

InGaN 単一量子井戸における点滅現象および 光メモリ効果のメカニズム

横浜市立大学 国際総合科学部 国際総合科学科
理学系 物質科学コース ミケレット研究室

180711 吉田瞬良

目次

1 章 序論	4
1.1 背景	4
1.2 目的	5
1.3 本論文の構成	5
2 章 先行研究	6
2.1 不安定点滅現象	6
2.2 光メモリ効果	13
3 章 試料及び実験装置	16
3.1 試料	16
3.2 実験装置	16
4 章 試料表面への液体付着の影響の解析	18
4.1 液体付着による点滅現象の定量的な評価	18
4.2 考察	23
5 章 点滅現象の現象論的な定式化	26
5.1 LBP の発光強度の時間変化に関する考察	26
5.2 LBP の現象論的な定式化	28
5.3 現象論的な定式化の妥当性の実験的な検証	30
5.4 考察	31
6 章 点滅現象の理論モデルの構築と解析	32
6.1 QCSE による定性的な観点からのモデル考察	32
6.2 モデルの構築	34
6.3 モデルの解析および現象論的な定式化との等価性	36
6.4 考察	37
7 章 点滅現象の理論モデルによる再定式化	39
7.1 現象論的な式と理論モデルの等価性に基づく再定式化	39
7.2 再定式化に基づくシミュレーション	43
7.3 点滅現象の局所性の証明	45
7.4 考察	46
8 章 InGaN 単一量子井戸の一般的な発光ダイナミクスの理論	49
8.1 試料表面一般で成り立つ理論への拡張	49
8.2 考察	50
9 章 結論	52
10 章 参考文献	53
11 章 謝辞	55

1 章 序論

1.1 背景

現在、発光ダイオード (Light Emitting Diode: LED) は我々の生活に欠かせないものとなっている。具体的には、部屋のライト、道路の信号機、娯楽施設のイルミネーション、通信など多くの用途で使われている [1]。このような LED の発展は、2014 年のノーベル物理学賞を受賞した赤崎勇博士、天野浩博士、中村修二博士らによる、高輝度・省電力な白色光源を可能にした青色 LED の発明の貢献が大きい。

この発明にはいくつかのブレークスルーが存在する。はじめに、GaN の結晶性の向上に成功したことである。GaN とは三族窒化物半導体の一種であり、六方晶ウルツ鉱構造を取るもので、青色 LED の材料としてよく知られるものである。GaN の結晶は融点が非常に高い (約 2500 °C) ことから、融液からのバルク単結晶を得ることは難しく、結晶作成のためには異種基板上でのエピタキシャル成長を使う必要があった。しかし、GaN と格子定数などの性質に近い異種基板が存在しなかったため、エピタキシャル成長もまた困難であった。そこで、H. Amano らは GaN の結晶成長の際に使うサファイア基板と GaN 薄膜との間に AlN のバッファ層を入れ、有機金属気層成長法 (Metalorganic Chemical Vapor Deposition: MOCVD) を用いることで、フラットな GaN 薄膜を得ることを達成した [2]。次に、p 型半導体の GaN 作成に成功したことである。GaN は元々 n 型半導体であるため、発光のために必要な p-n 接合には、p 型の GaN を作成することが必要不可欠であった。しかし、単純に価数の小さい元素 (Zn, Mg など) を GaN にドーピングするだけでは良い性質を持つ (低抵抗な) p 型半導体を作ることは困難であった。そうした背景の元、H. Amano らは低エネルギー電子線を GaN に照射することで低抵抗な p 型半導体になることを発見した [3]。しかし、この時点ではなぜ電子線を照射することで p 型半導体になるのかは不明であった。最後に、量産化技術の成功である。H. Amano らは p 型半導体の GaN を作成することには成功したものの、電子線を照射するという方法から、量産化や産業化には難しいという問題が存在した。当時、日亜化学工業に在籍していた S. Nakamura らは、Mg をドーピングした GaN を加圧した窒素中でアニーリングすることで低抵抗な p 型半導体を得られることを発見した [4]。さらに、GaN 結晶中に混入した水素原子がアクセプター (Mg, Zn など) と複合体を作り p 型半導体の性質を低下していることを示し、電子線照射や S. Nakamura らの方法はこの複合体を解離することで、性質を向上させていると説明した [5]。また、青色 LED の構造としては、1993 年に S. Nakamura のグループにより報告された、窒化物半導体である GaN および In と GaN の混晶である InGaN を GaN/InGaN/GaN のように積層するダブルヘテロ構造がよく知られている [6] [7]。

このように、青色 LED が発明されてから、我々の生活で広く使用されていることは誰もが知るとおりである。広く使われる一方で、現在でもその発光の物理には未解明なことが

多い。したがって、GaN の発光に関する研究は GaN の光物性を理解するというサイエンスとしての意義も大きいですが、産業的な利用への関わりも深いため応用的な意義もあり、発光についての物理的な理解を深めることは非常に重要である。

1.2 目的

本研究では、GaN/InGaN/GaN のダブルヘテロ構造を持つ InGaN 単一量子井戸 (InGaN SQW) における発光の未解明現象の解明および発光ダイナミクスの理論の構築を目指す。特に、R. Micheletto らによって発見された InGaN 単一量子井戸の不安定点滅現象 [8]、および C. Feldmeier らによって発見された光メモリ効果 [9]であり、これらの発光ダイナミクスを説明できる理論を構築することが目的である。特に本論文では、強度の時間変化と頻度分布に焦点を当てて進める方針を取る。

1.3 本論文の構成

第 2 章では点滅現象や光メモリ効果の先行研究の状況や課題を整理する。第 3 章では実験系の説明をする。第 4 章は InGaN 単一量子井戸表面に液体が付着した際の影響を定量的に評価する。第 5 章は点滅現象の実験結果を現象論的に考察し、定式化および解析を行う。第 6 章は第 5 章とは別のアプローチとして、仮説をもとに理論モデルを構築し、解析をすることで現象論的な式との対応や等価性を調べる。第 7 章は第 5 章、第 6 章で別々のアプローチから捉えた点滅現象を再定式化という形式で、一つにまとめる。第 8 章は第 7 章までの内容を踏まえ、光メモリ効果や一般の発光ダイナミクスについての理論を構築する。最後に、第 9 章では総合的な結論を示す。

2 章 先行研究

2.1 不安定点滅現象

InGaN SQW における不安定点滅現象は R. Micheletto らによって 2006 年に発見された [8]。不安定点滅現象とは、試料表面から観察される発光の強度が時間的に不安定に変化する現象のことであり、InGaN SQW における物理的なメカニズムが未解明な現象の一つである。

このような点滅現象は InGaN SQW だけではなく、量子ドットで観察されることも多く、CdSe ナノクリスタル [10], ZnCdSe 量子ドット [11], GaAs 量子ドット [12], InP 量子ドット [13] といった物質で確認されている。しかし、CdSe 量子ドットでの点滅現象は 1996 年に報告した Nirmal らによって、励起光により発生したキャリアがナノクリスタル表面においてトラップされ、それによるオージェ非輻射過程が生じることで起きるという説明がなされた [10]。また、量子ドットで生じる点滅現象では、点滅現象と同時にスペクトル拡散と呼ばれる現象が観測されることがある [14] [15]。スペクトル拡散とは、発光波長が時間的にジャンプする（変化する）現象で、点滅現象によって生じる強度変化とともに発光波長が変化する現象と言える。こうしたスペクトル拡散は量子ドット表面にトラップされたキャリアが発生させる局所電場が引き起こす量子閉じ込めシュタルク効果による可能性が示されている [16]。また、InGaN 系材料では、2001 年に InGaN 多重量子井戸でも点滅現象が報告されている [17]。

ここまで主に量子ドットでの点滅現象について説明してきたが、ここからは InGaN SQW について説明を行う。基本的な点滅現象の説明として、点滅現象は輝点や Intense Luminous Centers (ILCs) と呼ばれる局所的な明るい領域の一部で生じ [8]、そうした輝点や ILCs は In 組成比が大きい構造の部分で観察されることが分かっている [18] [19] [20] [21]。R. Micheletto らが使用していた試料構造とその発光中心波長は図 1 に示されている通りで、InGaN 層の In 比率を変更することで発光波長がベガード則にしたがって変化する。また、InGaN SQW における不安定点滅現象にはいくつかの興味深い現象が存在し、R. Micheletto らによって報告されている。一点目は、試料の発光中心波長や励起光の波長が異なると、点滅現象が見られないことである。こうした性質をもつ InGaN における点滅現象は、発光中心波長が 460 nm の青色発光の試料ではあまり観察されず、発光中心波長が 510 nm の緑色の試料でよく観察される。また、図 2 を見てわかるように、励起光が InGaN SQW の GaN 層まで励起できる 365nm の場合には点滅現象が生じるが、InGaN 層だけを励起できる 405 nm の場合には点滅現象は観察されない。このような違いの説明として、R. Micheletto らは GaN 層と InGaN 層間におけるキャリアのやりとりの可能性を述べているが、明確なメカニズムの説明は現在なされていない。

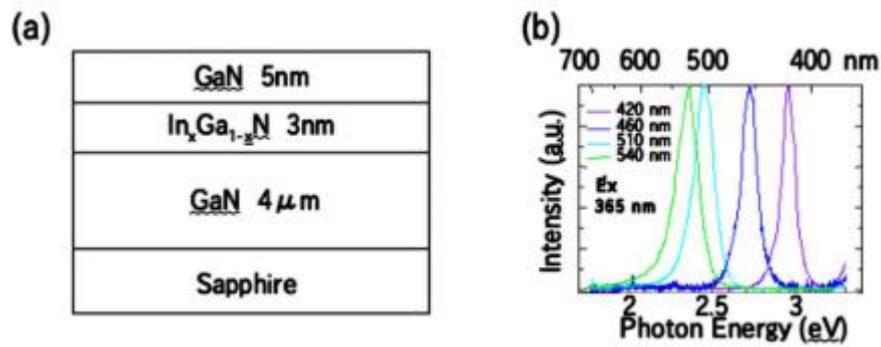


図1 InGaN SQW の試料構造および In 比率による発光波長分布の比較。(a)は InGaN SQW の試料構造であり、井戸内部の InGaN 層において In 比率を変えると (b) のように様々な発光中心波長を持つ。[22]

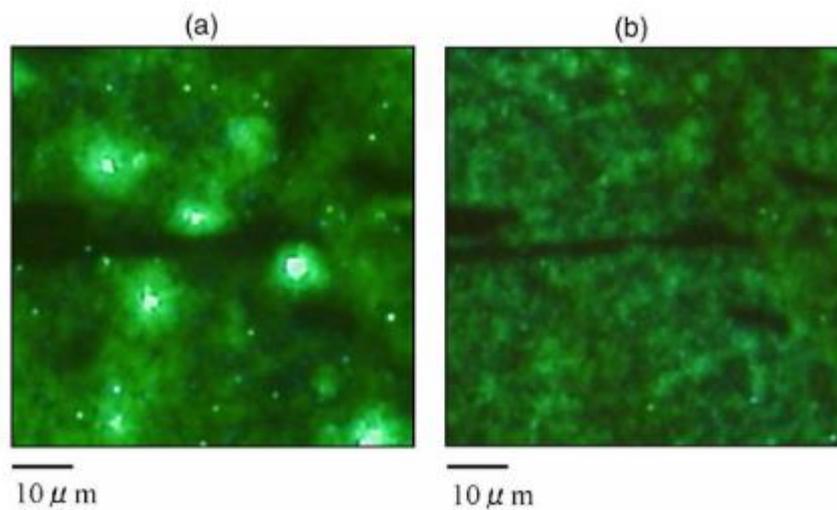


図2 (a)励起光 365nm と (b)励起光 405 nm の試料表面の比較。励起光が 365nm の場合にだけ ILCs が観察できる。[8]

二点目は InGaN における点滅現象は、図 3 のような二値的な強度変化を示す点滅と多値的な強度変化を示す点滅の二種類あることがあげられる。非常に興味深い現象であるが、このような二値的か多値的かの振り舞いについての説明は現状ではなされていない。また、こうした点滅の強度が低いときと高いときの、発光波長を調べたところ、低強度の場合には発光波長が長く、高強度の場合には発光波長が短くなることが示された。すなわち、InGaN SQW の不安定点滅現象においても、スペクトル拡散が生じているということである。このような点滅の高強度状態をオン状態、低強度状態をオフ状態としたときの概略図および発光波長の比較が図 4 である。また、オン状態やオフ状態の継続時間に着目し、継続時間の異なるオン状態とオフ状態ごとに、それらの継続時間のオン状態やオフ状態が発生する確率を示したものが図 5 であり、片対数グラフで確率と状態の継続時間の関係が示されている。この結果から、R. Micheletto らは点滅現象を説明するために、量子ジャンプモデル [23] を使用した。量子ジャンプモデルは、量子ドットでの点滅現象が発見される前に光の明滅を一般的な形であらわそうとしたモデルであるが、InGaN の点滅現象がこのモデルにしたがった現象であるならば、図 5 の対数グラフにおいて実験結果がグラフ内の直線的な点線に乗るため、このモデルでの説明は否定された [8]。また、量子ドットでのモデルとして提案されていたオージェイオン化モデル [10] [24] も、確率密度は理論的には量子ジャンプモデルと等価（対数グラフで直線）なため、InGaN の点滅現象を説明することは難しいとされている。

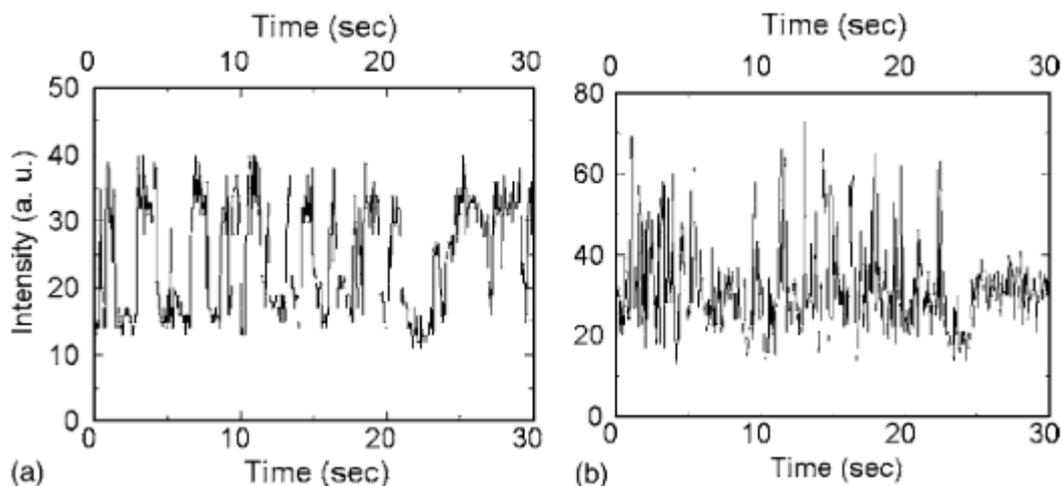


図 3 二値的な点滅(a)と多値的な点滅(b)の比較。(a)において点滅は二値的な点滅、(b)では多値的（カオス的）な点滅を示す。 [8]

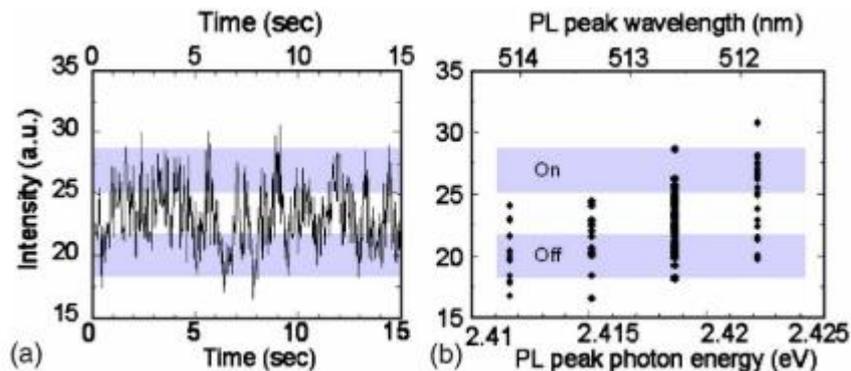


図4 強度の時間変化におけるオン状態とオフ状態の比較 (a)と発光波長とオン状態とオフ状態との関係 (b)。オン状態の場合には発光波長が短く（エネルギーが大きく）、オフ状態の場合には発光波長が長い（エネルギーが小さい）。 [8]

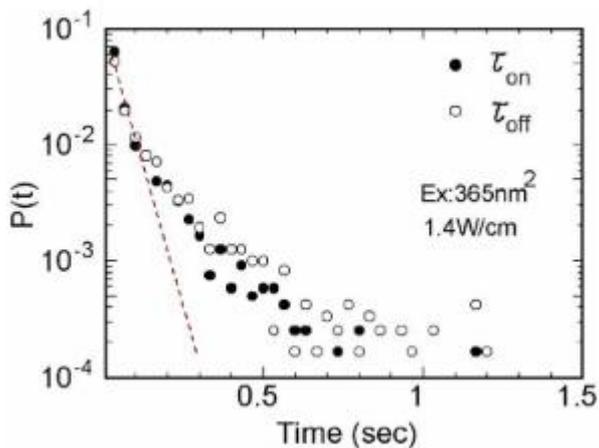


図5 オン状態とオフ状態の継続時間およびその状態の発生確率。点線は量子ジャンプモデルの確率密度。オン・オフのどちらでも継続時間が長くなるほど発生確率も低下することが理解できる。両対数グラフで直線になるような分布を示す。 [8]

このように様々なモデルが提案されているが、InGaNの点滅現象を説明するモデルとして最も有力なものが、前述の量子閉じ込めシュタルク効果（QCSE）モデルである [25] [26] [27]。これは、図6のようにInGaN SQWのトラップ準位にキャリアが入ることで量子閉じ込めシュタルク効果生じると考えるもので、スペクトル拡散といった現象の説明は

可能である。一方、点滅現象の強度分布や時間変化といったことを現在まで説明できない点の問題であり、現在ではこのモデルを使って InGaN の点滅現象を定性的に扱うことができるにとどまっている。

最近の点滅現象における展開では、T. Tsutsumi らにより点滅現象が試料表面への吸着物質によるものと推測される結果が、真空中でのフォトルミネッセンス測定により明らかにされた (図 7) [28]。それに続く表面への付着物質の影響の研究として、本研究室卒業生の藤井により、試料表面へ液体が付着したときに輝点および点滅点が増加することが示された [29]。この現象は、通常では点滅が確認されない 460 nm サンプルにおいても点滅点が増加する。また、藤井は点滅現象により観察される点滅点は、2つの局所的な点滅点により構成されることを標準偏差マップにより確かめ (図 8)、局所的な点滅点の強度を基準として試料全体との相関を調べることにより、局所的な点滅点は互いに負の相関を持って変化することも同時に明らかにした (図 9)。さらに、局所的な点滅点は空間的に離れた場所とでも相関を持つ (図 10)。

本論文では、藤井の研究以前の点滅現象における点滅点を Blinking Point (BP) とし、藤井により発見された局所的な点滅点を Localized Blinking Point (LBP) とする。基本的に、本論文において、BP は二つの LBP を平均して観察したものを意味する。

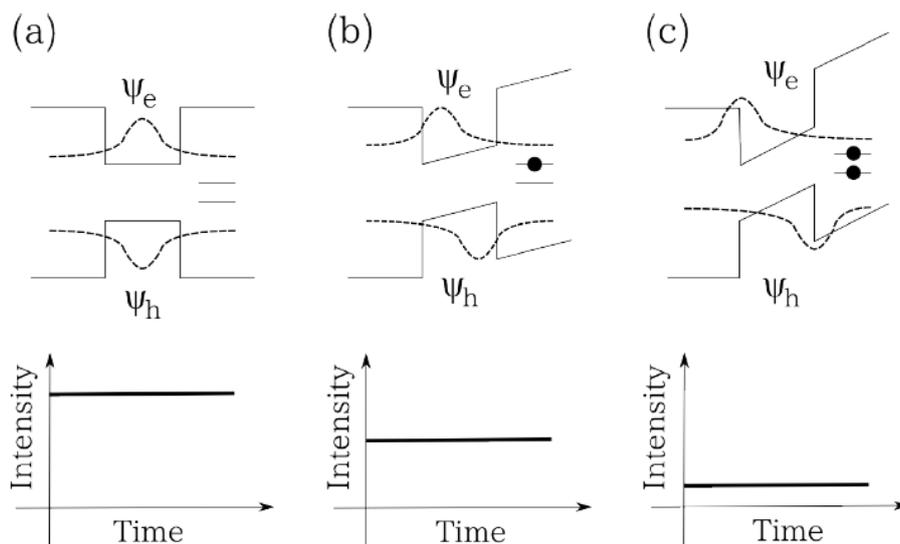


図 6 InGaN SQW における量子閉じ込めシュタルク効果の概略図。トラップにキャリアが入っていない (a) の状態から、トラップにキャリアが入ることによって (b) (c) のように強度が変化する。同時にバンドギャップが変化してスペクトル拡散が生じる。 [29]

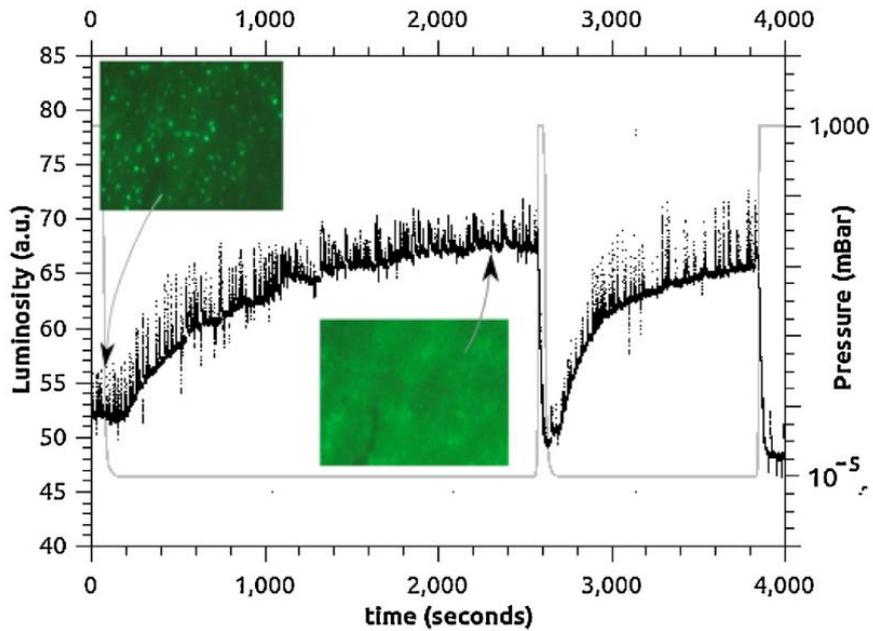


図 7 真空中でのフォトルミネッセンス測定による強度変化。真空中（低圧力下）では均一な発光を示し、点滅や輝点は観察されない。また、光メモリ効果のような長時間での発光強度の増加が見られる。[28]

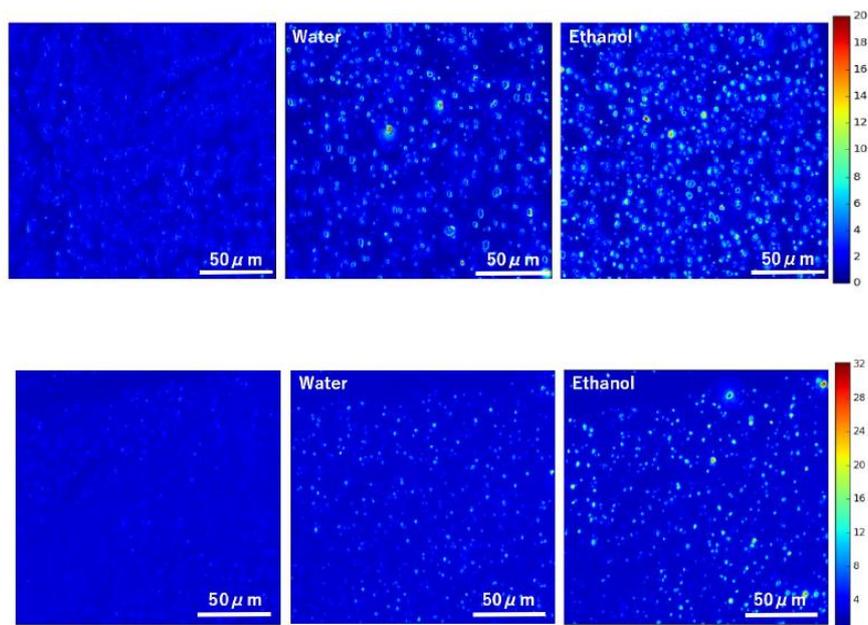


図 8 液体付着による標準偏差マップの比較。液体付着によって標準偏差の高い点が増加していることが確認できる。[29]

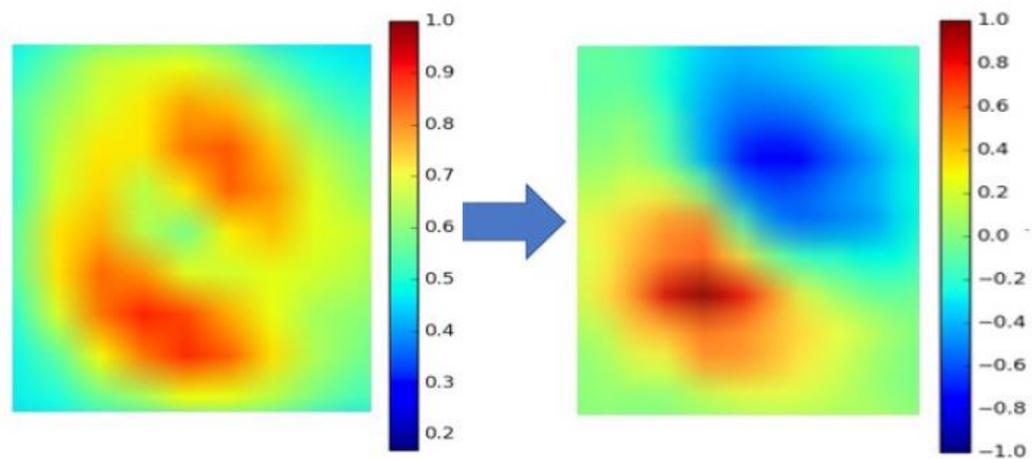


図9 LBPの標準偏差マップ(左)と相関マップ(右)。BPが二つのLBPにより構成され、負の相関を持つことが示されている。[29]

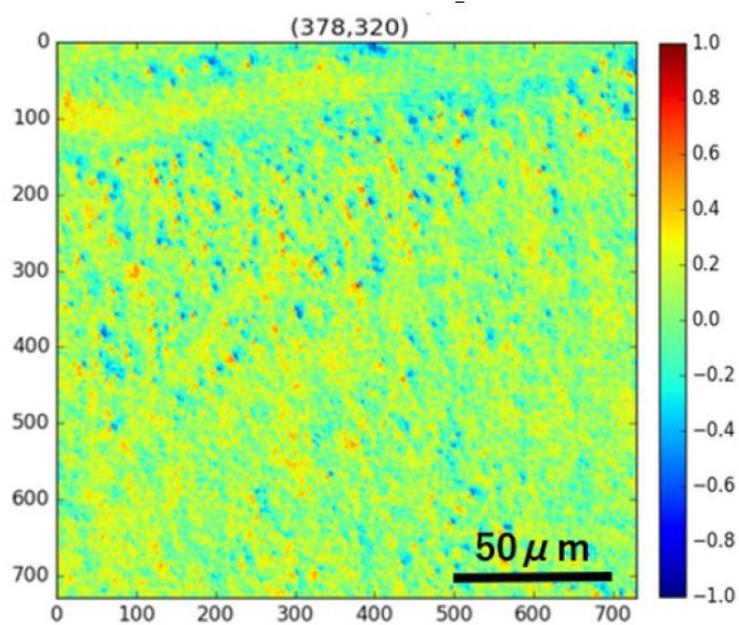


図10 試料表面の相関マップ。空間的に離れたLBPでも相関を持つことが示されている。[29]

2.2 光メモリ効果

InGaN 単一量子井戸における光メモリ効果は C. Feldmeier らによって 2009 年に発見された [9]。光メモリ効果とは試料表面全体における発光強度の増強や、励起光遮断前後での発光強度の継続性を示す現象であり、InGaN 単一量子井戸における発光ダイナミクスの未解明な現象の一つである。具体的な未解明点としては、点滅現象と同じく、定量的に光メモリ効果を示すことのできるモデル等が存在しないことである。

C. Feldmeier らによって発見された光メモリ効果は、光励起過程の違いによる発光の立ち上がりにおける時定数の変化 (図 11) や測定後 40 秒程度での発光強度の上昇 (図 12)、を示す。光励起過程の記憶を持つことから、トラップ準位へのキャリアのトラップ・デトラップが関係していることが示唆されている [9]。また、励起光の波長が 365 nm と 405 nm では発光強度の増大の振る舞いに変化する。365 nm の場合は発光強度が増大するが、405 nm の場合には発光強度は減少していた。特に、365 nm の励起光の場合には、この論文の試料の発光メインピークである 460 nm の発光は増加しているが、イエローバンドと呼ばれるメインピークよりも低エネルギー (長波長) な発光はすぐに飽和し顕著な増加を示さないことが確認された (図 13)。

C. Feldmeier らに続く研究として、点滅現象の先行研究でも述べたが、T. Tsutsumi らは真空中でのフォトルミネッセンス測定により点滅現象や光メモリ効果が試料表面の不純物に関係していると推測した [28]。具体的には、真空中での測定により、点滅現象の影響を排除しても、全体強度が長時間で増加することを示した (図 7)。この結果は、C. Feldmeier らが発見当初によって発見した発光強度の増強現象とは時間スケールが異なる。しかし、T. Tsutsumi らの実験においても、365 nm の場合にはこのような長時間スケールでの強度増加が観察されるが、405 nm では増加が見られない点が、C. Feldmeier らの研究結果と類似している。また、T. Tsutsumi はこのような増強現象を説明するために、表面への分子吸着と発光強度の関係に関するモデルを作成し、振る舞いを再現した。

近年、T. Tsutsumi らの研究に引き続き、B. B. Wang らが InGaN 薄膜における発光の増強現象を報告した [30]。この研究の試料は T. Tsutsumi らと異なるが、フォトルミネッセンス測定による長時間での発光の増加と降下が確認された。彼らはこの現象に対して、キャリアがトラップ準位にトラップされ、それにより量子閉じ込めシュタルク効果がピエゾ電界を弱める方向に対して働くことで発光強度が増加し、トラップキャリアの増加によってトラップへのキャリアの流入をを阻害し発光強度が減少するというような説明をした (図 14)。つまり、トラップ準位にキャリアがトラップされるごとに発光強度が増加するという考え方である。しかし、この説明は非常に定性的であり、数式的に説明はなされていない。

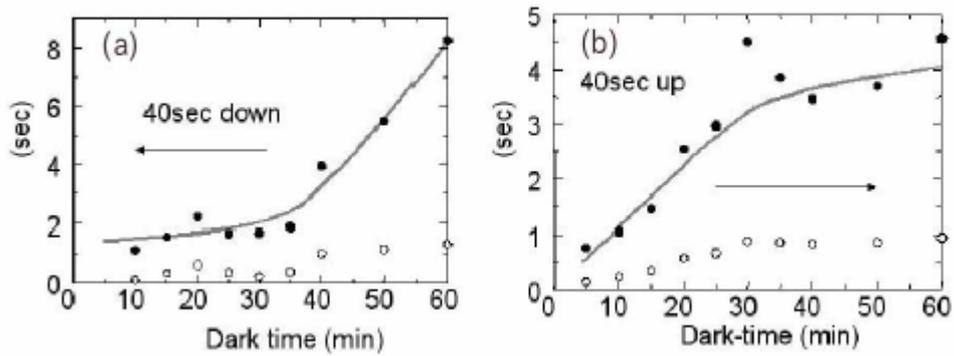


図 11 光励起過程による時定数の変化。1 時間の間光遮断をしたのち励起時間を 40 秒とし、その後の光遮断時間を 60 分から 5 分刻みで減少させた場合(b)と 5 分から 5 分刻みで増加させた場合(a)で比較している。例として、(a)の場合には 1 時間の光遮断→40 秒励起→60 分遮断→40 秒励起→50 分遮断→…と測定をしている。[9]

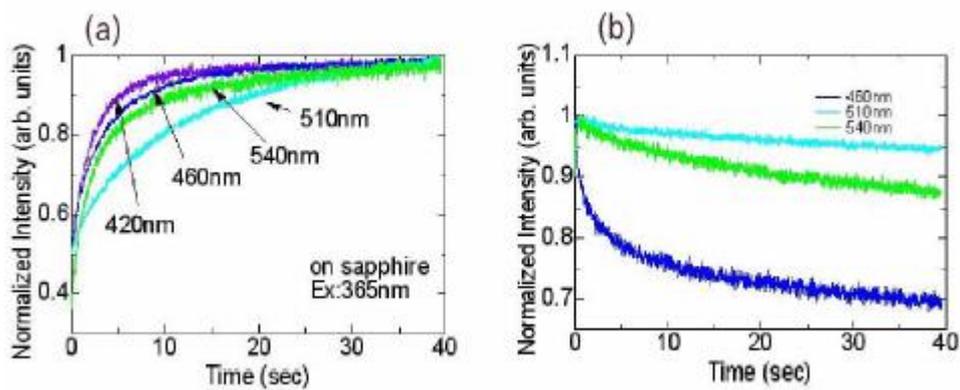


図 12 発光中心波長と励起光の異なる場合の発光強度変化の比較。励起光が 365 nm の場合(a)と 405 nm の場合(b)で、異なる発光中心波長の試料を比較している。これより、365 nm のときには発光強度の増強が生じるが、405 nm のときには減少する。[9]

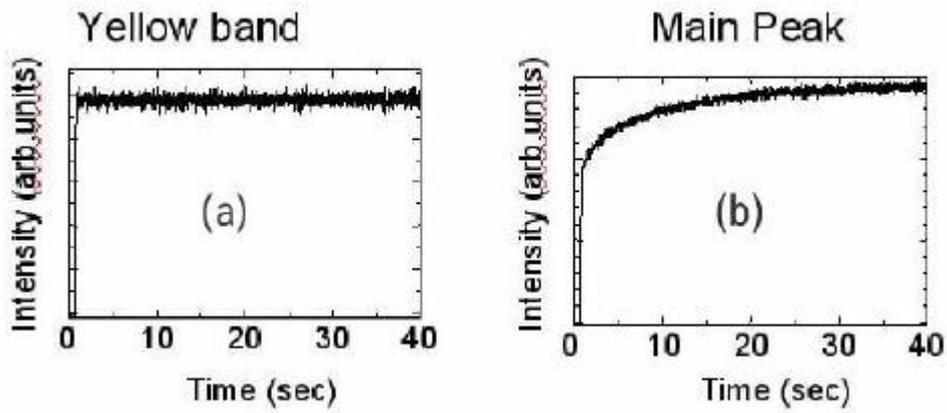


図 13 異なる発光波長帯の発光強度の立ち上がりの比較。イエローバンドは測定開始後すぐに強度が飽和し時間的な増加を示さないが(a)、メインピーク帯は強度が増加する(b)。
[9]

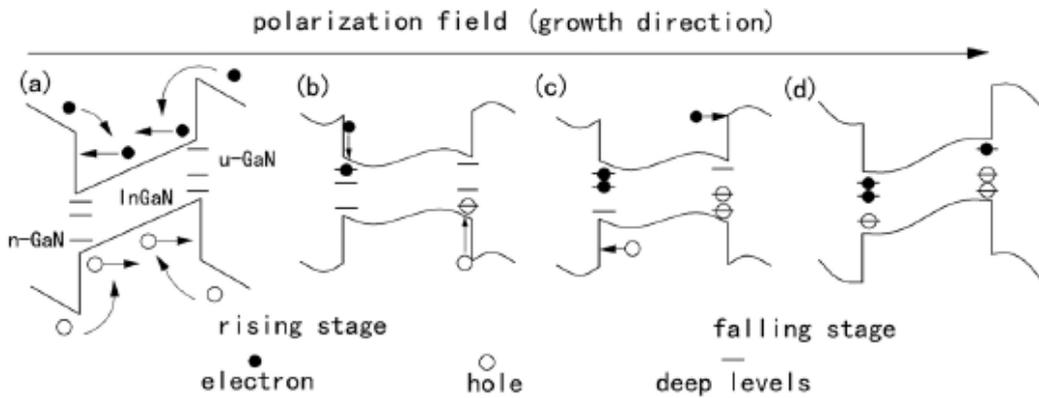


図 14 InGaN 薄膜における量子閉じ込めシュタルク効果による発光強度の増加と現象の説明。キャリアがトラップされることで、 piezoelectric 電界を弱め、発光再結合率が高くなり、発光強度が増加する。 [30]

3 章 試料及び実験装置

3.1 試料

本研究で実験に用いた試料は GaN/InGaN/GaN 単一量子井戸構造をした図 1 と同様な試料であり、中心発光波長が 460 nm および 510nm のものについて調べた。発光波長の違いは InGaN 層の In 比率の違いによるものである。

3.2 実験装置

本研究では、図 15 の実験系により得られた時間分解フォトルミネッセンス測定データ [29] を使用し点滅現象を解析した。実験データは藤井祐輔の研究により得られたものであるため、以下藤井祐輔の修士論文を参考にした [29]。以下の記述より詳細な実験系やデータについての情報は藤井祐輔の修士論文に詳しい。

実験装置の構成としては、選択励起光顕微鏡(BX51WI-33FL-YS2, Olympus)により、試料に励起光として水銀ランプ(USH-1000, Olympus)を照射し、試料からの発光を CCD カメラ(HDR-SR1, SONY)で 30 fps のビデオデータとして取り込んだものをプログラミング言語 Python で調べた。励起光の波長は InGaN 層だけでなく GaN 層まで励起する 365 nm の励起光を使用し、対物レンズの倍率は 50 倍、CCD カメラの倍率は 10 倍に設定した。また、強度の時間変化としてビデオデータから各画素における RGB の各チャンネルの画素値の平均値を以下の式により計算し、

$$I(t) = \frac{I_R(t) + I_G(t) + I_B(t)}{3}$$

その強度の時間変化から点滅現象を観察した。また、1 画素だけでない場合には、上の式の強度 $I_R(t), I_G(t), I_B(t)$ に位置の変数を加えて、以下のように空間的に平均を取ればよい。

$$I(t) = \sum_{x=x_1}^{x_2} \sum_{y=y_1}^{y_2} \frac{I_R(x, y, t) + I_G(x, y, t) + I_B(x, y, t)}{3(x_2 - x_1)(y_2 - y_1)}$$

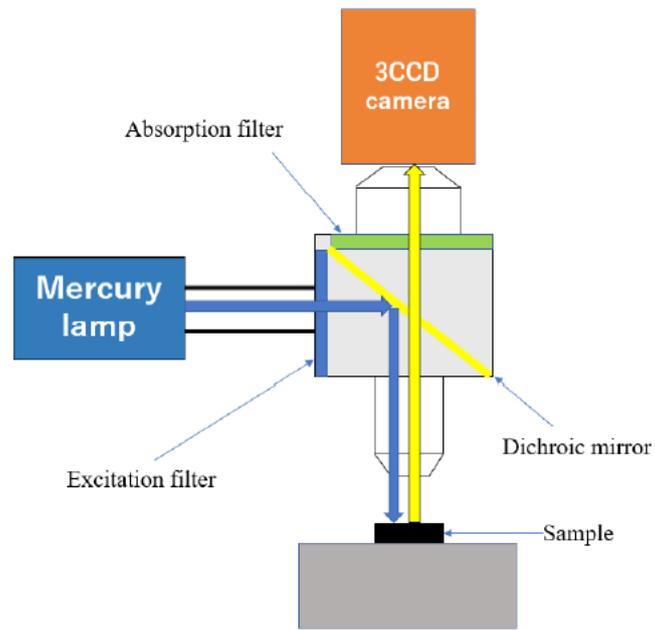


図 15 実験系の概略図。[29]

4 章 試料表面への液体付着の影響の解析

4.1 液体付着による点滅現象の定量的な評価

藤井祐輔修士論文の研究では液体付着時の InGaN SQW 表面の点滅現象の増加を標準偏差マップにより定量的に示した [29]。しかし、マップ自体は定量的ではあるものの実際には視覚的に示しているだけで、具体的に水やエタノールが付着した場合にどちらの液体がどの程度点滅が激しくなっているかを定量的に示すことはできていない。また、液体付着前と付着後の局所的・大域的な強度の比較といったこともなされていない。そこで、この章ではこれらのことに焦点を当てて解析し、それによる新たな知見から点滅現象について考察する。

はじめに、新たな解析の前に、発光中心波長が異なる試料表面が大气、水、エタノールにそれぞれ接しているときの状態は異なることを確かめた (図 16)。当然のことながら、藤井による研究と同様に、液体の付着による輝点と点滅の増加が示される。一方、藤井の研究では直接言及はされていなかったが、輝点の増加とともに暗くなる部分も増加していることも確認できる。

また、藤井の研究と同様にして、これらの試料について標準偏差マップを作成し調べた (図 17)。図 17 から水やエタノールをかけた場合の方が、視覚的には標準偏差の大きな領域 (点滅点) が増加しているように見える。ここまでが主に藤井によって述べられていたものである。

筆者は以上のような視覚的な議論を定量的に示すために標準偏差マップにおける、標準偏差マップの値をヒストグラムに変えて、460 nm サンプルと 510 nm サンプルのそれぞれで付着物質ごとに比較した (図 18)。図中の折れ線は累積相対度数であり、これが 1 に近づくのが遅いほど、標準偏差の大きな領域が増加していると示すことができる。このヒストグラムから、水やエタノールが表面に存在することで、標準偏差の大きな領域 (点滅点) が増加していることが確認できる。特に、藤井が先行研究で述べているエタノールの点滅が最も激しく見えたという主張が、図 18 のどちらのサンプルにおいてもエタノールの場合に、累積相対度数が一番遅く 1 に近づくということから説明できる。

次に、液体付着前後の局所的な発光強度の変化と大域的な発光強度の変化について調べる。局所的な発光強度の変化について調べる目的は、液体付着後に輝点や点滅点になるような場所の強度が液体付着前と比較してどう変化しているのかを明らかにするためである。また、液体付着前後での大域的な発光強度の変化を比較することは、局所的に表れる輝点や暗い領域が大域的にはどの程度影響を及ぼすのか調べる目的である。ここで、大域的な発光強度とは平均の全体強度を意味する。局所的な発光強度の変化は図 17 の図中の矢印 A と B の局所的なポイントについて、それぞれのサンプルで付着物質ごとに比較した (図 19)。その結果、試料の同じ位置にもかかわらず、液体付着後には点滅が生じる以外にも

強度の上昇が起きていた。ただし、青色発光試料で水の場合だけは強度が減少していた。大域的な発光強度は点滅しないことが知られているので、その強度を調べたところ、液体付着前後での発光強度の変化はほとんど変化していなかった（表1）。

表1 付着物質とサンプルの違いによる大域的な平均発光強度比較

	Air	Water	Ethanol
460 nm	111	98.8	101
510 nm	68.0	81.5	68.0

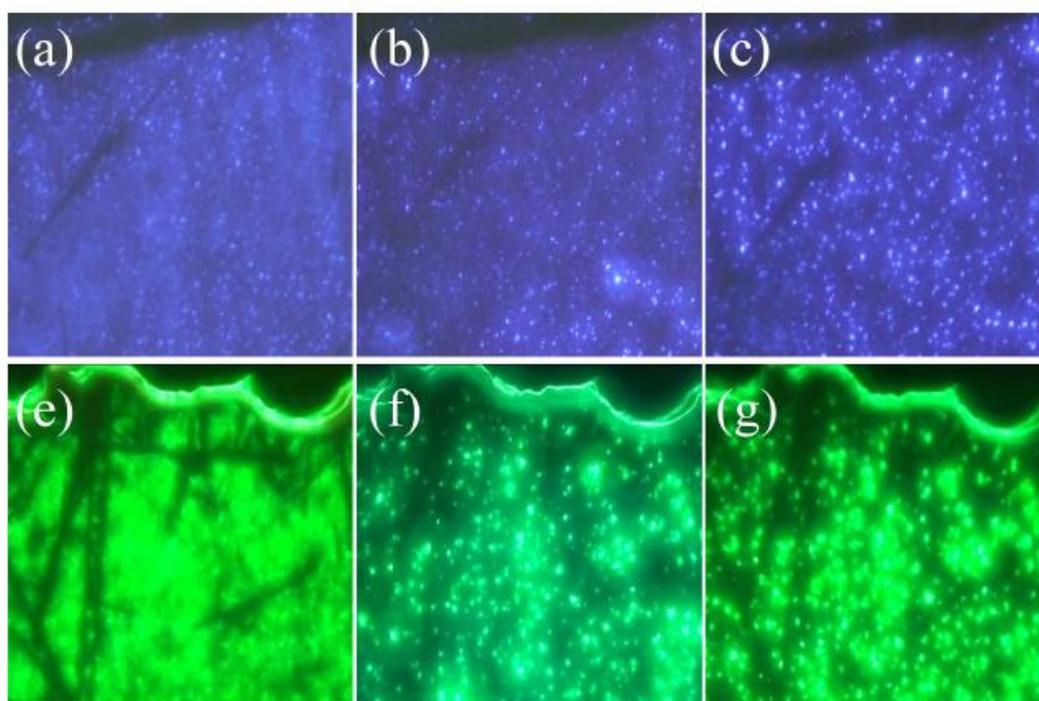


図16 表面に存在する物質と発光波長の異なる試料による表面状態の比較。上段は青色発光試料であり、下段は緑色発光試料。それぞれ左から大気、水、エタノールに接している。表面に水や液体が付着しているときには、大気中と比較して輝点と暗くなる部分が増加していることが確認できる。

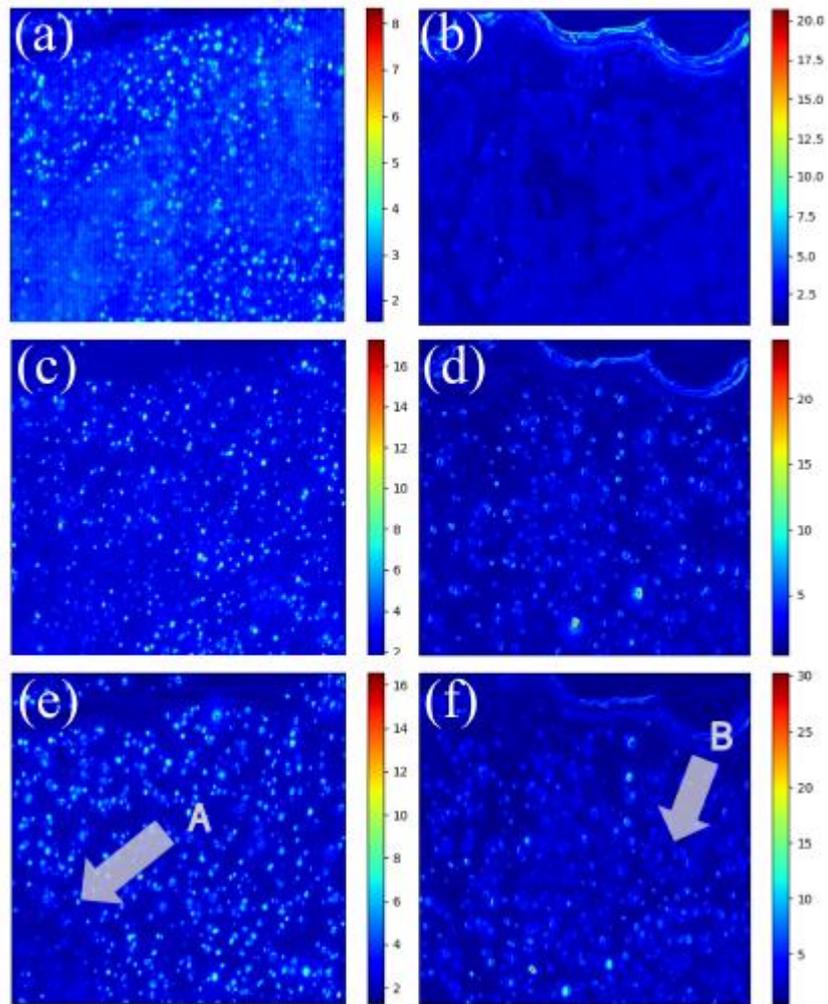


図 17 図 16 の試料における標準偏差マップ。左列は青色発光試料、右列は緑色発光試料であり、それぞれ上から順に大気、水、エタノールに接している。

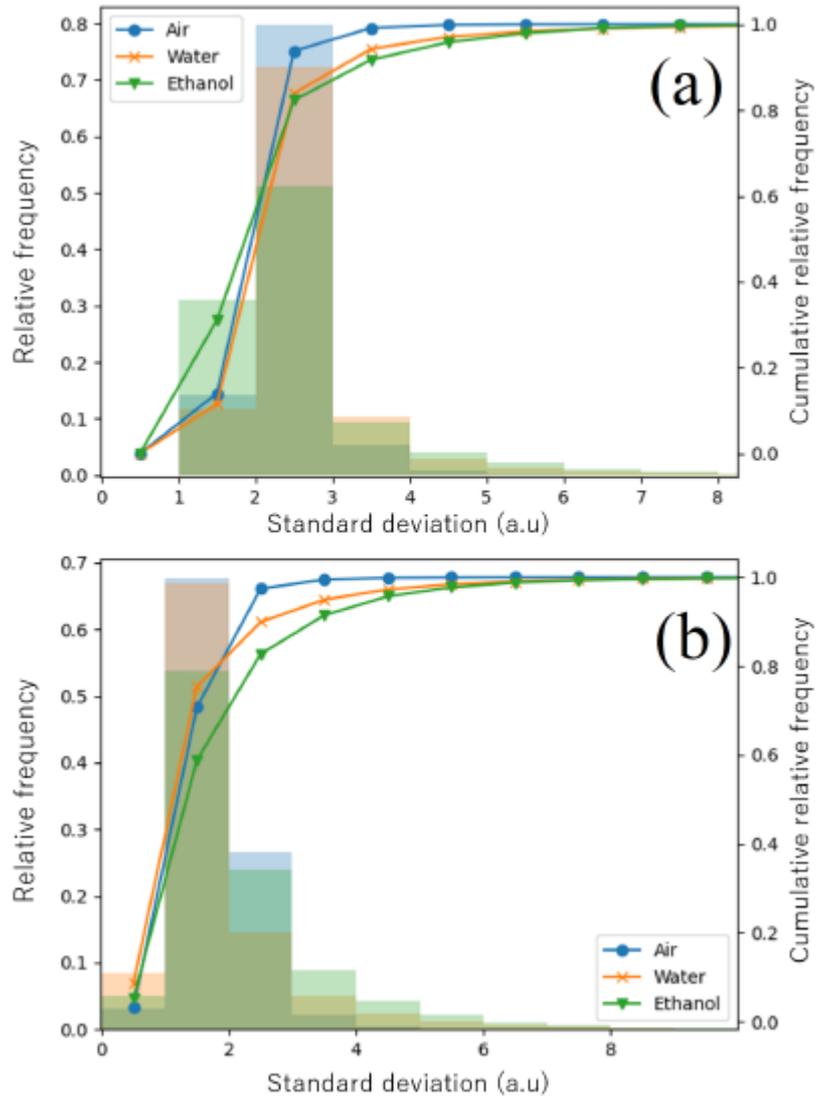


図18 図17の標準偏差マップのヒストグラム。上は460 nm サンプル、下は510 nm サンプルである。累積相対度数がほとんど1に近づいたところまでを示している。累積相対度数の折れ線が1に近づくのが遅いほど、標準偏差の大きな領域が多いため、液体を付着させた場合にそうした領域が増加していることが理解できる。

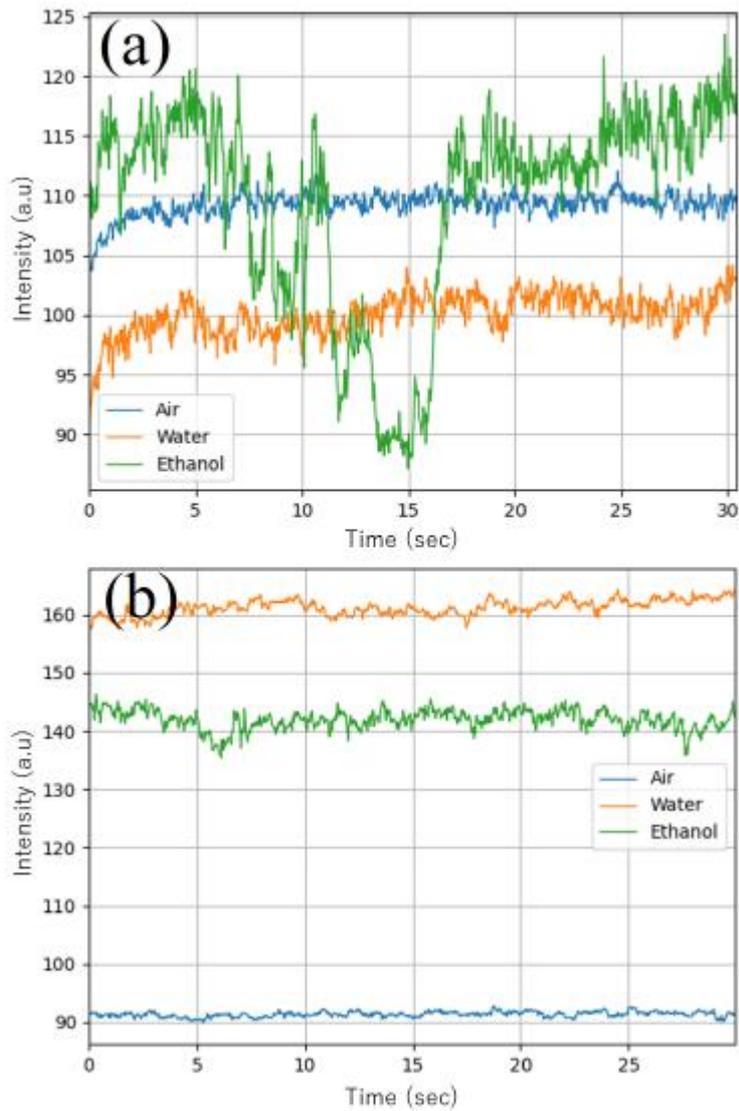


図 19 付着物質による局所的な発光強度の変化。図 17 の A で示された青色発光試料(a)と B で示された緑色発光試料(b)についての強度。液体付着によって、点滅が激しくなるだけでなく、強度の上昇が確認できる。

4.2 考察

はじめに、輝点および点滅点と暗い領域の増加について考察する。改めてこれまでの先行研究をまとめると、輝点は In が局在化した領域であり、そこへキャリアが集まることで強い発光を示している [18] [19] [20] [21]。さらに、輝点のうちのいくつかが点滅点であり、当然のことながら点滅点も In 局在化した場所であることが知られている [8] [22]。図 17 から輝点と暗い領域の増加、図 18 から液体付着による点滅点の増加、図 19 から液体付着による点滅の激しさとともに局所的な発光強度の上昇などが示されている。また、表 1 の結果からは、液体付着による全体強度への影響は、局所的な影響と比較して、少ないことも示されている。

先行研究を参考にして、結果を解釈すると、液体の付着による局所的な発光強度の上昇は、その領域へキャリアが集まっていることを示している。つまり、キャリアが集まることにより、発光強度の上昇が見られる。さらに、そのような領域において大気中で点滅しない領域や青色発光サンプルでも点滅が引き起こされる。このとき、内部の In 局在化といった構造に変化が生じていないにもかかわらず点滅が生じるということは、点滅現象には In 濃度といった構造的な状態だけでなく、その領域周辺にキャリアが多く集まる必要があると推測される。また、このような考察に基づくと、暗い領域の増加は自然に説明される。なぜならば、輝点になるような領域にキャリアが集まるということは、他の領域のキャリアは減少するため発光強度は弱くなるという様に考えなければつじつまが合わないからである。さらに、局所的な強度の変化と比較して、全体強度が付着物質の違いに対して変化しないことも、以上の考察から説明できる。つまり、局所的にはキャリアが移動していても、大域的にはキャリアの数はおよそ保存されているという様に解釈できるからである。

また、特に青色発光試料の液体付着前後の試料表面状態や輝点の増加は、T. Tsutsumi らの先行研究における、緑色発光試料を真空状態と大気中でそれぞれ観察した時との対応がある。どちらも、表面がより正常な場合の方が理想的な発光を示し、表面への吸着物質が多い方が輝点や点滅現象といった現象が生じる。したがって、これらの対応から液体付着した場合の点滅現象も、従来の緑色発光試料で見られてきた点滅現象も一貫して同様の規則に基づく現象であると考えられる。先行研究でも指摘されてきたとおり、点滅現象は試料の表面状態が深くかかわった現象であることが推測される。しかし、表面状態と直接に関係があるというよりは、表面状態が井戸内部のキャリア移動に関するポテンシャル面などに影響を与え、輝点や点滅現象といったことを引き起こす一因となっているとする方が自然であると筆者は主張する。そうでなければ、励起光といった条件を考慮することなく、大気中での青色発光試料では点滅が生じないにもかかわらず、緑色発光試料では生じるといったことが、表面への吸着物質の数といった情報のみで扱うことができるということになってしまうためである。

次に、ヒストグラムの形状について考察する。ヒストグラムの形状はサンプルや付着物

質の違いに対しても、ほとんど同様なポアソン分布のような形である。このような形にはどのような意味があるのだろうか。まず、上でも振り返ったように、点滅点は In 比率の大きな領域である。そういった領域において点滅現象は観察される。逆に言えば、In 比率の少ない領域は点滅点ではないことを意味するため、当然のことながら標準偏差の値も小さくなる。この考察を今回の研究で得られたヒストグラムへ適用すると、横軸の標準偏差は In 比率に対応するはずである。つまり、ある位置の標準偏差の大小はそのまま In 比率の大小に対応し、今回得られたヒストグラムの形状は各領域の In 比率がどのような分布で試料中に存在しているかということを示すものとなる。そして、In 比率の分布はポアソン分布にしたがって分布しているという結論を与える。

このような解釈から、改めて点滅現象について考察を進める。上述の通り、点滅点は In 比率の高い位置である。しかし、今回筆者が調べているものはあくまでも特定の画素であり、実際にはより分解能を高くしないと見えない領域や逆に低分解能で見た領域での振る舞いを考える必要がある。低分解能の場合には今までもやってきたように大域的な強度について議論すればよいが、高分解能については発光を観察できる限界が存在するため、平易な考察から開始して議論を進めていく。

まず、原子一個レベルで観察した時には、そこには In 濃度といった概念はなく、In が存在するか存在しないのかの二択である。したがって、今回の観察している数画素程度のスケールにおいては、そういった原子レベルの二択の平均として In 濃度が大きい領域であり点滅しているということである。そして、そういったスケールでの In 比率の分布を今回のヒストグラムは表している。より大きなスケールで観察した場合について考えると、全体強度は点滅していないことが知られている。つまり、スケールが大きくなると点滅は生じない。

それでは、全体強度の標準偏差というのは先ほどの考察からするとどういう意味を持つのか。原子一個スケールから数画素程度のスケールを議論する際のアナロジーから考えれば、数画素から全体強度スケールへの議論は In 濃度をより広い範囲で平均化したときの In 比率と、全体強度の標準偏差が対応を持つ。すなわち、より理想的で均一な In 分布をもつ量子井戸を観察していることになり、そういった In 濃度が理想的な量子井戸では点滅が生じないことも同時に示される。この議論から、重要な示唆が得られる。それは、スケールを変えて観察した量子井戸は、そのスケールに応じた発光特性を持つものとして扱っても問題ないということである。すなわち、点滅点は特定のスケールでしか現れず、大きなスケールで量子井戸を観察するときには、そのスケールに応じた新たな量子井戸として議論をしても問題ない。

最後に、応用上の話として、点滅点は応用上悪影響とされてきたが、局所的には強度の向上をもたらす場合があり、その範囲において強度の観点からは点滅による不安定性よりもメリットの方が大きいと考えることができる。しかし、大域的には暗い領域が生じることなどから、均一な発光でないという点では悪影響をもっている。しかし、より大域的な

平均的な強度としては、付着物質の影響も少なく、考察から理想的な量子井戸を観察していることになり発光も安定していることなどから、特に影響があるとは言えないのではないか。

5 章 点滅現象の現象論的な定式化

5.1 LBP の発光強度の時間変化に関する考察

この章では点滅現象の現象論的な定式化を目的とする。そのために、改めて藤井の研究以前の点滅現象における点滅点を Blinking Point (BP) とし、藤井により発見された局所的な点滅点を Localized Blinking Point (LBP) とすることを注意する。手順としては、LBP の発光強度変化をはじめに定式化し、その後 LBP より大きなスケールで観察される BP の発光強度変化を導出するという道筋をたどる。あくまでも、この章では実験的に観察される点滅現象の現象論的な記述についてのみを考えて、試料の内部で何が起きているのかといった根本的なメカニズムには一切触れない。

これまでの研究は先行研究の章で述べたとおりであるが、特にこの章にとって重要なものは藤井によって発見された、負の相関を持って強度が変化する LBP のペアである (図 20)。

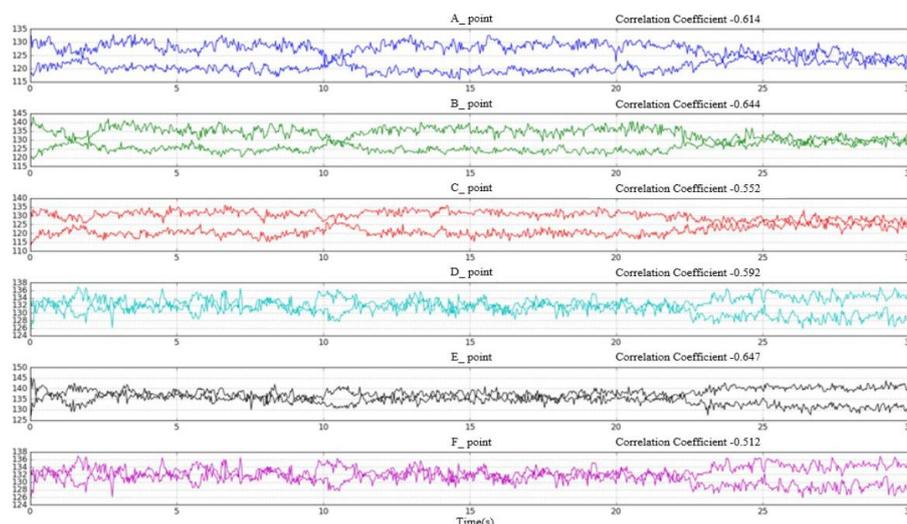


図 20 負の相関を持って強度が変化する LBP。エタノールを付着させた青色発光サンプルのものであり、A-F は全て空間的に異なる LBP のペアを表している。 [29]

この図のように LBP は負の相関を持って動いていて、空間的に異なる点でも同様な傾向を持っているが、その複雑な変化から数式的に表すことは難しいとされていた。この図から、筆者はこれらの LBP ペアの発光強度は切片が異なるのみで、基本的な概形は同じものではないかと気づいた。それを検証するためにひとつの LBP ペアの上下を入れ替えることを行

った (図 21)。

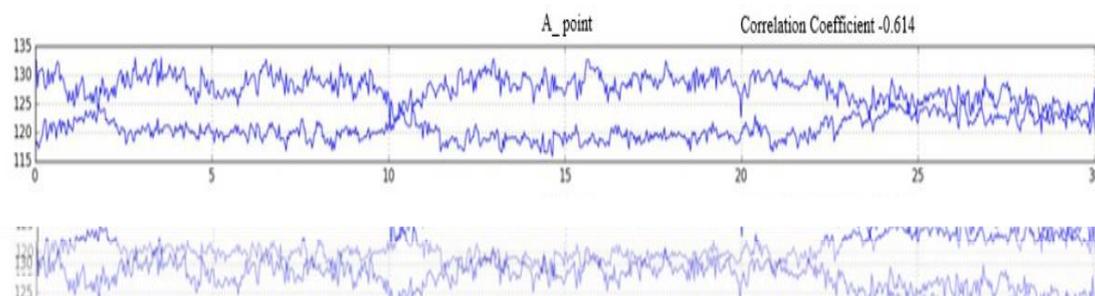


図 21 LBP ペアの上下位置を変化させたときとの比較。上は図 20 の A の発光強度であり、下はそれの上下位置を単純に変化したもの。下の図が図 20 の D や E と同様な形になる。

こうすることで、筆者の気づきは正しいことが確認できた。これは本質的には藤井によって示されていたものである。また、藤井は直接示してはいなかったが、付着物質やサンプルに関係なく、こうした LBP の振る舞いは観察される。

5.2 LBP の現象論的な定式化

定式化のために、これまでの研究で考慮する必要のある要素を整理する。一点目、空間的に異なる場所でも LBP ペアのそれぞれの概形は同じであり、ペアのそれぞれの概形は互いに負の関係を持つ。二点目、強度は図 20 を見るとわかるとおりに、概形要素に加えてノイズのような変化が存在する。三点目、概形やノイズとは別に図 21 のような LBP ペアにおける上下の位置関係を決める切片が存在する。この三点に基づいて定式化を行った結果は以下のようなになる。

$$I_{LBP1}(x, y, t) = I_{form1}(t) + I_{offset1}(x, y) + I_{noise1}(x, y, t) \quad (1)$$

$$I_{LBP2}(x, y, t) = I_{form2}(t) + I_{offset2}(x, y) + I_{noise2}(x, y, t) \quad (2)$$

ここで、 x, y は位置を示し、 t は時間であり、(1)(2) の左辺はそれぞれ LBP の強度をあらわす。右辺第一項は時間のみに依存する概形であり LBP ペアは互いに負の関係を持つ。また、測定のために概形は変化し多様な形をとることから、第一項の関数形は特に定めるひつようはない。第二項は位置のみに依存する切片、第三項は位置と時間で変化するノイズ的な項である。右辺第一項が時間のみに依存する理由として、空間的に異なる点でも LBP ペアの間で負の関係で概形は同じという理想的な仮定に基づくためである。また、この式はひとつのペアに対して成り立つとする。理由としては、空間的に異なる位置のペアの場合、概形は同じでも上昇幅や下降幅は変化するためであり、その場合スケーリングするパラメータが必要であるためである。そうした、より一般的な議論はここでは行わず、後の章に譲ることとする。

ここから、以上の LBP の式を出発点として、BP の強度を導出する。BP を最も単純にとらえるならば、LBP ペアの強度の平均である。ここで、簡単のために各 LBP を一点として考えて LBP1 と LBP2 の平均を取ると、

$$\begin{aligned} I_{BP} &= \frac{1}{2} I_{LBP1} + \frac{1}{2} I_{LBP2} \\ &= \frac{1}{2} (I_{form1}(t) + I_{offset1}(x_1, y_1) + I_{noise1}(x_1, y_1, t) \\ &\quad + I_{form2}(t) + I_{offset2}(x_2, y_2) + I_{noise2}(x_2, y_2, t)) \end{aligned}$$

ここで、 $I_{form1} = -I_{form2}$ であることから、

$$= \frac{1}{2}(I_{offset1}(x_1, y_1) + I_{noise1}(x_1, y_1, t) + I_{offset2}(x_2, y_2) + I_{noise2}(x_2, y_2, t))$$

となり、

$$I_{offsetBP}(x_1, x_2, y_1, y_2) = 1/2(I_{offset1}(x_1, y_1) + I_{offset2}(x_2, y_2))$$

$$I_{noiseBP}(x_1, x_2, y_1, y_2, t) = 1/2(I_{noise1}(x_1, y_1, t) + I_{noise2}(x_2, y_2, t))$$

と置き換えると、 I_{BP} は

$$I_{BP}(x_1, x_2, y_1, y_2, t) = I_{offsetBP}(x_1, x_2, y_1, y_2) + I_{noiseBP}(x_1, x_2, y_1, y_2, t) \quad (3)$$

と求まる。これでBPの強度が求まったが、ここからBPの強度は何らかの定数(切片)とノイズ成分のみとなり、切片の値を中心として毎時間ノイズによる揺らぎが発生していることが示される。ここで、 I_{BP} を時間方向について平均を取ると、ノイズ成分は打ち消しあって消えるべきなので、時間方向についての期待値 $\langle I_{BP}(x_1, x_2, y_1, y_2, t) \rangle_t$ は、

$$\langle I_{BP}(x_1, x_2, y_1, y_2, t) \rangle_t = I_{offsetBP}(x_1, x_2, y_1, y_2)$$

となり、切片成分のみとなる。こうして求めた時間方向の期待値をBPの強度から引くと、

$$I_{BP}(x_1, x_2, y_1, y_2, t) - \langle I_{BP}(x_1, x_2, y_1, y_2, t) \rangle_t = I_{noiseBP}(x_1, x_2, y_1, y_2, t)$$

となる。左辺はどちらの項も実験的に求まる値であるため、それらの値からノイズ成分のみが残る。すなわち、BPの強度変化において点滅に本質的な項はこのノイズ項である。過去の研究から、点滅点の強度分布はガウシアン(正規分布)の形をしていることが示されているため[31]、今回導出したノイズ項が点滅現象において真に本質的であるならば、その強度分布は正規分布形である必要がある。

5.3 現象論的な定式化の妥当性の実験的な検証

5.2 で求めた式の検証のために、ノイズ項を求める操作を式に基づいて行い、ノイズ成分の強度変化とそのヒストグラムを求めたところ、そのヒストグラムは正規分布形を示した(図 22)。また、強度変化もほとんど一定の値を中心として振動するような形になり、LBP から導出した BP の式に従う現象が現れる。

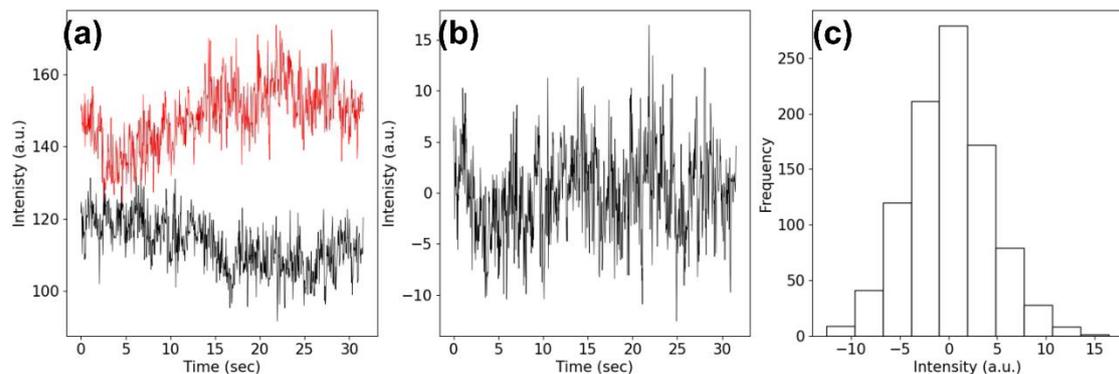


図 22 LBP および BP の強度変化とヒストグラム。二点の LBP の強度変化(a)を基にしてノイズ項(点滅項)の強度変化(b)を計算し、それをヒストグラムにした(c)。ヒストグラムも正規分布形を示し、先行研究と一致する。

これ以降、点滅現象に本質的な項である $I_{noiseBP}$ を点滅項と呼び、 $I_{blinkBP}$ とし、LBP の場合も同様に $I_{blinkLBP}$ としてあらわす。

5.4 考察

式についての考察は導出の中で同時に行ったため、そこでは触れることのできていない部分について考察を行う。

まず、本章の目的が現象論的な定式化とその検証であったため、点滅現象の本質的な部分には一切触れることができていない。しかし、定式化と考察を通して、点滅現象のメカニズムへの糸口を見つけることはできる。式から理解できる最も重要なことは、BPの強度変化は何らかの保存される量と点滅項であらわされるということである。つまりBPは概形は一定の値から変化せず、点滅が生じていると捉えることができる。興味深いことは、LBPの場合には概形は一定の値ではなく変化しているにもかかわらず、LBPペアをまとめて観察するとそのようになるという点である。これは、LBPペア間で何かを交換しているが、その何かはBPとしてとらえたときには保存されていることを示唆している。

さらなる点滅現象の理解のためには現象論的な理解を超えて、内部で何が起きているかということに踏み込む必要があり、そのためには実験結果に基づくモデルの構築が必要となる。

また、本章で求めた式は初めて点滅現象を数学的に表したものであり、現象論的なものではあるものの、InGaNの発光の物理を理解するという点でその意義は非常に大きい。

6 章 点滅現象の理論モデルの構築と解析

6.1 QCSE による定性的な観点からのモデル考察

本章では、5 章とは異なりモデルを通して点滅現象のメカニズムを理解することに取り組む。そのため、観察できていない試料の内部や仮定を立てて、メカニズムを解明することを目的とする。もし、ここで構築したモデルと 5 章で示される結果に一致が見られるなら、そのモデルの信頼性は高いと証明できる。これまでと同様に、はじめは簡単な考察からスタートして、徐々に本題のモデル構築に取り組んでいく。

まず、先行研究の章でも述べたように、量子閉じ込めシュタルク効果 (QCSE) が点滅現象を定性的に説明できるモデルとして、しばしば言及されてきた。改めてこのモデルを説明すると、InGa_N SQW の InGa_N/Ga_N 界面付近に存在するトラップ準位にキャリアがトラップやデトラップされることで、井戸の内部電界が変化し、発光再結合率が変化することで強度が変化するというようなモデルである。今回はこのモデルを出発点として用いて、B. B.Wang らによるトラップにキャリアが入ることで発光強度が増加するという考え方で議論を進める [30]。

このモデルに対して、第 5 章の考察で述べた、LBP ペア間で何かを交換していることにより強度が負の関係を持って変化していること、BP として観察した時には概形は定数であり何かは保存されているという推測を適用したい。最低限説明が必要なものは、第 5 章で現れた LBP の三つの項である。それでは何が LBP ペア間では交換されて、BP の範囲では保存されているのかについて考えよう。出発点の QCSE モデルに基づくのであれば、強度の変化はトラップに入ったキャリアの数に比例する。そう考えると、互いに概形が逆向きに変化するような場合には、片方の LBP のトラップはキャリアをトラップし、もう片方の LBP のトラップはキャリアをデトラップしていると考えることができる。このとき、片方からデトラップされたものが、もう片方のトラップへ直接的もしくは間接的にトラップされていると捉えることで、概形についての説明は可能である。このとき、BP のスケールで観察するとどうなっているであろうか。BP は LBP をまとめて観察したものであるから、片方の LBP が放出したキャリアをもう片方の LBP が受け取るといったことは、BP のスケールでは打ち消しあって常に何の変化も起こさない。これは、すなわち、LBP に対して BP が一定の値の概形を持つことに対応し説明が可能である。これで、BP と LBP の概形については説明ができた。また、5 章の強度の切片項については、元々その量子井戸の持つ強度として説明できる。

それでは、肝心の点滅項はどこに存在するのか。ここで一度、キャリアの移動について丁寧に考える。第 4 章の研究から、点滅点では多くのキャリアが存在している必要性が示された。現在構築中のモデルの視点から考えるならば、キャリアが多く存在するときトラップやデトラップに関わるキャリアの量も増加するはずである。もし、大量のキャリアが片

方のトラップからもう片方のトラップへと流れるとき、しっかりと同じ量のキャリアが流れるだろうか考えると、それはあり得なさそうである。自然に考えるならば、ショットノイズのように、揺らぎを持って移動するほうがもっともらしい。揺らぎが存在するならば、それは発光強度に対してどんな意味を持ち、どんな現象をもたらすのか。トラップ間を移動するキャリアの量が揺らぐ場合、発光強度も当然揺らぐはずである。そのとき、強度の概形の周辺で揺らいでいるように観察されるに違いない。それでは、この発光強度の揺らぎは現在求めている点滅項に対応するものではないのか。また、キャリアは離散的な対象であるため、離散確率分布であるポアソン分布に従って移動すると仮定すれば、これをモデルとして数学的に点滅現象を記述できるのではないか。次のモデルの構築では、以上の考察を数式に落とし込む。

ここで、本論文において、なぜこのようなトラップとデトラップが生じているか、その原因については考えない。あくまで、点滅現象が生じるメカニズムを探る姿勢を取る。

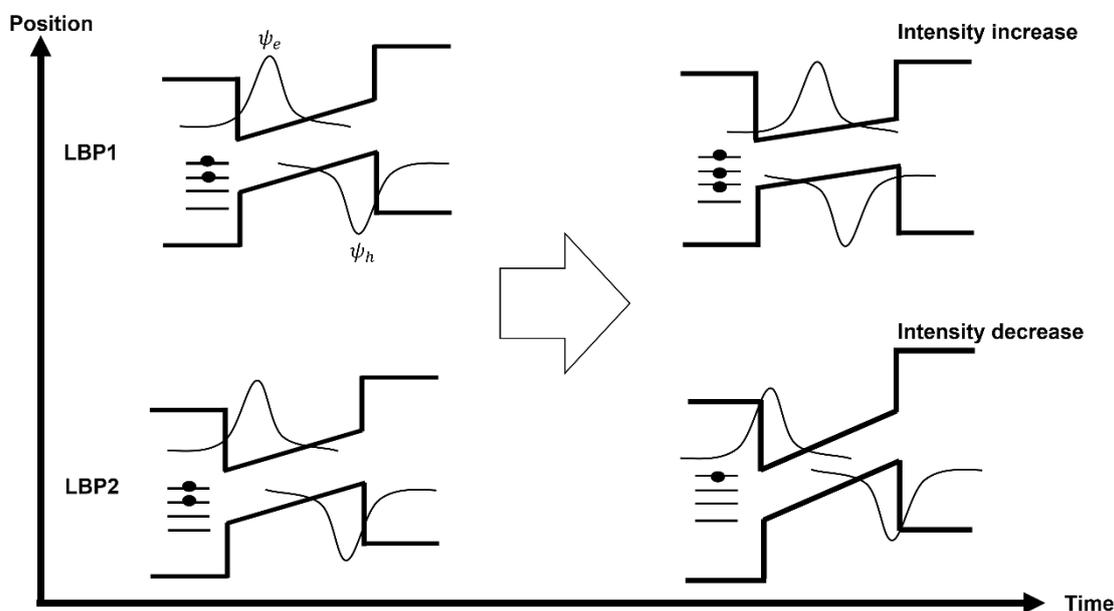


図23 LBPに存在するトラップ間キャリア交換の強度への影響に関するイメージ図。トラップ間でキャリアをやり取りすることで、間接的に発光強度が変化する。この図の場合、LBP1ではトラップ内のキャリアの増加にともなって強度が上昇し、LBP2では逆の現象が起きている。

6.2 モデルの構築

ここでは、6.1のモデルに対する考察を基にして、実際のモデルの構築を行う。まず、モデルに必要なポアソン分布について説明する。ポアソン分布とは以下のような式であらわされるものである。

$$Prob(X = n) = \frac{\lambda^n e^{-\lambda}}{n!}$$

ここで、左辺の $Prob(X = n)$ は確率変数 X が非負の整数 n を取る場合の確率を表し、右辺の λ はこのポアソン分布の平均である。意味としては「ある時間中に平均で λ 回発生する事象が n 回発生する確率」といったところである。

先ほどのモデルの考察にこの分布の考えを適用するとどういう意味を持つかと考えた場合、対象となる事象は「ある LBP に存在するトラップにキャリアがトラップされる」と「ある LBP に存在するトラップからキャリアがデトラップされる」の二つある。つまり、上のポアソン分布の意味はトラップされる場合とデトラップされる場合の二通りでそれぞれ「ある時間中に、平均で λ 回発生する（ある LBP のトラップにキャリアがトラップされる）事象が n 回発生する確率」と「ある時間中に、平均で λ 回発生する（ある LBP のトラップからキャリアがデトラップされる）事象が n 回発生する確率」といった意味をもつ。こう考えることで、点滅現象という物理的な対象の原因と仮定したメカニズムのモデル化に成功した。

次に、このモデルを使って、ある特定の LBP に存在するトラップを出入りする（トラップ・デトラップされる）キャリアを一般的に表すことを考える。トラップでは、上でモデル化したポアソン分布にしたがって指定した時間ごとにキャリアがトラップ・デトラップされるとする。このとき、トラップされるキャリアの平均を λ 、デトラップされるキャリアの平均を μ として、それぞれの平均にしたがうポアソン分布を $P(\lambda), P(\mu)$ とする。ポアソン分布には加法に対する再生性があり、あるポアソン分布から生成される値と他のポアソン分布から生成される値の和は、元々のポアソン分布の平均の和を平均とするポアソン分布にしたがう。今回の場合で考えるならば、 $n_{tr} \sim P(\lambda), n_{dtr} \sim P(\mu)$ といったようにして、各分布から独立な確率変数が生成されるとき、その和は $n_{tr} + n_{dtr} \sim P(\lambda + \mu)$ のようになる。しかし、ここで問題が一つ発生する。今回考えたいのはトラップ内に存在するキャリアの数であるため、ある時間幅ごとにトラップされるキャリアとデトラップされるキャリアの差を知りたいが、確率変数の平均の差 $\lambda - \mu$ は非負の整数とは限らないため、ポアソン分布では扱うことができない。

そのため、改めて最終的に欲しい結果を考えると、それは具体的なトラップされているキャリアの数というよりは、5章のように分布の形である。そこで、ポアソン分布は平均が

大きな値の場合に正規分布に近似できることが知られている。具体的な手順としては、適当なポアソン分布 $P(\lambda')$ に対して、中心極限定理を用いる。まず、それぞれ独立な確率変数 $X_i \sim P_i(\lambda')$ において $i = 1$ から $i = m$ までの和 S_m を考えると、 $S_m = X_1 + X_2 + \dots + X_m$ となる。これに対して、 m が大きいとき中心極限定理により、 S_m は平均 $m\lambda'$ 、分散 $m\lambda'$ の正規分布 $N(m\lambda', m\lambda')$ にしたがう。ここで、 $m\lambda' = \lambda$ と置き換えることにより、大きな平均値をもつポアソン分布は正規分布 $N(\lambda, \lambda)$ に近似できる。数式で簡単に表すと、十分大きい λ に対して、

$$P(\lambda) \approx N(\lambda, \lambda)$$

が成り立つ。ここで、大きな平均値（キャリアの平均移動量）を仮定する理由として、第4章で明らかにした点滅現象には多くのキャリアの存在が必要であるといった実験事実からの十分自然な仮定である。正規分布も再生性を持ち、分布同士の加減と定数倍が可能である。それらの関係は以下のとおりである。

$$N(\mu, \sigma^2) + N(\mu', \sigma'^2) = N(\mu + \mu', \sigma^2 + \sigma'^2)$$

$$N(\mu, \sigma^2) - N(\mu', \sigma'^2) = N(\mu - \mu', \sigma^2 + \sigma'^2)$$

$$aN(\mu, \sigma^2) = N(a\mu, a^2\sigma^2)$$

以上の関係を用いて、モデルの構築を引き続き行う。改めて、知りたかったことはポアソン分布にしたがってトラップ・デトラップされるキャリアの差がどのような分布に従うのかということである。まず、各ポアソン分布を正規近似すると、

$$P(\lambda) \approx N(\lambda, \lambda)$$

$$P(\mu) \approx N(\mu, \mu)$$

正規近似したもので、ある時間中でトラップされるキャリアがしたがうポアソン分布から、デトラップされるキャリアがしたがうポアソン分布の差を取ると、

$$N(\lambda, \lambda) - N(\mu, \mu) = N(\lambda - \mu, \lambda + \mu) \quad (4)$$

これが、ある時間中における1つのLBPに存在するトラップ内キャリア数の変化量をあらわすモデルである。また、モデル構築の際の前提から、この変化は強度の変化に対応する。

6.3 モデルの解析および現象論的な定式化との等価性

ここから、6.2 で構築したモデルの解析と BP への適用について考える。まずは、式(4)のモデルで、 λ と μ の大小関係による振る舞いの違いを調べる。(4)のモデルではある時間中に平均して $\lambda - \mu$ という量のキャリアがトラップされ、そのゆらぎが $\lambda + \mu$ であるということを示している。そこで、 $\lambda - \mu$ が正の場合、ゼロの場合、負の場合の三つの振る舞いを調べる。すると、正の場合 ($\lambda > \mu$) はトラップ内のキャリアが増加することを示し、負の場合 ($\lambda < \mu$) は逆に減少を示す。また、ゼロの場合は平均の変化量は、 $\lambda - \mu = 0 \rightarrow \lambda = \mu$ であるが、分散 $\lambda + \mu = 2\lambda$ のようになり、正の値を持つため、点滅項の存在が示される。ここまでで、LBP の発光強度の概形や点滅項が説明できる。

LBP の説明ができたので、次は BP への拡張を行う。現在、BP は図 24 のように、二つの LBP のトラップ間でキャリアを交換していると考えている。ここで、二つの LBP を LBP1 と LBP2 とし、各 LBP のトラップされるキャリアとデトラップされるキャリアについても同じ添え字を使って、 $(\lambda_1, \mu_1), (\lambda_2, \mu_2)$ としてあらわす。BP への展開のための準備ができたため、トラップ間におけるキャリアの交換について詳しく考えてみると、ある単位時間中に LBP1 からデトラップされる平均キャリア数 μ_1 と LBP2 にトラップされる平均キャリア数 λ_2 が等しい、かつ、ある単位時間中に LBP1 からトラップされる平均キャリア数 λ_1 と LBP2 にデトラップされる平均キャリア数 μ_2 が等しいということを示す。つまり、

$$\lambda_1 = \mu_2, \quad \lambda_2 = \mu_1$$

である。また、ある単位時間中の各 LBP のトラップに存在するキャリア数の変化は式(4)によって表すと、

$$N(\lambda_1, \lambda_1) - N(\mu_1, \mu_1) = N(\lambda_1 - \mu_1, \lambda_1 + \mu_1)$$

$$N(\lambda_2, \lambda_2) - N(\mu_2, \mu_2) = N(\lambda_2 - \mu_2, \lambda_2 + \mu_2)$$

となる。BP 全体での強度変化とトラップに存在するキャリアの量は対応し、さらに BP の強度は二つの LBP の平均であるため定数倍を無視すれば、BP として観察した場合の単位時間ごとのトラップに存在するキャリア数の変化は上の LBP1、LBP2 のキャリア数の変化について和を取ればよい。したがって、BP の単位時間ごとのトラップに存在するキャリア数の変化は

$$N(\lambda_1 - \mu_1, \lambda_1 + \mu_1) + N(\lambda_2 - \mu_2, \lambda_2 + \mu_2)$$

$$\begin{aligned}
&= N(\lambda_1 - \mu_1 + \lambda_2 - \mu_2, \lambda_1 + \mu_1 + \lambda_2 + \mu_2) \\
&= N(0, \lambda_1 + \mu_1 + \lambda_2 + \mu_2) \quad (5)
\end{aligned}$$

となる。この式の意味として、平均がゼロであることから単位時間ごとに概形としての変化は示されないことが理解できる。さらに、このことは、実験的に確認された BP の振る舞いと一致する。また、分散は $\lambda_1 + \mu_1 + \lambda_2 + \mu_2$ であるため点滅を示すことから、点滅項を意味していると考えることができる。以上から、BP における振る舞いとして、概形の変化は示されないにもかかわらず、点滅を引き起こすということが確認された。このことは、五章での数学的な定式化と意味として等価であり、モデルによる視点から点滅現象を説明することに成功した。

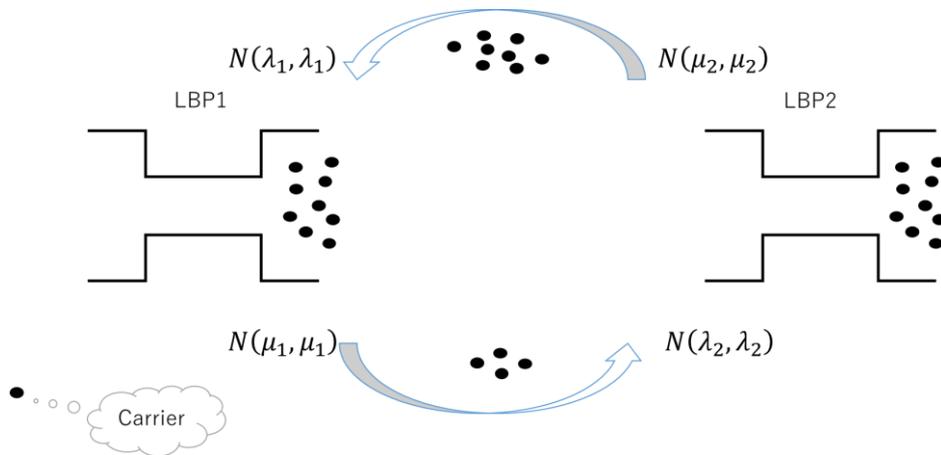


図 24 LBP のトラップ間におけるキャリア移動のイメージ図。片側からデトラップされるキャリアはもう片側からトラップされるキャリアの平均の量と等しく、逆も成り立つ。

6.4 考察

本章では、考察と同時にモデルの構築と解析を進めた。そのため、ここまでのまとめと考察および次の章への導入を述べる。

まず、五章では実験に基づいて、現象論的な定式化を行った。これは内部で何が起きているかなどは一切無視して、一度現象を数学的に説明するための試みである。この試みにより、点滅現象についてのいくつかの重要な振る舞いが定量的に示された。一方、本章では実験結果をモデルにより説明することを行った。その結果として、実験結果や先行研究に基づきつつ、いくつかの仮定の下で構築したモデルは五章の点滅現象の定式化と等価な

結果を示すことが確認された。

重要な注意として、式(4)や式(5)は各単位時間で独立に成り立っているとして考えている。具体的には、ある単位時間に着目しているときには、それ以前の単位時間でトラップに存在していたキャリアは全て期待値を取っていたとして加算し、着目している単位時間においてはそれらの期待値的な増加や減少に対して揺らいでいるとする。この考えは、片側のLBPのみ大きく強度（キャリア）が増減しない、何度も上昇と下降を繰り返す際に最大値や最小値が一致するといった実験事実を説明することが可能である。また実験では、LBPの強度変化の概形における上昇時や下降時の傾きが一定である（と推測される）ことから、物理的な意味として、移動はトラップに存在するキャリア数やLBP同士の相互作用によるキャリア移動数の調整機構が働いていることが示唆される。

別の視点から考えてみると、一見より単純な考え方として、各単位時間でトラップに入ったキャリアについて、単純に和を取っていくという方法があるが、この考え方の問題点として、一度大きくゆらぐとその後もゆらぎの影響が大きくなることがあげられる。具体例として、ある短時間において、BPで大きく増加方向に揺らいだ場合を考える。この場合、時間方向で加算をしていくため、次の単位時間においては元の強度に戻る確率よりも、それ以上に留まる確率の方が高くなっている。また、数式的に考えるならば、ある正規分布から生成される値 $X \sim N(0, \lambda_1 + \mu_1 + \lambda_2 + \mu_2)$ を時間方向で足し上げていくと、その和 X_{sum} が従う正規分布は足し上げた回数（単位時間の数）を M として、 $X_{sum} \sim N(0, M(\lambda_1 + \mu_1 + \lambda_2 + \mu_2))$ であり、長い時間観測するほど最後の単位時間の取りうる値は大きな分散を持つことになる。すなわち、実験結果を説明することができないことから、この考えは棄却される。また、天下りの的ではあるが、後の章のシミュレーションで検証する際にもこの考えの場合は多くの実験結果と矛盾し、最初に提示した考え方だと多くの実験結果が説明できる。

ここで一つの疑問が生まれる。五章と六章の示す結果が等しいのならば、本章で構築したモデルと五章の定式化を統一的に考えることはできないのかということである。次の章では、これに取り組む。

7章 点滅現象の理論モデルによる再定式化

7.1 現象論的な式と理論モデルの等価性に基づく再定式化

この章では五章と六章の内容を統一的に解釈することを目的とする。しかし、定式化とモデルの結果が等価であることと、六章でモデルの解釈と定式化の各項との対応関係は定性的に述べているため、ここからは機械的に対応させていくだけである。

話を整理して進めていくため、改めて定式化における各項とモデルとの対応について考える。まず、定式化の項は概形項、点滅項、切片である。このうち、切片はその測定位置で決まる定数として考えていて、点滅現象において本質的ではないためそのままとする。次に概形項は定式化とモデルの対応関係から期待値的な増加である。ここで、単位時間のインデックスを i として、各単位時間の LBP1 および LBP2 の平均トラップキャリア数を $\lambda_1^i(t), \lambda_2^i(t)$ とし、平均デトラップキャリア数を $\mu_1^i(t), \mu_2^i(t)$ とする。すると、概形項となる期待値的な変化は、式(1)(2)より、

$$I_{form1}(t) = \alpha \sum_{i=0}^m (\lambda_1^i - \mu_1^i)$$

$$I_{form2}(t) = \alpha \sum_{i=0}^m (\lambda_2^i - \mu_2^i)$$

T はここでは単純に $i = T$ といったような、 T 番目のインデックスを示し、 α はトラップに存在するキャリア数から強度へ変化するための定数である。これにより、概形項をモデルで書き直すことができた。

次に点滅項を考える。すでに、期待値を概形成分に組み込んだため、点滅項は式(4)の分散部分だけが寄与する。つまり、式(4)から各単位時間における点滅成分は $N(0, \lambda + \mu)$ といったような分布に基づくため、各 LBP の点滅項は、 $n_1^i \sim N(0, \lambda_1^i + \mu_1^i)$ と $n_2^i \sim N(0, \lambda_2^i + \mu_2^i)$ を使って、

$$I_{blinkLBP1}(x, y, t) = \alpha n_1^i$$

$$I_{blinkLBP2}(x, y, t) = \alpha n_2^i$$

とあらわすことができる。

これらの関係を式(1)(2)を使ってまとめると、

$$I_{LBP1}(x, y, t) = \alpha \sum_{i=0}^m (\lambda_1^i - \mu_1^i) + \alpha n_1^m + I_{offset1}(x, y) \quad (6)$$

$$I_{LBP2}(x, y, t) = \alpha \sum_{i=0}^m (\lambda_2^i - \mu_2^i) + \alpha n_2^m + I_{offset2}(x, y) \quad (7)$$

となり、LBP においてモデルと定式化の統一ができた。また、五章と同様にして BP の強度を(6)(7)から導出すると、常に $\lambda_1^i = \mu_2^i, \lambda_2^i = \mu_1^i$ であることから、

$$\begin{aligned} I_{BP} &= \frac{1}{2} I_{LBP1} + \frac{1}{2} I_{LBP2} \\ &= \frac{1}{2} (\alpha n_1^i + \alpha n_2^i) + \frac{1}{2} (I_{offset1}(x, y) + I_{offset2}(x, y)) \\ &= \alpha n_{BP}^i + I_{offsetBP}(x, y) \quad (8) \end{aligned}$$

このとき、 $(\alpha n_1^i + \alpha n_2^i)/2 = \alpha n_{BP}^i$ と置き換えた。 n_{BP}^i は正規分布の再生性より $N(0, (\lambda_1^i + \mu_1^i + \lambda_2^i + \mu_2^i)/4)$ にしたがう。これより、BP の強度は単純に正規分布であることが示される。また、和の部分などは、微小時間を扱っているとして積分への変換をすることもできる。

上記の導出では、期待値的な概形変化を仮定していたが、明示的に期待値的な変化を仮定しない考察から求める形式も紹介する。結果的に得られる式は(6)(7)と等価である。上のものよりも直観的でないが、一般性は高く、有益な視点を与えてくれる。

まず、 i 番目の単位時間におけるキャリア移動数は平均 γ_i 、分散 ν の正規分布により決まるとする。また、 i 番目の単位時間におけるトラップ内に存在するキャリア数を $n_{all(i)}$ と定める。このとき、キャリア数は単位時間とともに積算されるが、 $i = m$ 番目のキャリア移動を決める正規分布は、それまでの期待値の和と $(m - 1)$ 番目にトラップ内に存在していたキャリア数 $n_{all(m-1)}$ の差を平均とし、分散を ν とする。つまり、実際に i 番目で移動するキャリア数を n_{ci} として、

$$n_{cm} \sim N\left(\sum_{i=0}^m \gamma_i - n_{all(m-1)}, \nu\right)$$

とあらわされる。こうなる理由として、 $i = 0$ から $i = 2$ までを考えることで簡単に理解できる。まず、 $i = 0$ のとき、それ以前のトラップ内のキャリア数を 0 として考えると、

$$n_{all(0)} = n_{c0} \sim N(\gamma_0, \nu)$$

となる。次の $i = 1$ では、LBP のトラップ間でキャリアを交換しているという考察から、できるだけ前の単位時間で発生した $\gamma_0 - n_{all(0)}$ のずれを修正する必要があるだろう、つまり、前の単位時間で生じた期待値からのずれを修正しなければ、各 LBP で移動するキャリア数が大きくずれてしまうため、LBP トラップ間のキャリア交換というモデルの前提が成り立たなくなってしまう。さらに、ずれを放置すると、6 章の考察でも述べたように、実験的に確認されるキャリアの増減に対する上限や下限が一定であることが満たされない。これらのことから、元々の期待値 γ_1 に加えて、前の単位時間のずれを打ち消すように正規分布が与えられることが要請される。したがって、正規分布の期待値部分にずれを修正する項を加えて、この単位時間でのキャリア数の変化は、

$$n_{c1} \sim N(\gamma_0 - n_{all(0)} + \gamma_1, \nu)$$

とあらわされる。このとき、この単位時間でトラップ内に存在するキャリア数は、前の単位時間のトラップ内に存在するキャリア数と、この単位時間におけるキャリア数の変化の和なので、

$$n_{all(1)} = n_{all(0)} + n_{c1} \sim N(\gamma_0 + \gamma_1, \nu)$$

となる。同様にして、 $i = 2$ の場合には、

$$n_{c2} \sim N(\gamma_0 + \gamma_1 - n_{all(1)} + \gamma_2, \nu)$$

$$n_{all(2)} = n_{all(1)} + n_{c2} \sim N(\gamma_0 + \gamma_1 + \gamma_2, \nu)$$

となり、これを任意の m 番目の単位時間で成り立つようにすると、

$$n_{cm} \sim N\left(\sum_{i=0}^m \gamma_i - n_{all(m-1)}, \nu\right)$$

$$n_{all(m)} \sim N\left(\sum_{i=0}^m \gamma_i, \nu\right)$$

といったように、最初に提示したものも求まる。この式の意味について考えてみると、任意の単位時間で、トラップ内に存在するキャリア数は期待値的な増減と一定の分散であらわされる正規分布にしたがうことが分かる。また、以下のように変形すると、

$$n_{all(m)} = \sum_{i=0}^m \gamma_i + n^m \sim \sum_{i=0}^m \gamma_i + N(0, \nu) = N\left(\sum_{i=0}^m \gamma_i, \nu\right)$$

となる。ここで、 n^m は m 番目の単位時間に $N(0, \nu)$ から生成される値である。最初の等号の右側を見てみると、式(6)(7)の右辺第一項と第二項と定数がかかっていないことを除けば類似している。現に第一項は期待値的な増加を示す概形（期待値の積算）であるため完全に対応する。さらに、第二項も平均が 0 で分散を持つ正規分布でどちらもあらわされることから対応する。したがって、この結果は本質的に式(6)(7)と等価であることが示されるため、以下のようにあらわすことができる。

$$I_{LBPj} = \alpha N\left(\sum_{i=0}^m \gamma_j^i, \nu\right) + I_{offsetj}$$

元々のものよりもわずかに導出や考察が複雑であるが、物理的な意味を理解するといったことや、式(6)(7)の右辺第一項および第二項をまとめて一つの正規分布から生成されるとして記述できることから一般化でもあり、非常に重要なものである。

7.2 再定式化に基づくシミュレーション

ここでは、7.1で行った定式化とモデルの統一により得られた式をシミュレートすることである。ここまで、様々な仮定を行ってきたが、シミュレートした結果が実験結果を再現するのであれば、荒くともよい近似であることをさらに示すことができる。

先に式(6)(7)をシミュレートする。変化量が期待値的に変化しない場合は $\lambda_1^i = \lambda_2^i = \mu_1^i = \mu_2^i = 2 \times 10^4$ 、LBP1 が上昇し LBP2 が下降する場合は $\lambda_1^i = \mu_2^i = 2 \times 10^4 + 8, \lambda_2^i = \mu_1^i = 2 \times 10^4 - 8$ 、LBP1 が下降し LBP2 が上昇する場合は $\lambda_1^i = \mu_2^i = 2 \times 10^4 - 8, \lambda_2^i = \mu_1^i = 2 \times 10^4 + 8$ 、 $\alpha = 0.01$ として最後に LBP2 の切片項を調整して図 20 の先行研究で観察されている強度変化をシミュレートして再現した (図 25)。このとき、式(4)から点滅項に当たる正規分布の分散は $\lambda_1^i + \mu_1^i = \lambda_2^i + \mu_2^i = 4 \times 10^4$ であり、標準偏差は 200 で、 α をかけることによって、強度の標準偏差は 2 になることが期待される。以上のことを簡単にまとめれば、上昇時には実質 16 個ずつ電子がトラップ内に増加し、下降時には実質 16 個ずつ電子がトラップ内から出ていく。この増減が LBP の概形を形作り、その他の分散成分が点滅を引き起こしている。

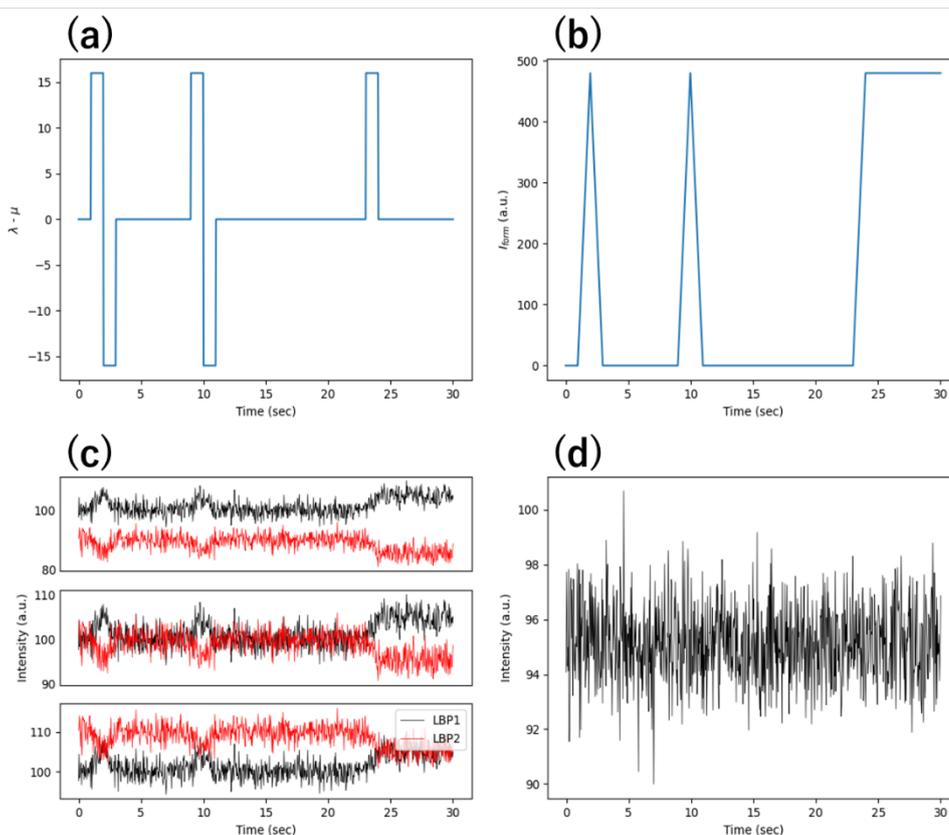


図 25 シミュレーションによる点滅現象の再現。はじめに、概形項を作るためにトラップ

間で交換するキャリアの平均量 $\lambda - \mu$ を定義する(a)。これを時間方向に和を取っていくと、概形が得られる(b)。(a)(b)はLBP1でありLBP2でも同様にして進める。(b)に点滅項を加えたものに α をかけ、切片項を足すことでLBPの強度変化が求まる(c)。(c)の強度変化から平均を取ることでBPの強度変化は導かれる(d)。

以上でLBPのシミュレーションおよびLBPからBPがシミュレーションにより現れることが確認できた。

ここから、別の観点から再定式化の結果を検証する。今回対象にするのは、ミケレットらによって報告された図5の点滅現象のオンおよびオフ状態の継続時間の確率である。ミケレットらは図4のような点滅現象に対してそれらの確率を求めたと論文に書いている。論文には具体的な計算方法は載っていないが、強度の時間変化から求められるとあることから、観察時間全体に対してあるオン(オフ)継続時間はどの程度の割合を占めているかというのを確率と解釈してシミュレーションを行った。

このとき、単純に継続時間ごとに求めようとする、多くの場合継続時間はわずかに異なるので、どの場合も確率が低くなってしまふ。そのため、継続時間をヒストグラム化しまとめて考えることで、ヒストグラムの各ビンにおける階級値に対して確率を算出する必要がある。また、複数の試行をいくつかのまとまりに分けて算出しなければ、1試行15秒間の実験からでは図5のようなものはどうやっても得られない(継続時間が長いとき、1sec/15secのような場合の確率が短い継続時間のものよりも大きくなってしまふため)。

そのため、今回のシミュレーションでは視覚的ではあるが図4の1試行15秒間のものを再現し、それを15試行分集めたものに対してオン状態の継続時間に関する確率を計算しプロットすることを20回繰り返した(図26)。

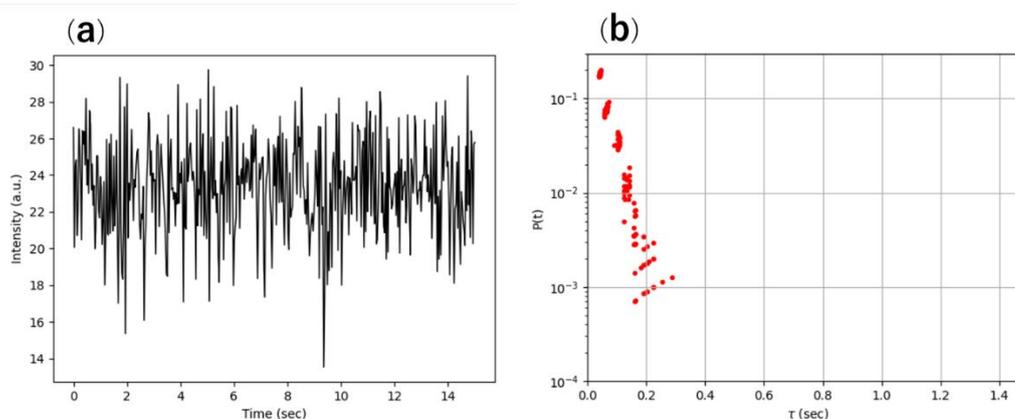


図26 シミュレーションによる図5の再現。BPの強度は、提案モデルに基づく定式化から各単位時間で正規分布から生成されるものとして視覚的に再現した(a)。このとき25以

上をオン状態として継続時間の確率を調べたところ、継続時間が比較的短い領域では図 5 の再現ができた(b)。

7.3 点滅現象の局所性の証明

ここでは点滅現象が局所的に生じるのにも関わらず、なぜ大域的には観察されないかを、数式的に説明することを目的とする。ここで、主に使うのは式(8)である。

まず、点滅現象は局所的なスケールでしか観察されないことが知られている。四章では、大域的な観察は、局所的なものよりも理想的な構造の量子井戸を観察していることになるため、In 組成ゆらぎといった要因で生じる点滅現象は生じないと説明した。これは、定性的には実験結果を説明できるものであるため、より定量的に示すことはできないだろうか。

そこで、これまで議論してきた内容から、このことを定量的に示すため、BP スケール以上の InGaNSQW の発光は全て式(8)であらわされると近似して考察する。この近似の妥当性については、点滅している発光は分散が大きく、安定な発光は分散が 0 に近いとすることで、大体の発光状態を説明でき、基本的な発光の強弱という状態も切片項で説明できる。

大域的な観察とは、LBP から BP を導いた時のように、複数領域の発光の平均を取ることである。そこですべての領域を BP スケールの単位面積の集合体として考えると、単位面積を 1 としたとき、ある領域 j の発光強度はどの時間においても $I_j = N_j(\text{constant}_j, \text{Variance}_j)$ のようにあらわされる。ここで、 S 個の領域 (面積 S) についての平均強度 I_{mean} は、

$$I_{\text{mean}} = \frac{1}{S} \sum_{j=1}^S I_j$$

であり、これを調べると、

$$= \frac{1}{S} \sum_{j=1}^S N_j(\text{constant}_j, \text{Variance}_j)$$

分布の再生性より、

$$= N \left(\frac{1}{S} \sum_{j=1}^S \text{constant}_j, \frac{1}{S^2} \sum_{j=1}^S \text{Variance}_j \right)$$

ここで、 $\sum_{j=1}^S \text{constant}_j = S \frac{1}{S} \sum_{j=1}^S \text{constant}_j = S \overline{\text{constant}}$ と置き換える。同様にして、 $\sum_{j=1}^S \text{Variance}_j = S \frac{1}{S} \sum_{j=1}^S \text{Variance}_j = S \overline{\text{Variance}}$ と置き換え、それぞれ元の式に戻すと、

$$= N \left(\overline{\text{constant}}, \frac{\overline{\text{Variance}}}{S} \right)$$

となる。ここで、期待値は当然だが、分散の部分で興味深いことが起きていて、観察している面積の増大に伴って、分散は小さくなっていくことが示されている。これは、点滅現象が局所的には観察されるが、大域的には観察されないことを意味している。これにより、ここでの目的としていた、点滅現象の局所性を証明することができた。

ここでは、このような手順で示したが、そもそもどの領域も平均的に分散 $\overline{\text{Variance}}$ および平均強度 $\overline{\text{constant}}$ を持っているということを出発点にして、中心極限定理を使うことでも同様な結果が示される。これらの結果は、提案モデルの信頼性を高めるものである。

7.4 考察

7.1 および 7.3 は考察をしながら進めたため、ここでは詳しく触れない。7.2 ではシミュレーションにより LBP の発光強度を再現し、そこから BP の強度も求めることができた。このことより、モデルや定式化の妥当性やそれらを統一した式の信頼性が高いことが示された。さらに、図 5 の再現を行った結果からも一致が見られることからモデルが支持される。

しかし、図 5 をシミュレーションで再現した図 26 では、継続時間が長い場合が全く現れなかったため、その理由について考えたい。まず、継続時間が長い場合は、正規分布で示される BP の発光強度としては現れづらいことが容易に理解できる。それでは、どういった場合にオン状態が継続しているようになるのか考えると、BP よりも LBP で見られるのではないかと考えることができる。また、二値化された点滅のような場合でも、BP の発光強度よりは継続時間が長くなると推測できる。そのため、図 5 をより再現するためには BP の発光強度だけでなく二値化された点滅もしくは LBP の発光強度も含める必要があるに違いない。

ここで、以上のことをまとめて考えると、LBP の発光強度は場合によっては二値化された点滅を示す可能性がある。これを検証するために、図 25 の LBP のシミュレーションを基にして、分散はそのままにキャリアの平均移動量だけを変更してシミュレートしたとこ

る図 27(a)のような強度を占めた。この強度についてヒストグラムを調べると図 27(b)のようになり、山が二つであることから二値化していることが見て取れる。こういった現象を含めて考えていたため、長い継続時間の場合が低確率で現れるようになると考えることができる。また、以上より、二値化された点滅は LBP で生じ、カオス的な点滅は BP で生じるとして、異なる種類の点滅を説明することが可能である。

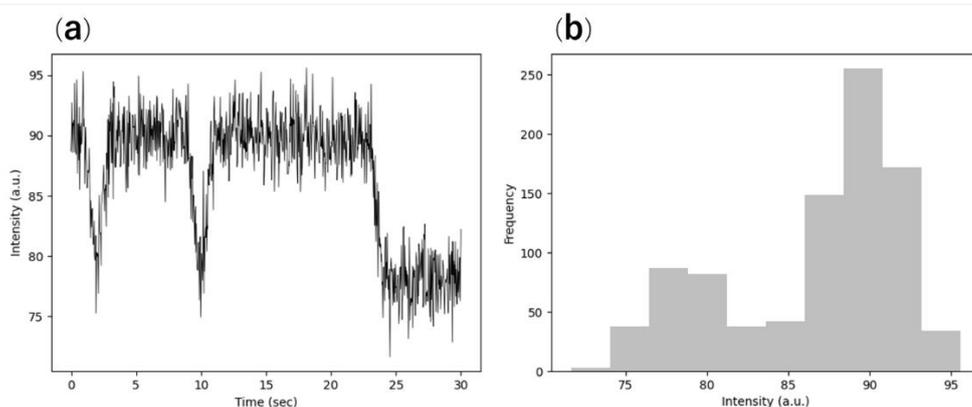


図 27 LBP の強度変化とヒストグラム。トラップ間の平均キャリア移動量を図 25 の LBP より大きくしているため、図 25 とは異なる(a)。この発光強度についてヒストグラムを作成すると、山が二つのヒストグラムができ、二値化された点滅を示す。

また、式(6)(7)(8)から、局所的なスケールで別々に観察していた二つの量子井戸を大域的に観察すると、新たな一つの量子井戸として振る舞いを理解し捉えることができるという興味深い解釈が可能である。この場合、LBP は説明したとおりであるが、BP の量子井戸は各単位時間で $(\lambda_1^i + \mu_1^i + \lambda_2^i + \mu_2^i)/8$ のキャリアがトラップおよびデトラップされているものとして理解できる。これは元々の LBP とは全く異なる新たな量子井戸であり、4 章で議論したスケールごとに異なる量子井戸として理解できるという結果とも一致している。

さらに、パラメータを変化させた場合の振る舞いの違いについて述べていく。今回のシミュレーションにおける重要なパラメータの一つ目は図 25(a)を決めるキャリアの実質的な変化量であり、図 25(b)のような概形を定めるものである。この変化量を大きくしていくと、トラップやデトラップされるキャリアの変化が大きくなるため、LBP の強度が上昇や下降を示すときに、それ自身が二値化された点滅を示すようになる。図 27 の場合は実質的な変化量は 40 としているため、図 25 の場合よりも二値化されている。また、点滅項を定める分散はキャリアのトラップ量とデトラップ量の和によって決まり、これも非常に重要である。この和は実質的なトラップ内キャリアの変化量と比較してかなり大きい値を設定しなければ、点滅は示されない。これは、単純にパラメータ設定に役立つだけでなく、

実質的にトラップ間で交換するキャリアの量に対して、大量のキャリアのトラップ・デトラップが生じていなければ、点滅は生じないという重要な示唆である。最後にトラップ内に存在するキャリア量と強度を結び付ける定数として、 α も非常に重要である。この定数の意味を考えてみると、トラップ内に存在するキャリアが発光強度に対してどの程度影響を与えるかということを示しているだろう。つまり、この定数が小さい値を取るほど、トラップ間でやり取りするキャリア量は多くなり、大きい値を取るほどやりとりされるキャリア量は少なくなる。実際、図 25 のシミュレーションにおいて、この値を 10 倍にした場合に、同じ結果を出力するためには、実質的なキャリア移動量は 10 分の 1、トラップ量とデトラップ量の和は 100 分の 1 にする必要がある。これらの考察から、空間的に異なる LBP で変化が大きいものや小さいものの違いは実質的な移動量の違いによって生じ、点滅の激しさはトラップ・デトラップに関わるキャリア量の和で決まることが示された。

ここまで点滅現象に対して様々なことを調べ、メカニズムを明らかにし、理論を提案することができた。それでは、この理論はより一般にどのような形であらわされるのか。次の章ではそれについて詳しく調べる。

8 章 InGaN 単一量子井戸の一般的な発光ダイナミクスの理論

8.1 試料表面一般で成り立つ理論への拡張

7 章までで点滅現象に関する理論を構築し、点滅現象が生じるメカニズムを説明した。それでは、この式はより一般にどのような形であらわされるのか。点滅現象の理論の特徴としては、局所のおよび短時間の観察であることである。一般に拡張するためには、大域のおよび長時間に対して成り立つ理論が必要である。この章では、そのような、より一般的な形への展開を考察し予測していく。

まず、出発点が必要であるため、出発点として式(6)を採用して議論を進めよう。局所的な発光として式(6)の形を使い、キャリアの平均トラップ・デトラップ数を時間と位置についての関数としてあらわす。

$$I(x, y, t) = \alpha \sum_{t'=0}^t (\lambda(x, y, t') - \mu(x, y, t')) + \alpha n(x, y, t) + I_{offset}(x, y)$$

ここで、 $n(x, y, t) \sim N(\lambda(x, y, t) - \mu(x, y, t), \lambda(x, y, t) + \mu(x, y, t))$ であるが、以降では煩雑さを避けるため、これらの変数は必要なときを除いて表示しない。7.3の結果から、上の局所的な強度の大域的な平均 $\bar{I}(t)$ は、安定発光を示すため、時間変化しない定数である。ゆえに、これは切片項のみであるべきなので、 $I_{offset}(x, y)$ の大域的な平均を $\overline{I_{offset}}$ として求めることができる。

$$\bar{I}(t) = \overline{I_{offset}}$$

これは、点滅現象を観察する時間スケールでは確かに正しい。しかし、長時間ではどうだろうか。長時間では大域的な現象として光メモリ効果が存在し、点滅現象の影響を除いても、光の増強が長時間スケールで生じる [28]。そのため、 $\bar{I}(t)$ が時間的に変化しない定数であることは矛盾であるため、これは時間的に変化する必要がある。そのため、上の式を光メモリ効果によって時間的に変化する項 $\overline{I_{ome}}(t)$ と時間変化しない定数項 \bar{I}_0 とした以下の関係が正しい。

$$\bar{I}(t) = \overline{I_{ome}}(t) + \bar{I}_0$$

これを元の式に戻すと、

$$I(x, y, t) = \alpha \sum_{t'=0}^t (\lambda(x, y, t') - \mu(x, y, t')) + \alpha n(x, y, t) + I_{ome}(x, y, t) + I_0(x, y)$$

となり、このとき、B. B.Wang らが提案している考えを用いると、光メモリ効果的な発光増強も量子井戸に存在するトラップに井戸内からキャリアが入るとして説明ができる [30]。そこで、この考えを上式の式に適用したい。この考えを適用すると、そもそも点滅現象を引き起こすためのキャリアがなぜトラップ内に存在するのかも説明できることから、一般化の意義は大きい。適用するうえで、光の増強を引き起こす励起光の波長と点滅現象の生じる励起光の波長が等しいことから、同じトラップに入っているとすれば、トラップ内に存在する電子数から強度への変換を行う定数は同じである可能性がある。しかし、一旦同じ定数とはせずに新たな定数 β とする。また、各単位時間で光メモリ効果的にトラップに入っていくキャリア数を $\eta_{ome}(x, y, t)$ として、

$$I(x, y, t) = \alpha \sum_{t'=0}^t (\lambda(x, y, t') - \mu(x, y, t')) + \alpha n(x, y, t) + \beta \sum_{t'=0}^t \eta_{ome}(x, y, t') + I_0(x, y) \quad (9)$$

となる。 η_{ome} は空間的に平均を取った時に光メモリ効果を反映するような項であり、局所的には井戸内部からトラップに入るキャリア量である。この式が、一般的に光メモリ効果および点滅現象を統一的に説明する式であり、本論文で最終目的としていたものである。もし、点滅現象と光メモリ効果が同じトラップによって引き起こされているとしたら $\alpha = \beta$ となる。また、上の式を積分の形で表示すると、

$$I(x, y, t) = \alpha \int_0^t \lambda(x, y, t') - \mu(x, y, t') dt' + \alpha n(x, y, t) + \beta \int_0^t \eta_{ome}(x, y, t') dt' + I_0(x, y) \quad (10)$$

となる。

8.2 考察

最終的に得られる式は(9)や(10)であり、その意味するところは上述のとおりである。こ

ここでは、はじめに、なぜ点滅現象の観察から得た式だけでは不完全だったのかについて考察する。まず、最初にも述べたように点滅現象の観察は局所的かつ短時間である。このとき、局所性は点滅に非常に関与していたが、短時間であることは特に意味を持っていなかった。短時間だと、長時間で生じる光メモリ効果の増強は見られないため、当然元の理論だけでは光メモリ効果は説明できなかった。そのため、一般化の過程で長時間スケールや大域的なスケールを考慮することで、こうした異なる現象の観察される時間スケールや空間スケールで生じる現象を統一的に扱うことができるようになった。簡潔に述べるならば、短い時間スケールでしか点滅現象を観察していなかったため、長時間スケールの現象を理論に組み込めなかったということである。つまり、短時間の観察の場合には光メモリ効果項はゼロとなり、点滅現象だけの理論に帰着する。

また、InGaN 単一量子井戸における光メモリ効果の報告時には、それまでの励起時間に応じた励起直後の時定数の変化が示されていたが、こうした結果も今回のモデルに基づけば、励起時間を長くした場合と短くしていった場合の時定数の変化についての関数形が異なることは説明可能である。簡単な説明としては、一定の励起時間に対して、光遮断時間を短くしていく場合と長くしていく場合では、明らかにトラップ内に存在する電子などのキャリア量は異なるためである。

以上より、本論文では初めて点滅現象や光メモリ効果を定量的に説明し、統一的な理論を構築した。このような InGaN の発光に関する理論は、青色発光ダイオードといった発光デバイスや半導体製品として利用するためのキャリアの理解といった点から、応用的にも非常に重要である。また、この理論は他の InGaN 系発光デバイスでも利用できる可能性がある。

しかし、まだ多くの謎は残っている。概形項や光メモリ効果項の関数系はどのようにして決まっているか、今回の理論は励起光の波長や温度の関数としてはどのように表現されるかなどである。将来的には、こういった問題に対してもこの理論を出発点とし、実験による修正を加えることで、確実に InGaN の発光の物理を解明できると筆者は考えている。

9 章 結論

4 章では試料表面への液体の付着による影響について解析した。大気、水、エタノールという条件下における発光面の標準偏差マップを算出し、ヒストグラム化したものから累積相対度数を比較することで、水よりもエタノールが表面に存在する場合に、標準偏差の高い領域（点滅点）が増加することを定量的に示した。また、輝点および点滅点の増加と同時に暗い領域も増加することから、点滅点には多量のキャリアが存在すると推測した。

5 章では点滅現象の現象論的な定式化を行った。はじめに、従来の点滅点（BP）を構成する局所的な二つの点滅点（LBP）の強度を現象論的に定式化した。LBP 強度の式から BP の強度を導出し、先行研究と比較することで定式化の検証を行った。結果として、LBP 間でゆらぎを持つ何らかの量を交換し、BP では何らかの量はゆらぎを持って保存されていることが示唆された。

6 章では点滅現象のモデルを構築し説明した。5 章で得たゆらぎを持つ何らかの量に関する考察を、定性的に点滅現象を説明可能な量子閉じ込めシュタルク効果モデルに導入し、LBP のトラップ間でキャリアを交換するモデルを新たに提案した。さらに、このモデルに統計分布を適用して定量的に扱うことを可能にした。定量化したモデルを解析することで、定式化と等価な結論を示すことを確かめた。

7 章では 5 章と 6 章の結果を一般化して再定式化し、シミュレーションによって点滅現象を再現した。モデルから得られた結果を、定式化の各項に対応付けることで再定式化を行い、その式に基づいたシミュレーションで点滅現象の再現を行った。また、異なる視点からの考察からも、同様な再定式化が得られることを確かめ、物理的な意味を与えた。さらに、先行研究で示されていたオン状態の継続時間の確率分布や二値化された点滅の再現や、点滅現象がなぜ局所的にしか観察されないのかを、再定式化の結果を利用して定量的に説明した。

8 章では点滅現象を説明する理論を使って、光メモリ効果を説明する一般的な理論を議論した。これによって、提案モデルや理論が点滅現象と光メモリ効果を統一的に説明できることを示した。

結論として、本論文では点滅現象の定式化、モデル提案、提案モデルの定量化、定式化と提案モデルの一般化、シミュレーションによる点滅現象の再現、点滅現象の理論の光メモリ効果を含む形式への一般化等を行った。以上の結果は、初めて点滅現象や光メモリ効果を統一的に表し、InGaN 単一量子井戸における発光の時間変化を広く説明できるものであるため、この物質の発光の物理に対する意義は大きい。また、発光デバイスや次世代の半導体として注目されていることから、InGaN におけるキャリアの振る舞いを理解することは重要であり、応用的にも重要である。

10 章 参考文献

- [1] M.H. Chang, D. Das, P.V. Varde and M. Pecht, *Microelectron. Reliab.*, 52, 762-782, 2012.
- [2] H. Amono, N. Sawaki, A. Sakai and Y. Toyoda, *Appl. Phys. Lett.*, 48, 353, 1986.
- [3] H. Amano, M. Kito, K. Hiramatsu and I. Akasaki, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 28, L2112, 1989.
- [4] S. Nakamura, T. Mukai, M. Senoh and N. Iwasa, *Jpn. J. Appl. Phys.* 31, L139, 1992.
- [5] S. Nakamura, N. Iwasa, M. Senoh, and T. Mukai, *Jpn. J. Appl. Phys.* 31, 1258, 1992.
- [6] S. Nakamura, M. Senoh, and T. Mukai, *Jpn. J. Appl. Phys.*, 32, L8, 1993.
- [7] S. Nakamura, M. Senoh, and T. Mukai, *Appl. Phys. Lett.*, 62, 2390, 1993.
- [8] R. Micheletto, M. Abiko, A. Kaneta, Y. Kawakami, Y. Narukawa, and T. Mukai, *Appl. Phys. Lett.*, 88, 061118, 2006.
- [9] C. Feldmeier, M. Abiko, U. T. Schwarz, Y. Kawakami and Ruggero Micheletto, *Optics Express*, 17, 22855-22860, 2009.
- [10] M. Nirmal, B. Dabbousi, M. Bawendi, J. Macklin, J. Trautman, T. Harris and L. Brus, *Nature*, 383, 802–804, 1996.
- [11] B. Zhang, Y. Li, T. Yasuda, W. Wang, Y. Segawa, K. Edamatsu and T. Itoh, *Appl. Phys. Lett.*, 73, 1266–1268, 1998.
- [12] D. Bertram, M. Hanna and A. Nozik, *Appl. Phys. Lett.*, 74, 2666–2668, 1999.
- [13] M. Kuno, D. Fromm, A. Gallagher, D. Nesbitt, O. Micic and A. Nozik, *Nano Lett.*, 1, 557–564, 2001.
- [14] S. A. Empedocles, D. J. Norris, and M. G. Bawendi, *Phys. Rev. Lett.*, 77, 3873, 1996.
- [15] R. G. Neuhauser, K. T. Shimizu, W. K. Woo, S. A. Empedocles, and M. G. Bawendi, *Phys. Rev. Lett.*, 85, 3301, 2000.
- [16] S. A. Empedocles, and M. G. Bawendi, *Science* 278, 2114-7, 1997.
- [17] T. Aoki, Y. Nishikawa, and M. K. Gonokami, *Appl. Phys. Lett.*, 78, 1065, 2001.
- [18] A. Kaneta, M. Funato, and Y. Kawakami, *Phys. Rev. B*, 78, 125317, 2008.
- [19] Y. Narukawa and Y. Kawakami, *Appl. Phys. Lett.*, 70, 981, 1997.
- [20] S. Chichibu, T. Azuhata, T. Sota, and S. Nakamura, *Appl. Phys. Lett.*, 69, 4188, 1996.
- [21] R. Micheletto, N. Yoshimatsu, A. Kaneta, Y. Kawakami, and S. Fujita, *Appl. Surf. Sci.*, 229, 338, 2004.
- [22] R. Micheletto, M. Allegrini, and Y. Kawakami, *Appl. Phys. Lett.*, 95, 211904, 2009.

- [23] R. J. Cook, and H. J. Kimble, *Phys. Rev. Lett.*, 54, 1023, 1985.
- [24] Al. L. Efros and M. Rosen, *Phys. Rev. Lett.*, 78, 1110, 1997.
- [25] M. Sugisaki, H.-W. Ren, S. V. Nair, K. Nishi, and Y. Masumoto, *Phys. Rev. B*, 66, 235309, 2002.
- [26] K. Oikawa, C. Feldmeier, U. Schwarz, Y. Kawakami, and R. Micheletto, *Opt. Mater. Express*, 1, 158, 2011.
- [27] R. Micheletto, K. Oikawa, and C. Feldmeier, *Appl. Phys. Lett.*, 103, 17109, 2013.
- [28] T. Tsutsumi, G. Alfieri, Y. Kawakami and R. Micheletto, *Appl. Surf. Sci.*, 392, 256-259, 2017.
- [29] 藤井祐輔, 修士論文, 2021.
- [30] B. B. Wang, J. J. Zhu, D. G. Zhao, D. S. Jiang, P. Chen, Z. S. Liu, J. Yang, W. Liu, F. Liang, S. T. Liu, Y. Xing, L. Q. Zhang, and M. Li, *AIP Advances*, 8, 085222, 2018.
- [31] R. Micheletto, K. Oikawa and C. Feldmeier, *Appl. Phys. Lett.* 103, 172109, 2013.

11章 謝辞

本研究はミケレットルジェロ教授の熱心な指導をいただければ、まとめ上げることができませんでした。研究で失敗してくじけそうなときにも常に励ましていただけたことで、諦めずに難しい課題に取り組むことができました。また、私の突然のディスカッションにも丁寧に対応していただけて、とても楽しく充実した研究生活を過ごせました。本当にありがとうございました。

本研究とは異なりますが、動画像の通信に関する研究では、理化学研究所光量子工学研究センター画像情報処理研究チームの横田秀夫チームリーダーをはじめ、多くの方々にお世話になりました。研究員の方々には多くの議論を交わしていただけて、充実した日々を過ごせました。議論の中で、時には厳しい指摘もあり、そうした中で研究への姿勢や取り組み方を学ぶことができました。ありがとうございました。

今後行う予定である脳シミュレーション研究の指導をしていただいた、理化学研究所光量子工学研究センター画像情報処理研究チームの孫哲研究員にもお世話になりました。本論文とはテーマの異なる研究について、近い距離で指導いただけたことにとっても感謝しています。世間話から研究についての議論まで、様々なことを話すことができ、研究に対するアドバイスも沢山いただけてとても楽しく研究を進めることができました。ありがとうございました。

本研究室の卒業生である藤井祐輔さんとは、同時に在籍した期間は短いものでしたが、多くの大切な議論ができました。研究室に入りたての私の話に耳を傾けていただけたことがとても嬉しかったです。藤井さん研究やその姿勢が本研究のアイデアにつながりました。ありがとうございました。

研究室のメンバーにはミーティングで多くの議論を交わすことができました。ミーティングで意見交換ができることで、研究へのモチベーションも高く過ごすことができました。お世話になりました。ありがとうございました。

最後に、家族に感謝を申し上げます。どんな時でも話し、支えてくれたことで、ここまで学業や研究に専念することができました。ありがとうございました。