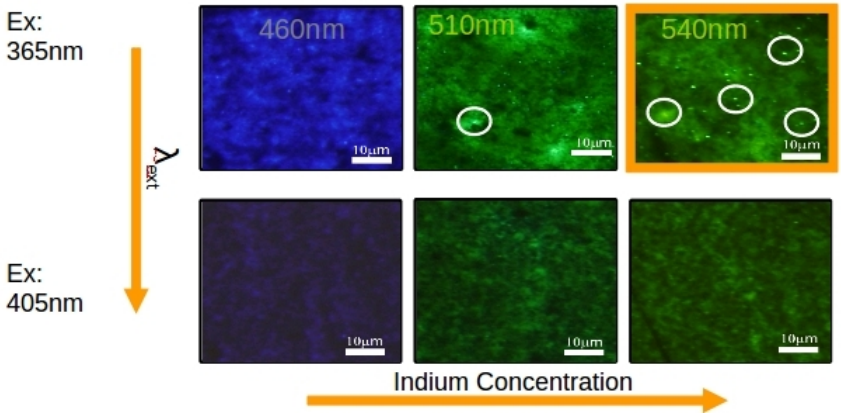


図６　不安定点滅点数の励起波長依存性と In 濃度依存性
図の各白円は、１つの不安定点滅点の存在を示している。

（b）温度特性

ここでは、不安定点滅現象の温度依存性を測定結果を示す。また図７には、PL 測定の様子を動画データとしてコンピュータに取り込み、点滅点の信号（光学強度の時間推移）を示した（275K～315K）。

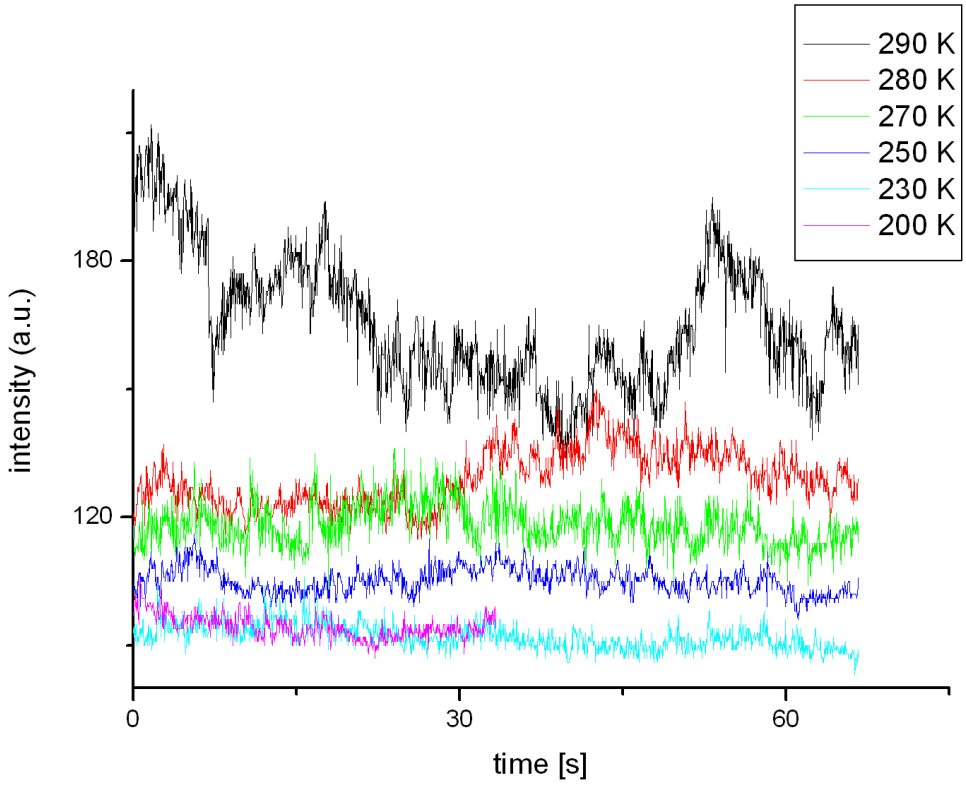


図７　不安定点滅点信号の温度依存性
温度の低下に伴って、光学強度の振り幅は減少している。

第３章　不安定点滅現象の測定と解析

この章では、本研究における観測結果及び解析結果について述べる。時間分解 PL 測定により、窒化物半導体膜の PL 蛍光像を時系列データとしてコンピュータに取り込み、その時系列データに解析を加えた。

3.1　測定試料

本研究では、2.5「不安定点滅現象の実験報告」で述べた試料の中で発光波長が 540nm の試料を用いた。

3.2　実験装置の概要

実験装置の概略図を図８に示した。

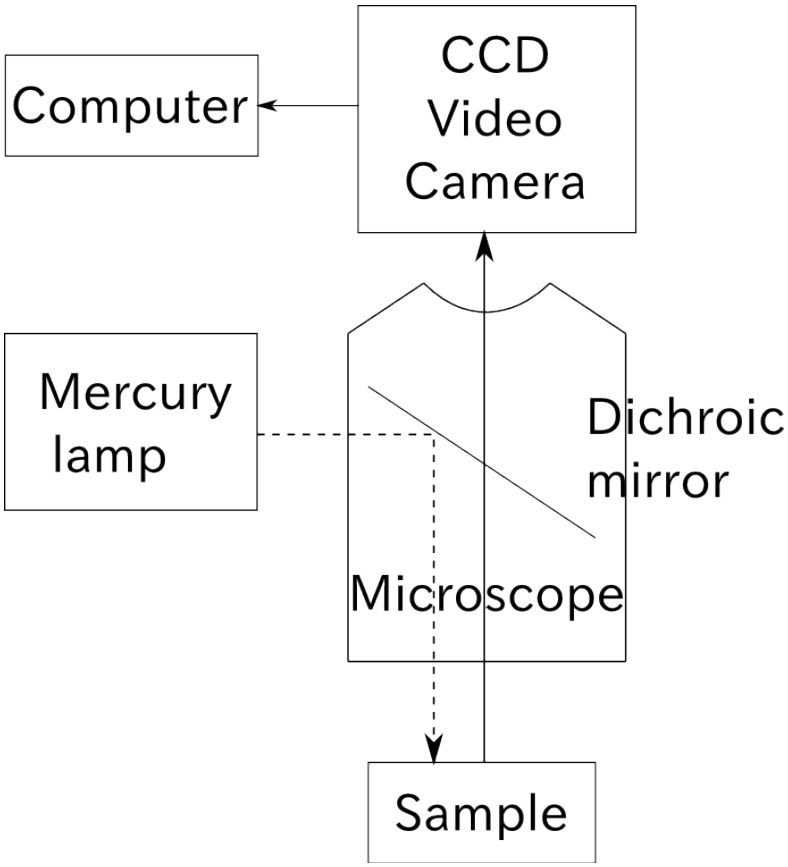


図８　実験装置の概略　　レーザで試料を光励起し、その顕微鏡像を CCD カメラで記録した。

3.3　動画データの処理方法

まず、図８に示したCCDビデオカメラによって試料からの発光の様子を撮影した。次に、撮影した動画を解析用ソフトウェア（Matlab）に読み込んだ。この時、フレーム毎に分割し読み込むことで、各ピクセルごとの信号（光学強度の時間推移）を数値データに変換した。また、信号の光学強度はR、G、Bの輝度値からグレースケール化した値である。取り込み時のフレームレートは、毎秒３０フレームである。このフレームレートは、これまでに述べた点滅現象（窒化物半導体、QD）の時間推移のスケールと比較し、十分にその振る舞いを解析できる。図９には、動画データの処理方法の概略を示した。

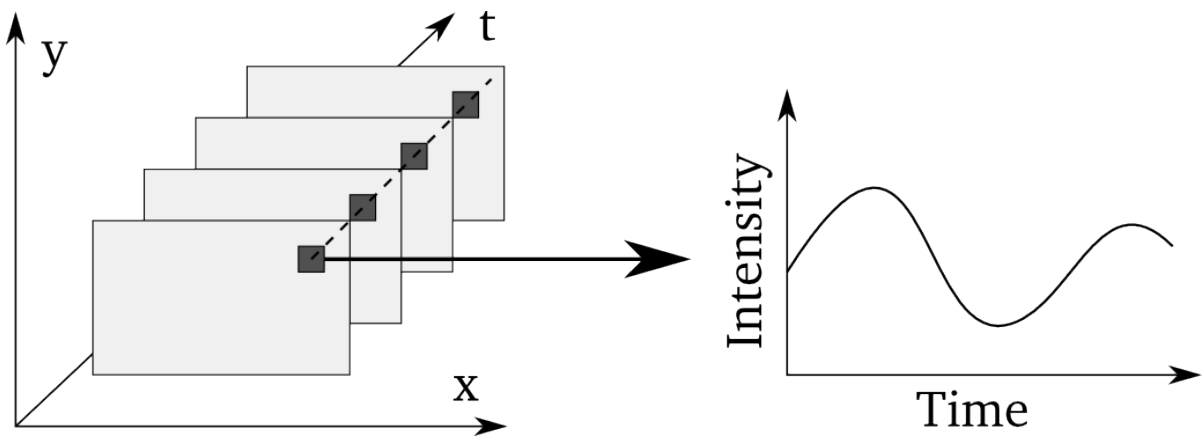


図９　動画データの処理方法の概略
光学強度の値が格納された配列の任意の座標（x, y）を決定し、その座標における光学強度の値を各フレームから取り出し、時系列順に並べた。

3.4　解析手法と結果

（a）標準偏差

まず、各ピクセルごとの信号に対して標準偏差の処理を行った。図１０には、各ピクセルごとに得られた標準偏差値をマッピングし、その一例を示した。この解析による標準偏差値の値から不安定点滅現象と考えられる位置を特定した。但し、得られた位置が不安定点滅点であるかどうかは、CCD ビデオカメラによる動画、光学強度の時間推移、次に述べる周波数特性などの解析結果を考察することで判断する必要がある。このような操作によって、実験装置や手法に起因するノイズではないことを確認する。

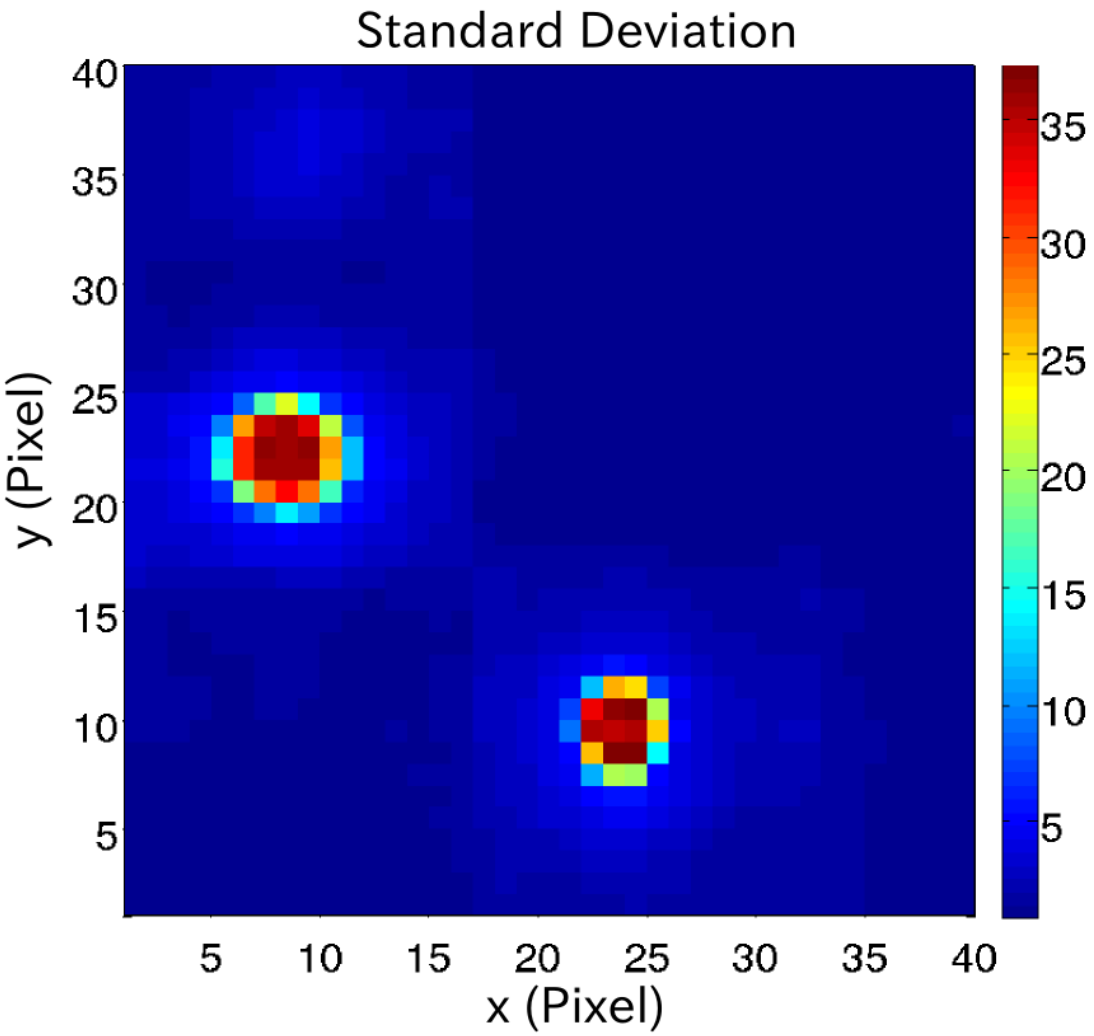


図１０　標準偏差解析結果の例
図には、２つの不安定点滅点と考えられる範囲が存在している。

（b）周波数特性

得られた不安定点滅現象の信号（光学強度の時間推移）に対して高速フーリエ変換（Fast Fourier Transform : FFT）を行い、データの周波数特性を調べた。図１１には、不安定点滅現象の信号とその信号に対する FFT 解析の結果を示した。

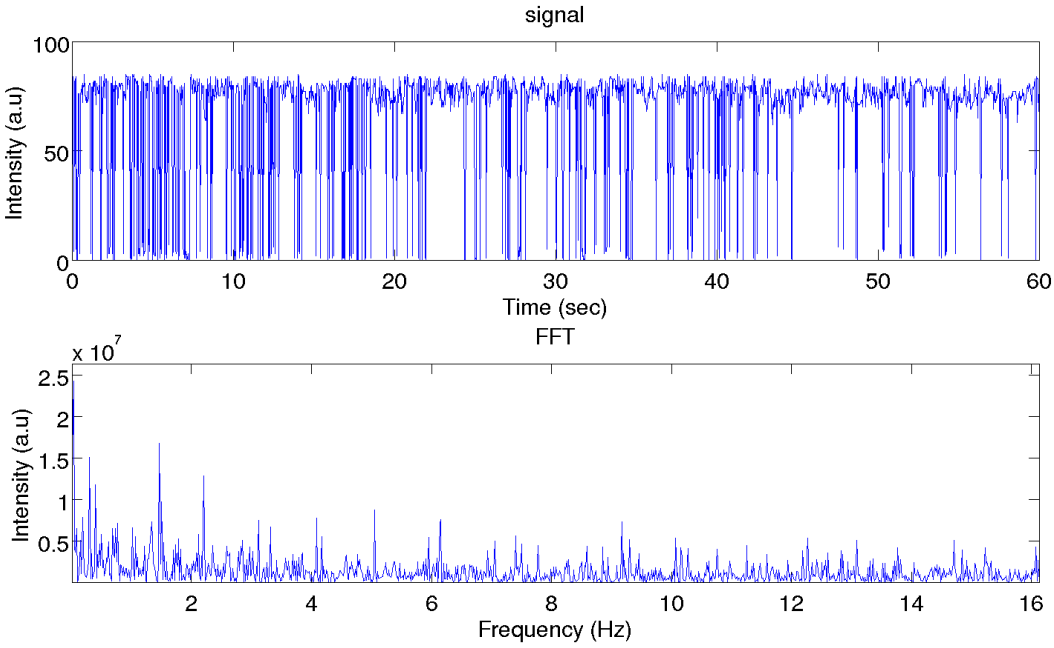


図１１　不安定点滅点の信号（上図）とその FFT 解析結果（下図）
FFT 解析結果（下図）は、白色ノイズではなく幾つかのピークを確認することができる。

（c）相互相関関数による解析

これまでに、本研究と同試料による点滅点の定量化に関する実験が我孫子正義や Christian Feldmeier らによって報告されている。[4] [5]　しかし、これらの報告は一つの点滅点に対して定量化と評価を行ったものであった。そこで、本研究では相互相関関数を用いた解析によって、同試料上の他の点滅点や点滅点周辺との相関関係の定量化を試みた。

まず、不安定点滅点の信号と各ピクセルの信号の相関係数を相互相関関数を用いて計算した（但し、各ピクセルには、不安定点滅点の信号も含み、その相関係数の値は１である。）。次に、各ピクセルの信号を１フレームずつ時系列順にずらし、タイムラグを与え、タイムラグを与えていない不安定点滅点との相関係数を計算した。図１２には、相互相関関数による解析対象範囲の標準偏差値を示した。図１３には、各ピクセルにおける相関係数をタイムラグごとに示した。

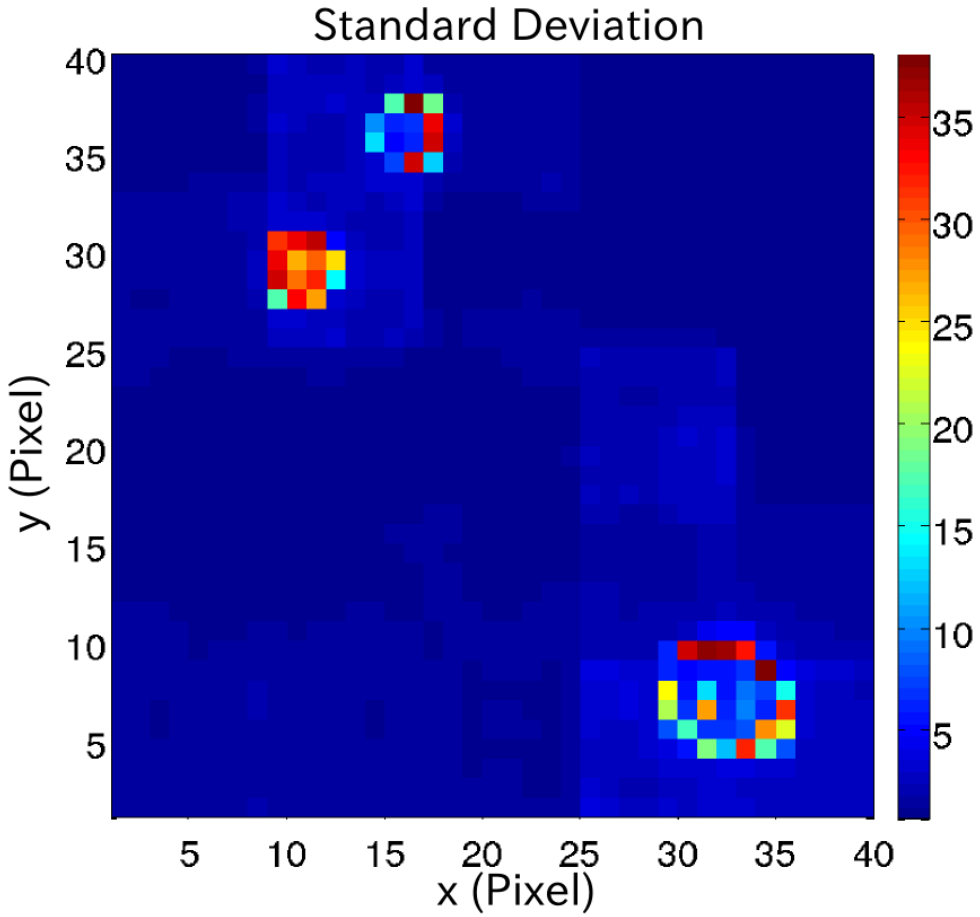


図１２　相互相関関数解析対象範囲における標準偏差解析図
図では、３つの不安定点滅点と考えられる範囲が存在する。図の赤い範囲は、標準偏差値の高い範囲を示している。

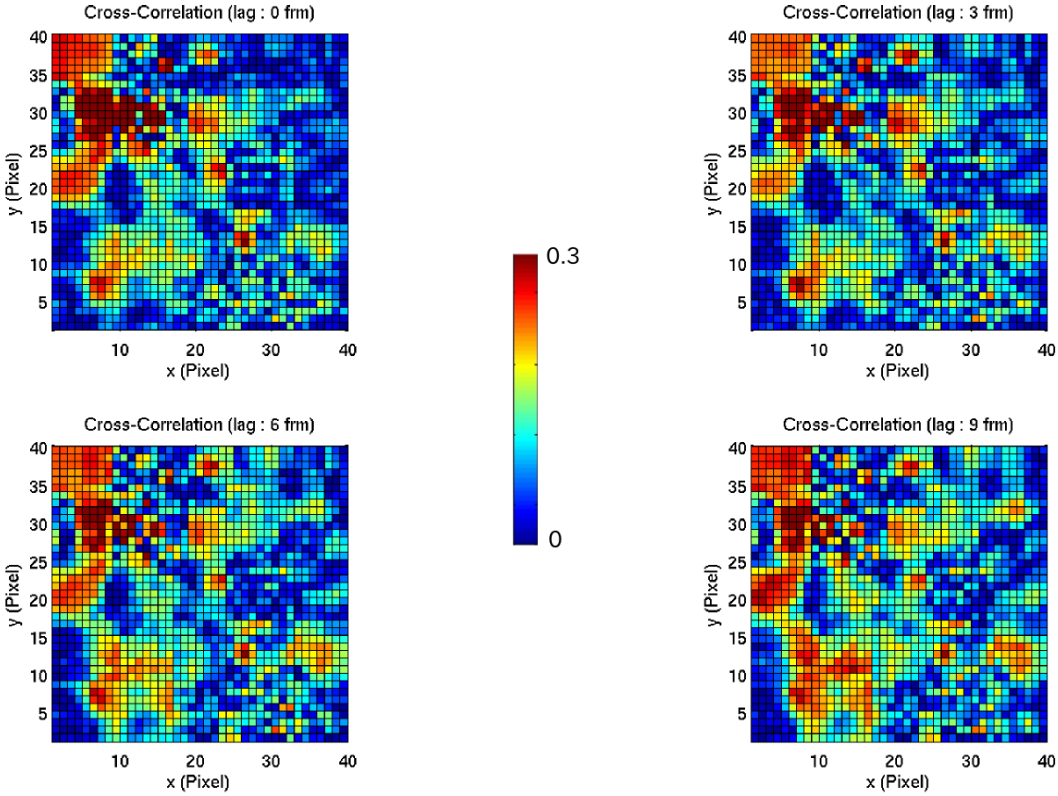


図１３　不安定点滅点（x=9, y=29）と各ピクセルの相互相関解析図　（0.03 sec/frm）
図の赤い範囲は、相関係数の値が高い範囲を示している。

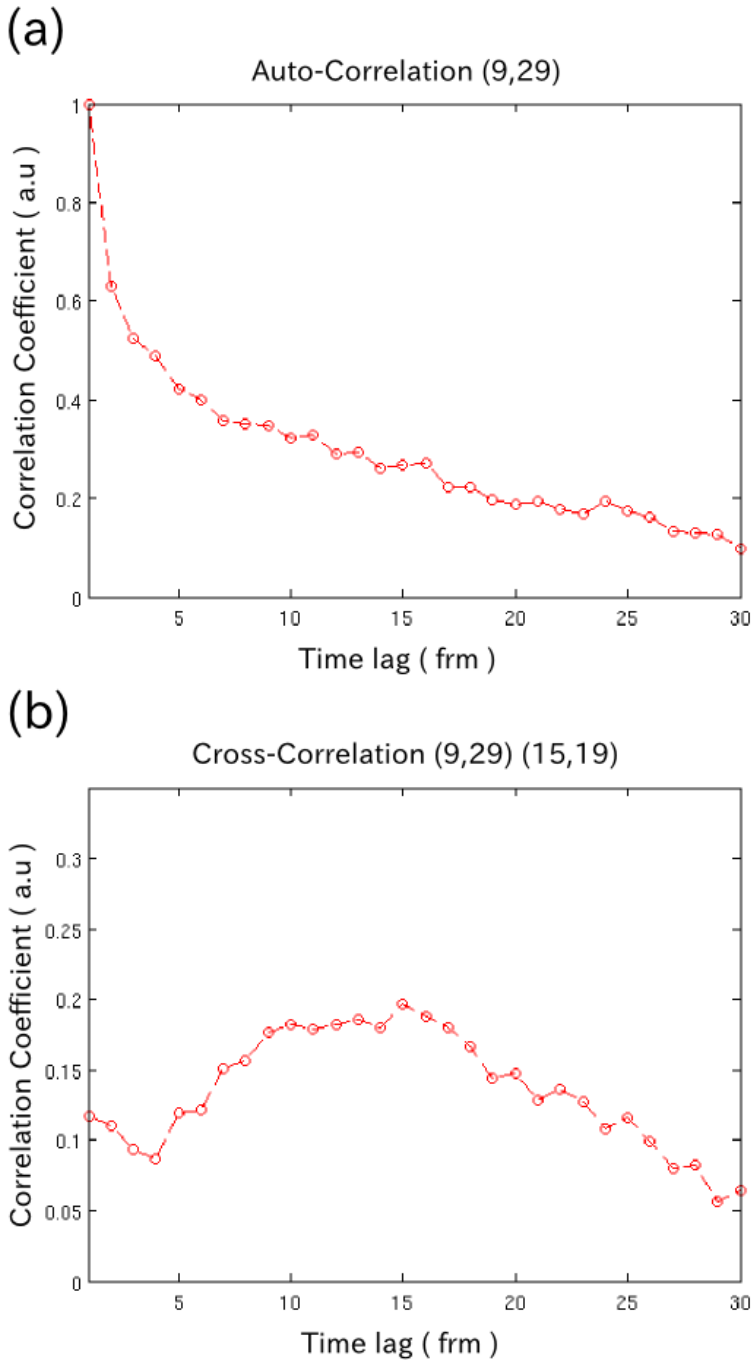


図１４　相互相関関数解析における相関係数とタイムラグの関係図
（a）は、不安定点滅点（x=9, y=29）同士（自己相関）のタイムラグ毎の相関係数である。（b）は、不安定点滅点（x=9, y=29）と任意の点（15,19）のタイムラグ毎の相関係数である。

3.5　考察

図１１では、周波数領域全体にわたって幾つかの鋭いピークを確認することができる。これは、解析した信号がホワイトノイズではないことを示す。また、CCD カメラのフレームレートなどの測定によるノイズではない。以上のことから、BPQW の物理的機構には周期的な変化をもたらす要因も検討することが必要である。

相互相関関数による解析は、信号処理の分野で多用され、２つの信号 x,y を用いて次式で示される。

$$R = \frac{Cov(xy)}{\sigma_x \sigma_y}$$

但し、 $Cov(xy) = <xy> - <x><y>$

$$\sigma_x = \int (x - <x>)dx, \quad \sigma_y = \int (y - <y>)dy$$

相互相関関数では、異なる２つの信号の相関の度合いを相関係数（R）として算出できる。また、一方の信号を基準とし、もう一方の信号にタイムラグを与え相関係数を算出することで、相関係数の時間推移を得ることができる。このことから、正の時間推移に伴う相関係数の増大は２つの信号がある基準信号と、その基準信号にタイムラグを与えた信号であることを示す。つまり、相互相関関数を用いた解析では、基準となる信号とそれに対する応答の有無を考察することができる。図１２では、まず不安定点滅点の信号の位置を確認するため標準偏差の解析を行った。標準偏差の解析によって解析範囲に不安定点滅点を３つ確認できる。(9,29) (30,12) (38,17) 図１３は、不安定点滅点 (9,29) と各ピクセルの相関係数を示したものである。不安定点滅現象の信号 (9,29) の周囲では、タイムラグによらず他の領域と比較して高い相関係数を示している。それに対して、他の多くの点は相関係数は低い。また、他の点滅点 (30,12)、(38,17) においても相関係数は低い。ここで、図１３の中でタイムラグを増加させることに伴って相関係数が高くなる領域に着目する。これは、前述した基準信号に対する応答であるから、不安定点滅現象の信号を基準信号とすると空間的に異なる位置でその応答が測定されたことを示す。つまり、図１３の結果は、不安定点滅現象の信号に対する応答が空間的に伝搬する様子を示している。図

１４では、相互相関係数とタイムラグの関係を、不安定点滅点 (9,29)、タイムラグ増加時に、相関係数が高くなった点(15,19)の２つに関してそれぞれ示した。

以上のことから、不安定点滅現象は、点滅点の発光のダイナミクスを考察するだけではなく、空間的な影響を考慮した物理的機構を検討することが必要である。

第４章　不安定点滅現象の理論モデル

4.1　概要

この章では、BPQW の理論モデルを示す。前章で述べた考察から、半導体内での電子（一般に正孔に関しても電子と同様の議論ができるが、本研究において正孔は取り扱わない。）は、その集団を巨視的に扱うことで流体のような振る舞いであると仮定し、それらの輸送過程を理解することで BPQW の発生過程を議論する。半導体内の電子の挙動は、自由電子モデルからの発展でフェルミ流体の理論で示される。半導体内では電子ー電子の相互作用は無視することができないことを仮定し、複数の電子を連続体（流体）として取扱うことで、その空間的、時間的な挙動を考察する。また、それらの挙動と BPQW の対応関係から理論モデルを提案し、BPQW と試料の構造についての関連を考察する。

4.2　流れの発生

まず、半導体における電子集団による流れの発生に関して述べる。本研究の試料と同様に SQW 構造の窒化物半導体では、価電子帯中に井戸の深さに相等するエネルギー差（勾配）が生じる。この勾配により、価電子帯に励起された電子群は井戸底方向に力を受ける。この時、各電子は一様な方向に運動し流れを生じる。本論文では、このような電子集団による流れを、単に電子流体と呼ぶ。図１５には、上述した様子の概略を示す。このような励起されたキャリアの量子井戸層への移動は、中村修二らの論文においても示唆されている。[1][9]

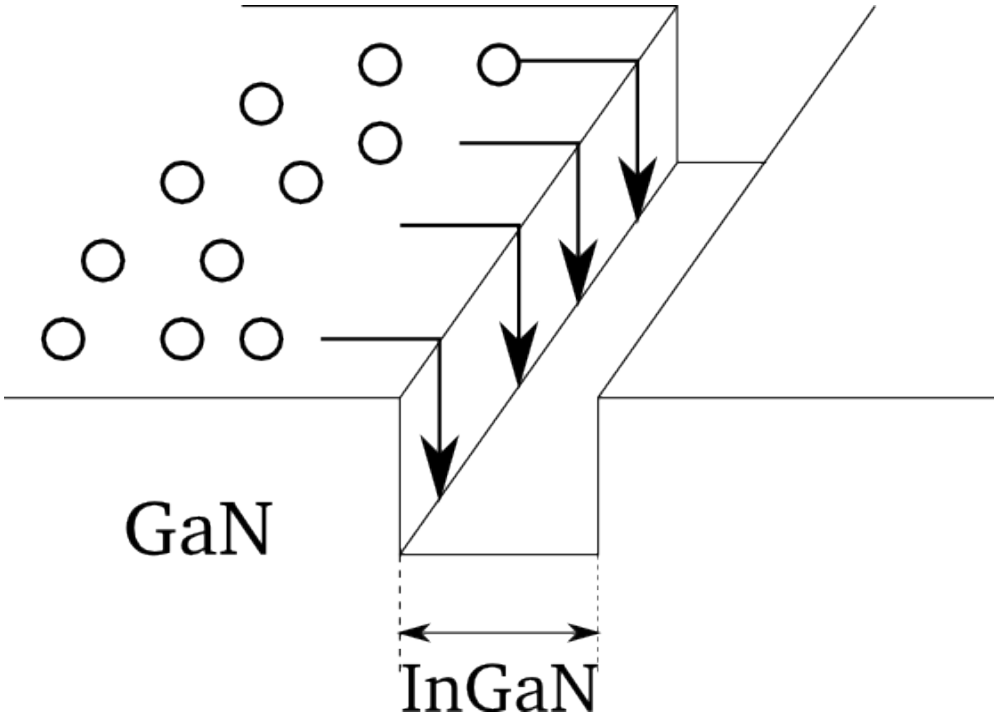


図１５　SQW 構造におけるキャリア移動の模式図

また、半導体内での電子の振る舞いは、電場によるドリフト速度として次式で示される。（但し、E は電場、μは移動度である。）

$$v = -\mu E$$

次に、上述した輸送過程より電子がどのように再結合に寄与し、光学強度として観測されるかを述べる。実際の SQW 構造では、図１５に示したように、量子井戸には２方向から電子流は流れ込む。しかし、ここでは問題を簡単にするため１方向の流れのみを考える。また、ここで実際の試料の構造と対応させ３次元空間（x,y,z）での流れを考える。図１６には、試料の構造と対応するモデルの概略を示す。

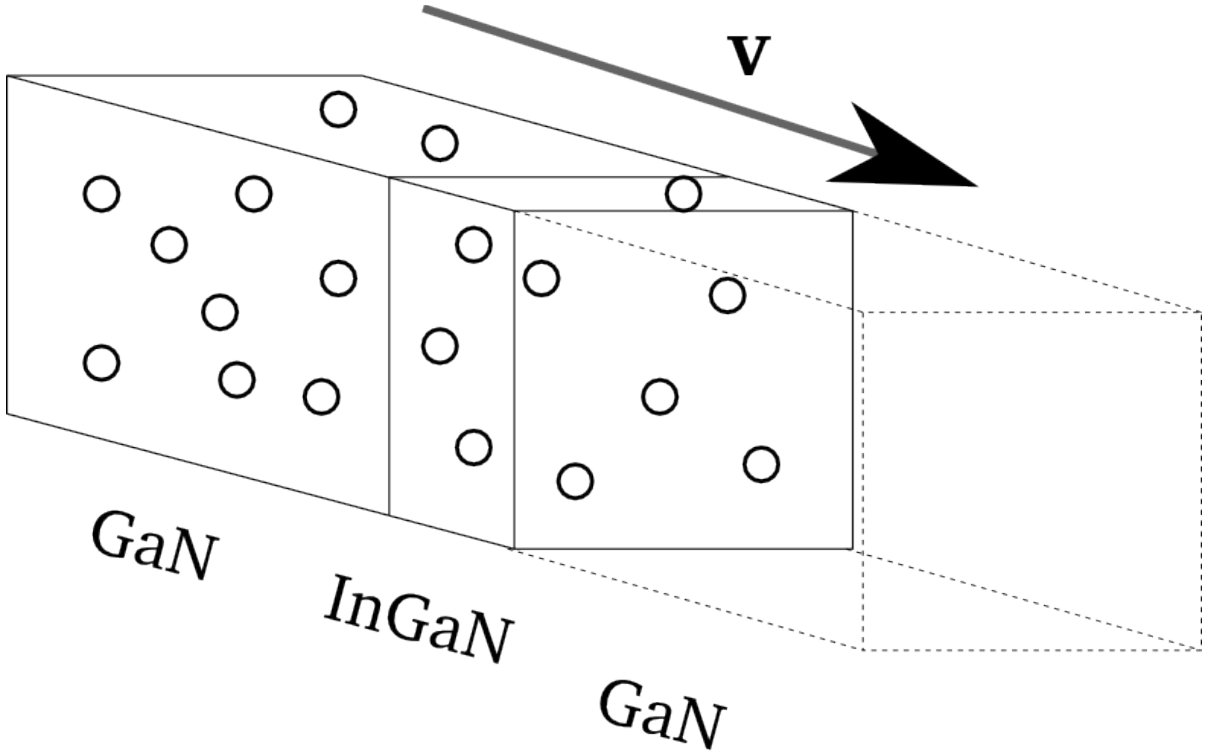


図１６　InGaN/GaN 試料におけるキャリア移動の模式図

次に、量子井戸内に到達した電子は再結合に寄与し、光子を放出することを考える。また、連続励起下では、順次量子井戸内に電子が到達する。つまり、単位時間あたりに量子井戸内に到達する電子の数は電子のドリフト速度（電子流体の流速）に比例する。ここでは、空間に静止した観測者の立場で考える。ここで、量子井戸に到達した電子が一定の割合で再結合し光子が生成されると考える。この時、単位時間あたりの生成された光子数（光学強度）は次式で示される。

$$\frac{dNp}{dt} = I \propto \rho v$$

また３次元空間において、量子井戸内に到達する電子流体は、その流れ方向に対して垂直な面に存在し、その面での電子流体の流速の分布が光学強度の分布に対応する。（これらは、流体力学におけるオイラー的記述の速度場として理解しやすい。）図１７には、上述した様子を示す。

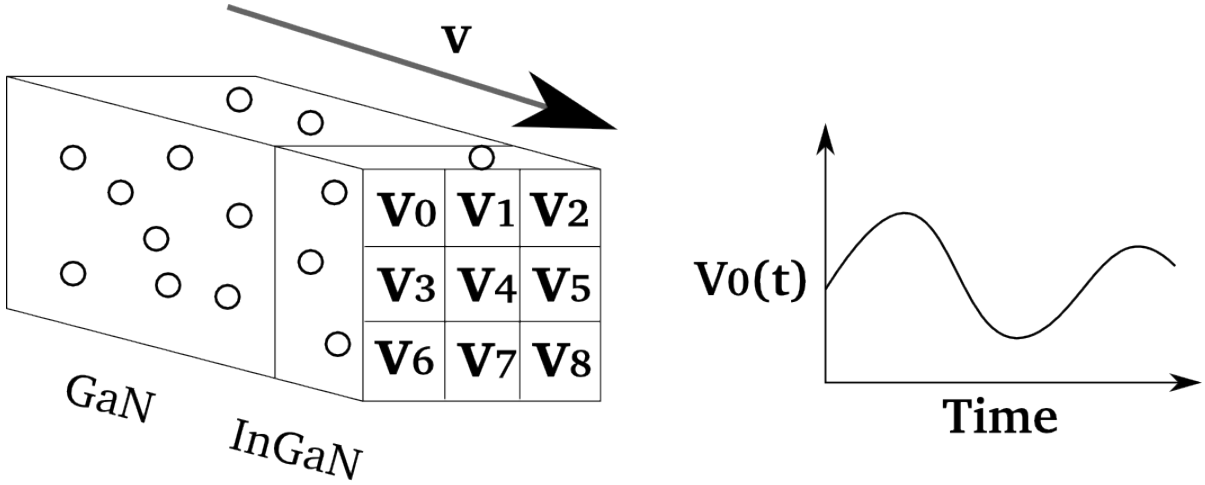


図１７　InGaN/GaN 試料における流体速度と光学強度の関係図

4.3　構造欠陥による流れの乱れ

量子井戸内に到達する電子流体の流速の分布が、観測される光学強度の分布に対応することが導かれた。次に、光学強度の時間的変化について述べる。光学強度は、電子流体の流速に対応するのであるから、電子流体の流速の時間的変化を考えればよい。しかし、ここでは単に電子流体は一様な流れであるので、その時間的変化は生じない。これは、流体力学における一様な定常流を考えることで理解できる。ここで、この電子流体の流れの中に電子の侵入できない領域（障壁）が存在すると考える。例えば、これは構造欠陥による価電子帯のエネルギー構造のゆらぎであったり、深い準位にトラップされた電子による内部電界などである。この時、電子流体の流れは、障壁を避けるように量子井戸内方向に流れる。つまり、量子井戸内に到達する電子流体の流速の分布が、観測される光学強度の分布に対応するから、障壁後方の電子流体の流速の分布の時間発展を調べれば良い。これは、流体力学における一様流中に置かれた円柱（但し、ここでは障害物の形状を円柱として議論する。）まわりの流れの問題と本質的に一致する。このとき円柱の後方にできる流れの振る舞い（流速）は、ナビエ・ストークス方程式を解くことで理解することができる。非圧縮のナビエ・ストークス方程式は次式で示される。（ ν は動粘性係数である。）

$$\frac{\partial v}{\partial t} + (v \cdot \nabla) = -\frac{1}{\rho}\nabla + \nu\nabla^2 v + f$$

$$div\ v = 0$$

ここで、右辺の第１、２、３項はそれぞれ移流、拡散、外力を表す項である。また、一様流中に置かれた円柱まわりの流れでは、円柱後方での流れの振る舞いは、レイノルズ数（無次元パラメータ）に依存する。レイノルズ数は次式によって示される。

$$R_e = \frac{UL}{\nu}$$

ここでU、L、 ν はそれぞれ流速、代表長さ、動粘性係数である。（但し、代表長さは、円柱の直径である。）また、数値流体力学によって非圧縮ナビエ・ストークス方程式は、解析的あるいは数値的に解をえることができる。図１８には、P.A.DAVIDSON 著の turbulence から、一様流中に置かれた円柱まわりの流れの様子をレイノルズ数ごとに示した。[12]　但し、上述したモデルでの流れは３次元によるものであるが、ここでは議論を明確にするため２次元の流れを例として示す。

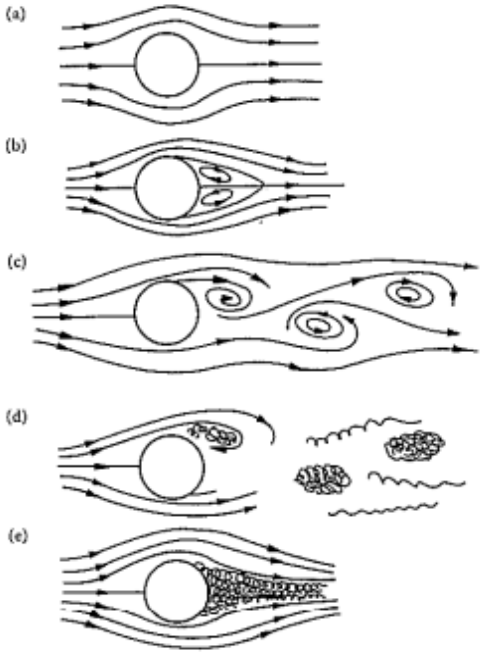


Figure 1.4　Flow behind a cylinder:
(a) Re < 1; (b) 5 < Re < 40;
(c) 100 < Re < 200; (d) Re ~ 10^4;
and (e) Re ~ 10^6.

図１８　各レイノルズ数における円柱まわりの流れの様子（参考文献 [12] より）
図の上部から順にレイノルズ数は、１未満、５より大きく４０より小さい、１００より大きく２００より小さい、 10^4 程度、 10^6 程度である。

図１８から、障害物後方に流れの乱れが生じているのがわかる。この流れの乱れにより、円柱後方では速度分布が時間的に変化する（非定常な流れ）。つまり、この速度分布の時間的な変化が光学強度の時間的な変化に対応する。この時、上述したように障害物後方の流れの振る舞いは、レイノルズ数に依存する。但し、レイノルズ数における流速、代表長さは上述のモデルでは電子のドリフト速度、構造欠陥の大きさに相等し、時間に依存しない定数である。動粘性係数は半導体内における電子の輸送係数に対応する。これらの解釈は、半導体の PL 測定における発光強度（光学強度）の不安定性を示唆する。

4.4　点滅周期について

BPQW の点滅周期は数 Hz 程度で観測されている。本モデルでは、流体力学の無次元量であるストローハル数から、その周期を見積もることができる。しかし、ストローハル数は流れ場の構造に依存するため、その詳細は議論することができない。

4.5 電子の輸送係数

窒化物半導体における不安定点滅現象が本論文のモデルによって示されると仮定すると、半導体中の電子の輸送係数（動粘性係数）を考察することができる。これは、レイノルズ数の関係式にレイノルズ数、流速、代表長さを代入することで求めることができる。但し、レイノルズ数は、モデルと窒化物半導体における不安定点滅現象の対応から、 10^2 のオーダーとして考察する。

$$\nu = \frac{UL}{R_e} = \frac{10^6 \cdot 10^{-6}}{10^2} = 10^{-3} \quad (m^2/s)$$

この値の妥当性に関しては、議論することが難しいが、動粘性係数として多くの物質と比較できる値であることは理解できる。また、これらは流体力学における相似則であることから、自然界に存在する流体現象との対応を議論できる。

以上のことから、本モデルを仮定すると半導体発光試料において観測される光学強度は、その試料構造に深く依存する。

4.6　数値計算

前述したモデルを検証するため、電子流体を排他則に基づきランダムウォークを繰り返す多数の粒子集団と仮定し数値計算を行った。この際、格子気体法に関する文献（Lattice Gas Hydrodynamics [13] ）を参考にした。

数値計算による結果の時間間隔の頻度分布（第２章参照）を図１９に示した。

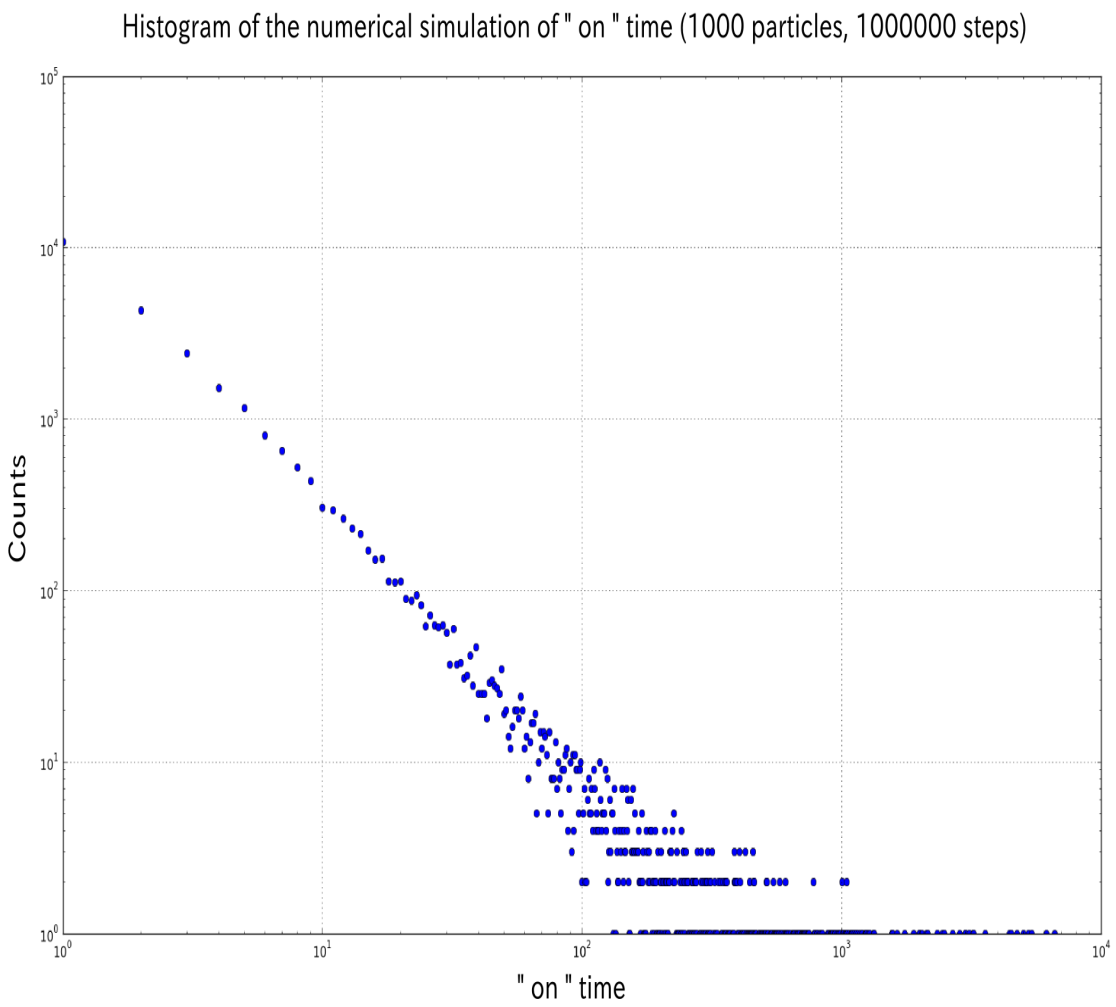


図１９　数値計算による時間間隔（on 状態）の頻度分布

図１９から、電子流体を仮定した数値計算結果がべき乗則に従うことがわかる。

第５章　総合考察

１）　相互相関関数による解析から、不安定点滅現象とその周囲（実空間）における相関を確認した。（図１３、１４）　このことから、不安定点滅現象と半導体内電子の輸送過程に注目し、その物理的モデルの提案を行った。このモデルの実験的検証が本研究の課題である。

２）　相互相関解析図では、不安定点滅信号とその周囲の相関係数をマッピングした。（図１３）　この相関係数のマッピングによる解析結果は、半導体試料の内部構造に依存すると考えられる。つまり、本研究における相互相関解析図と実際の試料の内部構造（特に欠陥など）の対応が明らかになることで、半導体発光デバイスの良質化や製造過程の効率化が期待できる。この点に関しては、半導体発光デバイスの詳細な構造や製造過程のパラメータなどのデータベースとの照合が必要である。

３）　本研究における BPQW、BPQD に依らず、未解明な現象を研究し解明することは、物性理解や応用研究への発展を期待することができる。

参考文献

[1] 中村修二　NIKKEI ELECTRONICS 1994.2.28 (no.602).

[2] R. Micheletto, M. Abiko, A. Kaneta, and Y. Kawakami, Appl. Phys. Lett. 88,061118 (2006).

[3] C. Feldmeier, University Regensburg, 2009.

[4] K. Oikawa, C. Feldmeier, U. Schwarz, Y. Kawakami and R. Micheletto, Optical Materials Express 158, Vol. 1, No. 2, June 2011.

[5] 我孫子正義　京都大学　平成１６年　修士論文

[6] F. Stefani, J. Hoogenboom, and E. Barkai, Physics Today, February 2009.

[7] M. Nirmal, B. O. Dabbousi, M. G. Bawendi, J. J. Macklin, J. K. Trautman, T. D. Harris, L. E. Brus, Nature 383, 802 (1996).

[8] Y.-K. Kuo, W.-W. Lin, and J. Lin, Japanese Journal of Applied Physics, vol. 40, no. Part 1, No. 5A, pp. 3157-3158, 2001.

[9] S. F. Chichibu, A. Uedono, T. Onuma, B. A. Haskell, A. Chakraborty, T. Koyama, P. T. Fini, S. Keller, S. P. Denbaars, J. S. Speck, U. K. Mishra, S. Nakamura, S. Yamaguchi, S. Kamiyama, H. Amano, I. Akasaki, J. Han and T. Sota, Nature Mat. 5, 810 816 (2006).

[10] S. F. Chichibu, A. Uedono, T. Onuma, T. Sota, B. A. Haskell, S. P. DenBaars, J. S. Speck, and S. Nakamura, APPLIED PHYSICS LETTERS 86, 021914 (2005).

[11] Richard J. Cook, and H. J. Kimble, PHYSICAL REVIEW LETTERS VOLUME 54, NUMBER 10 (1985).

[12] P.A.DAVIDSON, OXFORD, turbulence, AN INTRODUCTION FOR SCIENTISTS AND ENGINEERS.

[13] Jean-Pierre Rivet and Jean Pierre Boon, CAMBRIDGE UNIVERSITY PRESS, Lattice Gas Hydrodynamics, CAMBRIDGE NONLINEAR SCIENCE SERIES 11.

謝辞

本研究を行う上で、ご指導を賜った横浜市立大学准教授の Ruggero Micheletto 先生に感謝いたします。また、日々の研究室での活動を支えてくれた研究室の皆様に感謝します。

研究発表実績

論文

1. OPTICAL MATERIALS EXPRESS 158, Vol. 1, No. 2 (2011)
   “Real-time near-field evidence of optical blinking in the photoluminescence of InGaN by scanning near-field optical microscope”
   K. Oikawa, C. Feldmeier, U. Schwarz, Y. Kawakami and R. Micheletto .

学会

1. ナノオプティクス研究グループ第１９回研究討論会
   応用物理学会・日本光学会・ナノオプティクス研究グループ　２０１０年７月
   発表題目：近接場走査型顕微鏡による不安定点滅現象（窒化物半導体）の観測

2. Progress In Electromagnetics Research Symposium (PIERS)
   2011 Marrakesh
   March 20-23 Marrakesh (Oral session)
   Title：An instability phenomena in the optical emission of InGaN devices