DPによる1次元堆積モデルの履歴効果

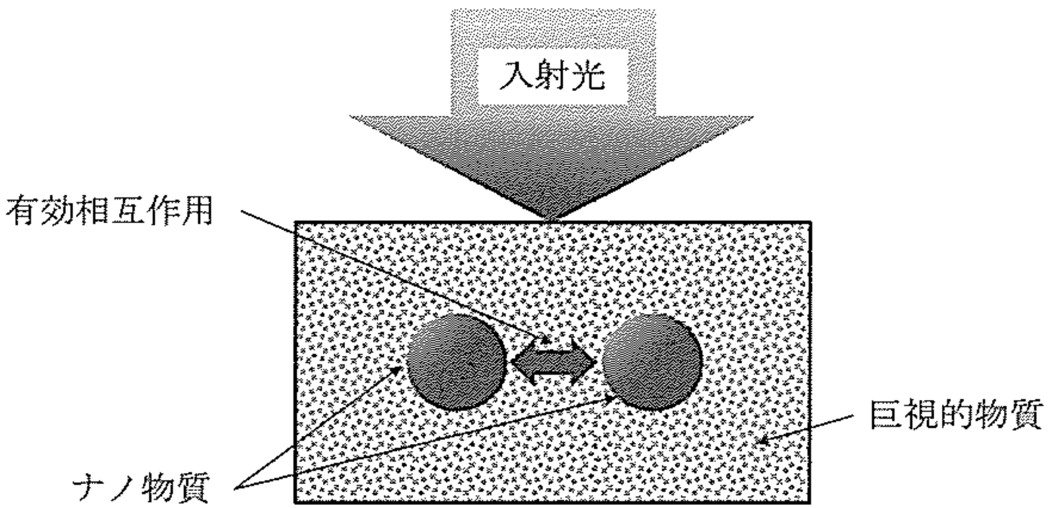
2014年　1月　22日

中央大学　物理学科
香取研究室　小林　智裕

1. ドレスト光子（DP）について

ドレスト光子（DP）とは？

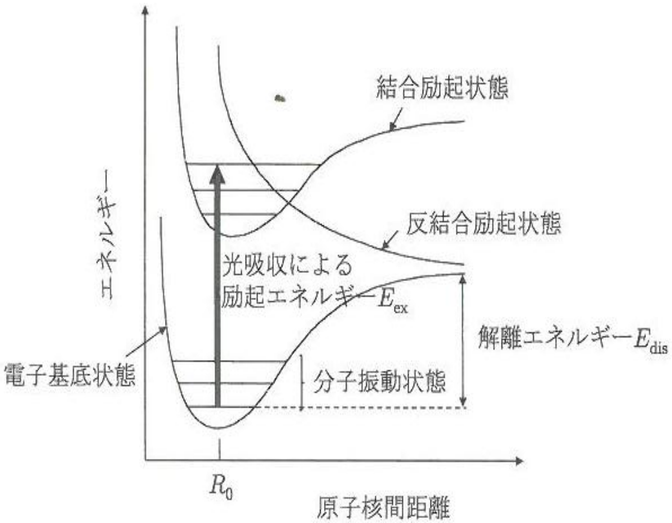
DPとは、ナノ寸法領域において光子と電子（または電子・正孔対）が結合した状態を表す準粒子である。ナノ寸法領域での、二つの物質の有効相互作用の大きさを求めるなかで、入射光とまわりを囲んだ巨視的物質を考慮し繰り込むと、近接場光相互作用と呼ばれる有効相互作用は、ナノ物質の寸法に依存した湯川関数のかたちになり、光波長によらないことがわかる。



つまり、DPがナノ物質表面に局在することになり、ナノ物質間での電磁相互作用はDPのエネルギーがナノ物質間を移動することにより、生じると考えてよいことになる。

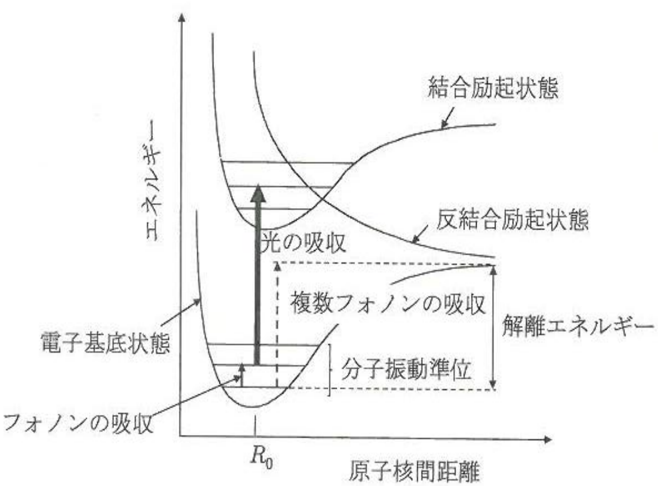
また、ナノ寸法による格子振動、つまりフォノンは、DPの空間分布において影響を与える。DPとフォノンとが結合した準粒子をDPP（ドレスト光子フォノン）と呼ぶ。

DPによる分子の解離現象



伝搬光による分子解離現象は、まず左上図のように解離エネルギーよりも大きい励起エネルギーにあたる大きさの光エネルギーを分子に与え、電子を励起状態にする。

そして、分子は内部振動し、その過程の中で電子状態は結合励起状態から反結合励起状態に遷移し解離する。



しかし、プローブの後端から光を入射させ、先端の先鋭化された部分にDPを発生させると、フォノンのエネルギーも分子は吸収することにより、励起エネルギーよりも小さい光エネルギーで分子を解離させることが可能になる。

DPによる現象の詳細

- 溝付きのSiO2基盤にAlの微粒子を堆積させる。その際に、基盤表面に光子エネルギー2.33eV(波長532nm)、光パワー50mWの光を照射すると、ほぼ等しい寸法(平均直径100nm)をもったAlナノ物質がほぼ等間隔(平均間隔28nm)で、溝の各部に配列する。

- また、基盤表面に光子エネルギー2.62eV(波長473nm)、光パワー100mWの光を照射した場合、平均直径84nm、平均間隔49nmのAlナノ物質の配列が得られる。

- これは、基盤表面に発生するDPPとAlとの相互作用による自律的な物質形成・配列が可能であることを示していて、空間分布が湯川関数で与えられるDPのエネルギー移動により、反結合性励起状態に遷移し、周囲のAl微粒子が脱離することによる。

要するに･･･

- あるエネルギーの光を当てながら溝付きのSiO_2基盤にAl微粒子を堆積させると、同寸法程度Alのかたまり(クラスター)が、一定間隔に並ぶ。

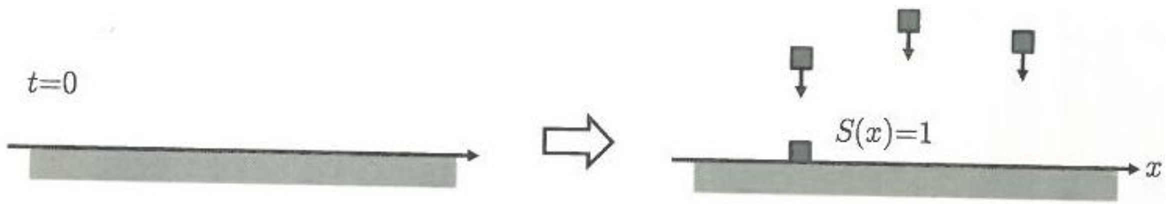
- また、より大きいエネルギーの光を当てるとエネルギーが小さいときに比べて小さい寸法のクラスターが、小さいときより広い間隔で並ぶ。

この同寸法のクラスターができ、なおかつ一定間隔に並ぶことをモデルにより説明がしたい！！

２．モデルについての説明

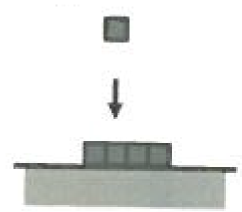
「ドレスト光子」に提示されている一次元モデルの説明

基盤の溝をN個のピクセルで表し、基盤に堆積する微粒子は各ピクセル上の立方体で表す。ランダムで選ばれる溝の位置xが立方体で占められる現象を、S(x)で表し、S(x)=1のときは占拠されている場合、S(x)=0のときは占拠されていない場合を表す。

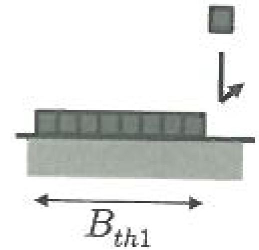


また、任意の位置xに堆積する際に、次の条件を課す。

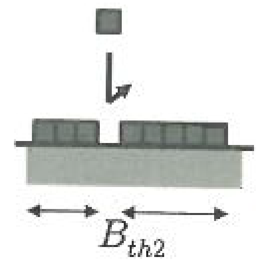
１、位置xがすでにS(x)=1の場合、そのままS(x)=1とする。



２、S(x)=0の場合、位置xがある値Bth1以上の長さのクラスターの隣であれば、
堆積を禁止し、S(x)=0のままとする。



３、S(x)=0の場合、位置xの両側にクラスターがあり、その長さの合計がBth2以上のとき、堆積を禁止し、S(x)=0のままとする。



４、以上の3つの場合以外は、堆積が続くので、S(x)=1とする。

規則２，３は光と物質の共鳴相互作用効果による、脱離を再現している。

履歴効果を考慮する目的

「ドレスト光子」に提示されている一次元モデルは、現象に沿った結果が得られている。

なので、実際に起こっている現象を絞り込むために、履歴性を考慮し、時間が経過することにより結合が強くなる現象を含んだ新たな一次元モデルを考える。

また、そのモデルでどのようなことが起きているか理解する。

履歴を考慮するモデルの概要

1. Al微粒子がランダムに堆積する。

2. クラスターが、ある一定の寸法(Bth1とする)以上をもつと、クラスター内に存在するある範囲の時間(t1とする)内に堆積したAl微粒子は脱離する。

ただし、一定の寸法(Bth1)は基底状態と励起状態とのギャップエネルギーの差のみに影響すると考えた。

具体的なモデルの説明

n個の一次元配列S(1,2,…,n)に1から順に(Tまで)数字を置いていく操作を行う。
数字のないところはS(x)=0とする。

t回目の操作でS(x)=tというように、操作の回数と置く数字が対応する。
ただしxは乱数によりランダムに選択する。

S(x)=0のところはAl微粒子が堆積していないことを表し、それ以外は堆積していることを表す。

その操作の中で、t回目の操作でBth1+1個以上の数字が並んだら、そのときに置いた数字をtとして

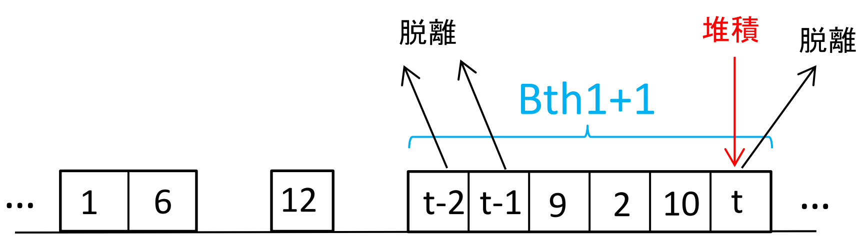
$$t-t1 \leqq S(x) \leqq t$$

の条件を満たすそのクラスター内のS(x)をS(x)=0とする。
これにより脱離を再現し、その脱離に履歴効果を持たせる！！

また、一次元を考えているので、S(x)=0でない限り数字を置くことができない。
つまり、ある程度数字を置いていくと、
それ以上置くことのできない状態に達する。
(あるxに置けたとしても,そのS(x)のみがS(x)=0となる)
これからは、この状態を終状態と呼ぶ。

つまりこのモデルは、Bth1+1の大きさのクラスターが(脱離が終わった状態で)存在することはない。

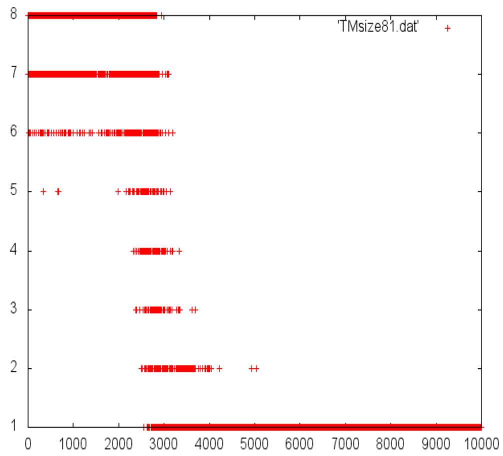
このモデルがt1により結果がどのように変化するか見ていく。



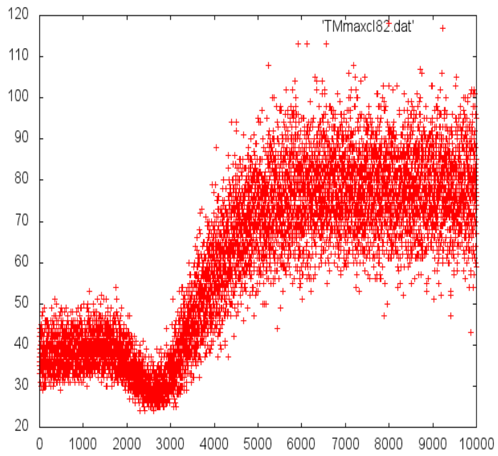
左図は
t回目の操作
t1=2のときの脱離の仕方

３．このモデルでの結果について

Bth1=8の場合



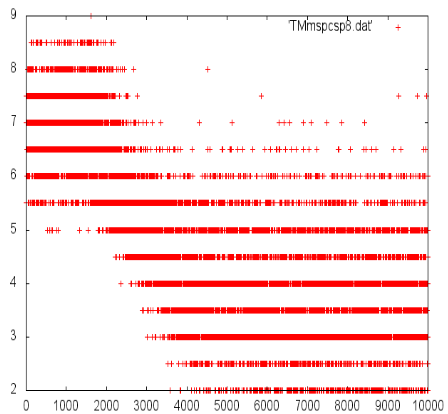
一次元配列上に存在する最多クラスターのサイズのt1による変化

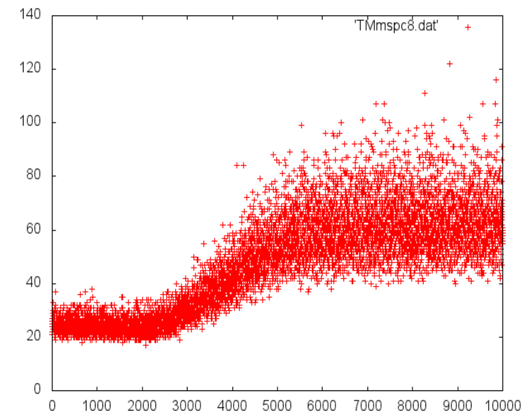


最多クラスターの個数のt1による変化

左図→t1が小さいときは値は8、7が中心、その後様々な値にばらつき始め、最終的に値は1をとるようになる。

右図→最多クラスターの個数がt1の値を上げていくにつれ、ある値で急に減少し始め、その後再び上昇し、徐々に値にばらつきが生じることが分かる。





Bth1=8のときの最多の間隔

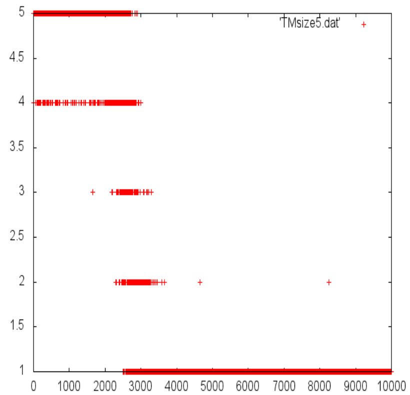
Bth1=8のときの最多間隔の個数

・・・間隔はクラスターの中心から次のクラスターの中心までのピクセルの長さ

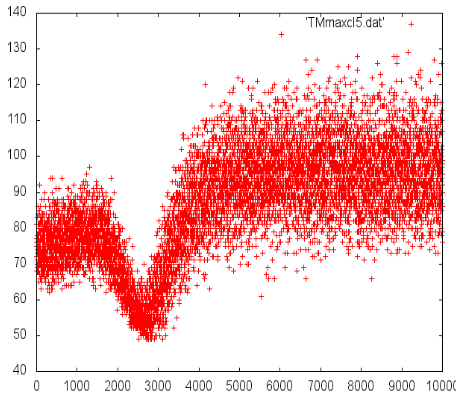
左図→t1が上昇するにつれ、値が平均的に減少している。

右図→あるt1の値から、グラフが上昇し始める。

Bth1=5のとき



最多クラスターのサイズの変化

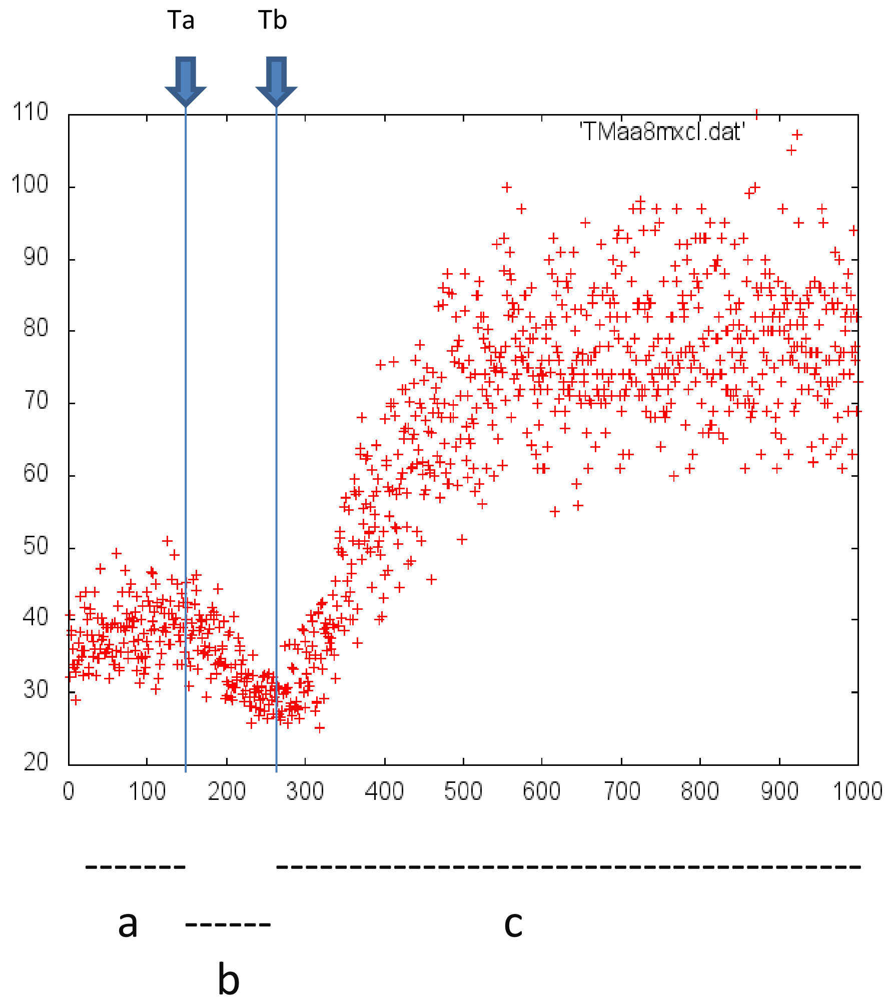


最多クラスターの個数の変化

Bth1=5のときもBth1=8のときと同様の変化が起こるグラフが得られた。
よって、Bth1=8のときのグラフについて、どのようなことが起こっているのかを詳しく調べていく。

４．このモデルの結果に対しての考察

t1を10コずつに区切って
その中で平均をとり変化を見る(Bth1=8)



それぞれの区間に分けて調べていく。

a.　最多クラスターの個数が上昇する。

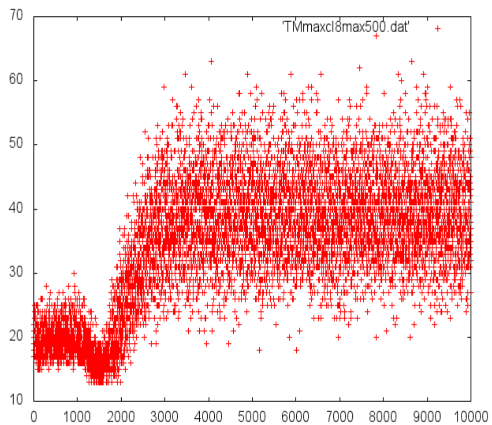
区間aの最大のt1を、Taとする。

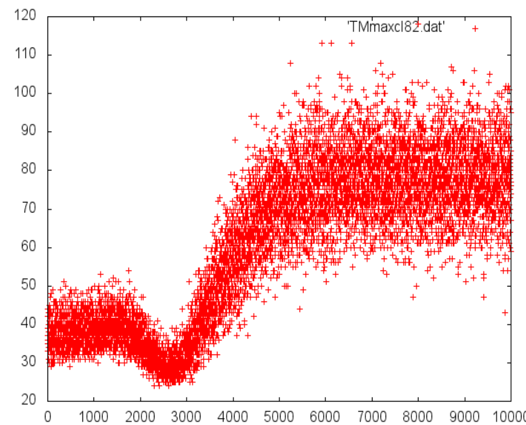
b.　最多クラスターの数が減少する。

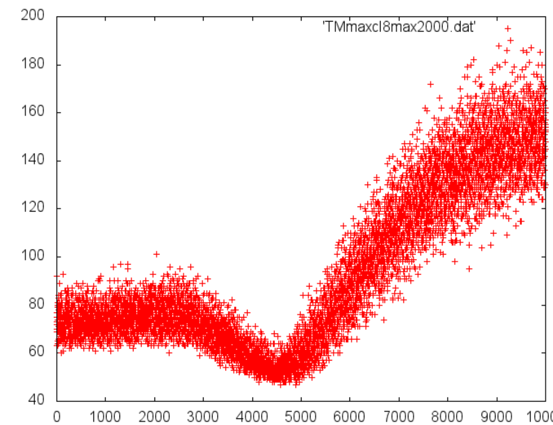
区間bの最大のt1を、Tbとする。

c.　再び最多クラスターの数が上昇し、ばらつきが大きくなる。

グラフについての考察



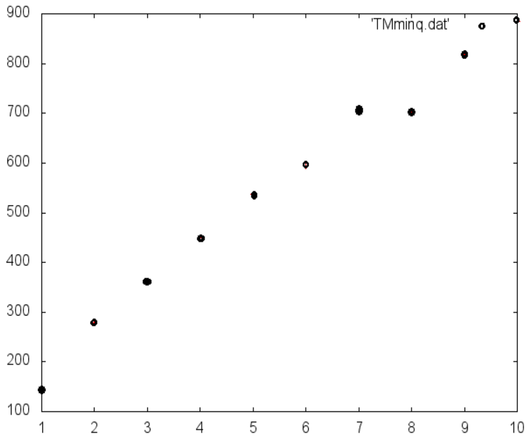




Bth1=8のときの最多クラスターの個数の変化を総ピクセル数nを変化させて、それぞれ見てみる。
左からn=500,1000,2000(Tは10^5で一定)

nの値を大きくしていくと、区間a、区間bともに大きく広がっているのが分かる。

nの変化による考察



左図は
横軸の500倍が総ピクセル数
縦軸の10倍が最多クラスターの個数が
最小値をとるt1の値
つまり縦軸はTbの値

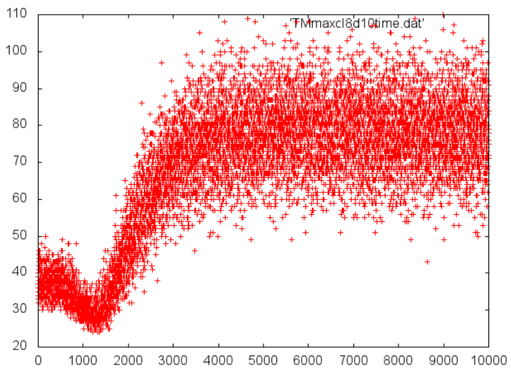
このグラフより比例関係にあることが分かる。

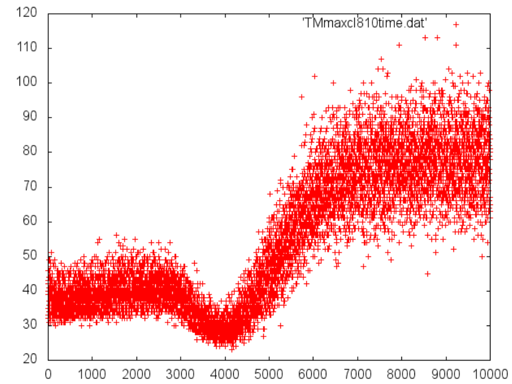
これは、総ピクセル数nを大きくすれば、その分Bth1+1以上のピクセルができたときにランダムに数字を置いていくので、クラスター内の数字のばらつきが大きくなる。

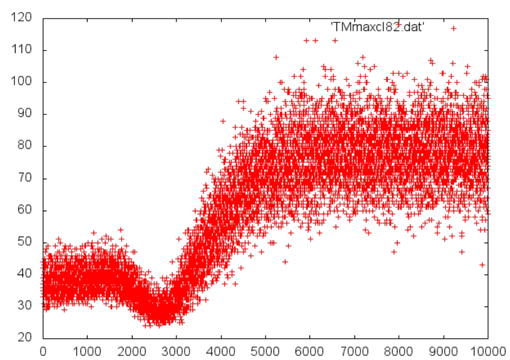
よって、クラスターのサイズをバラバラにするには、nを大きくするほど強い履歴性、大きなt1の値が必要になることと一致する。

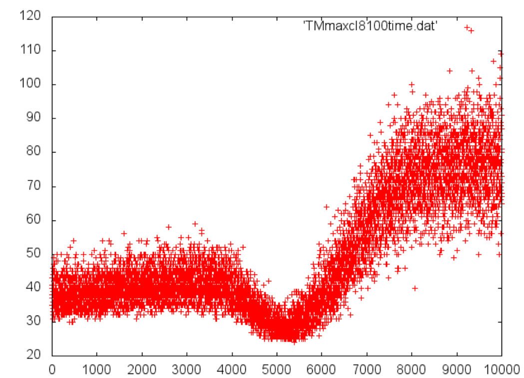
Bth1=8のときの最多クラスターの個数の変化を数字を置く操作の総回数Tによる変化で見てみる。

TはAlを堆積させる総量に対応する。



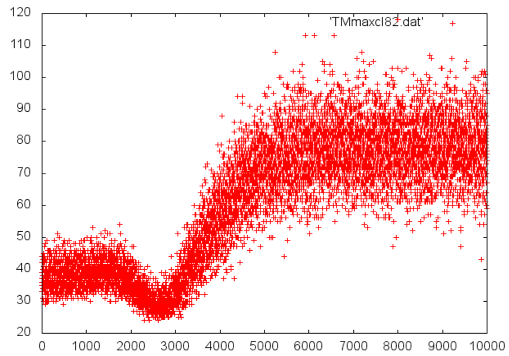




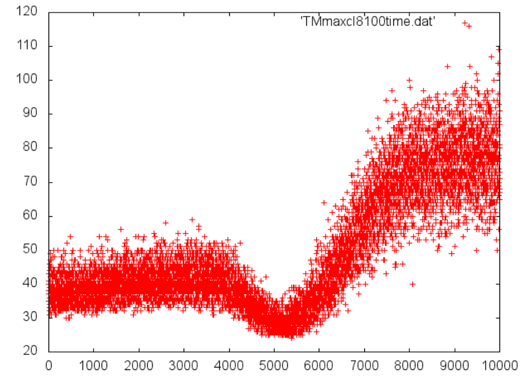


左上から$T=10^4$、10^5、10^6、10^7である。
(nは1000で一定)

Tの変化による考察



$T=10^5$



$T=10^7$

このグラフを見比べると、区間aが特に広がっているのが分かる。

また、Tを大きくするほどより強い履歴性でも、操作T回内に終状態にすることができる。

つまり、区間aの履歴性t1では操作T回内に終状態に達していることが分かる。

この変化を見て分かること③

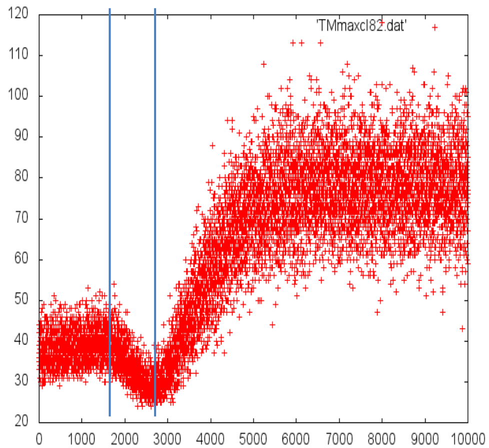
下の表はそれぞれの条件でのTa、Tbをまとめたものである。

nの値	**500**	**1000**	**2000**
Ta（区間aの大きさ）	1000	1748	2764
Tb	1517	2683	4553
差（区間bの大きさ）	517	935	1789

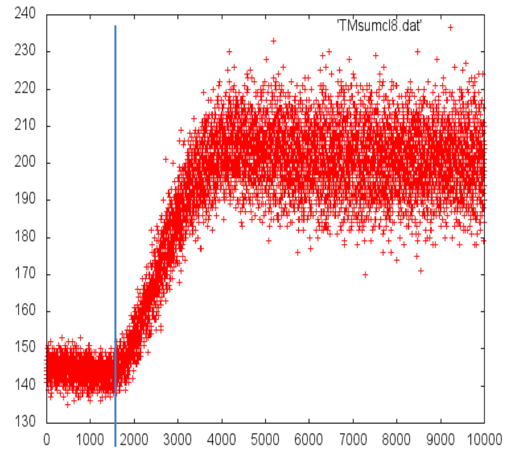
$(T=10^5)$

Tの値	**10^4**	**10^5**	**10^6**	**10^7**
Ta（区間aの大きさ）	569	1748	2846	4024
Tb	1341	2683	3903	5162
差（区間bの大きさ）	772	935	1057	1138

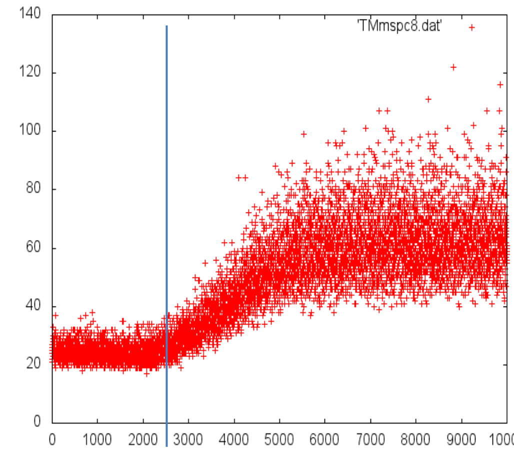
(n=1000)



最多クラスターの個数



総クラスター数



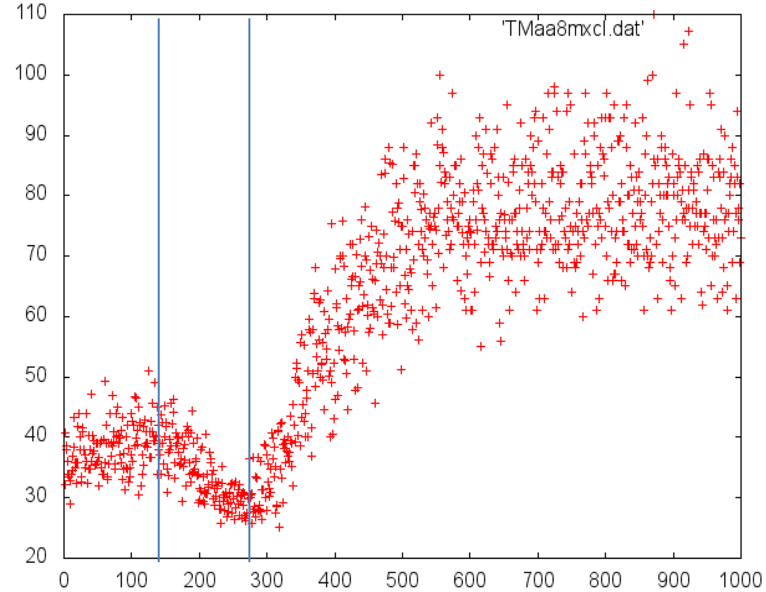
最多間隔の個数

Taと総クラスター数の上昇するt1が対応し、
Tbと最多間隔の個数の上昇するt1が対応していることが分かる。

Ta以上のt1になると終状態に達することがなくなるので、小さいクラスターが増え始め、総クラスター数が上昇する。

Tb以上のt1になると徐々にサイズ1のクラスターが増加するので、最多の間隔も上昇し始める。

以上よりわかること（まとめ）

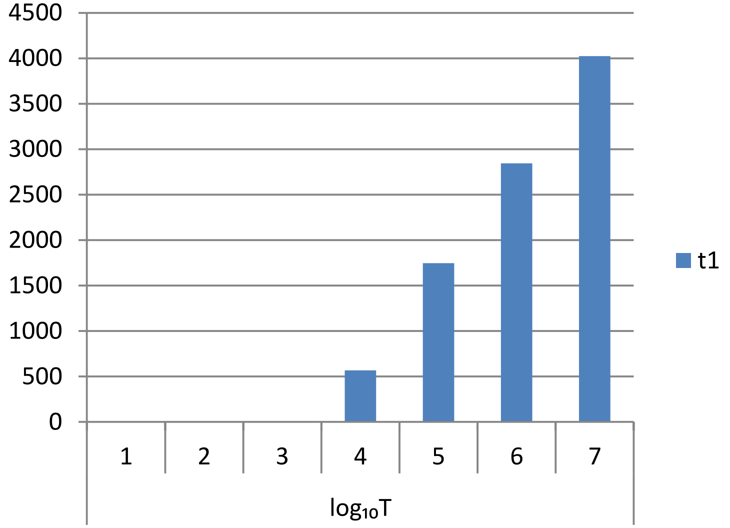


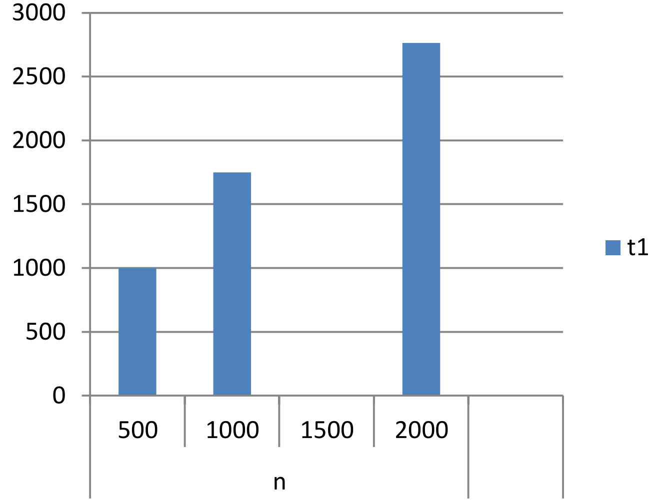
・区間aでは、最終的に終状態に達している。

・区間bからは、終状態に達することがなくなり、徐々に様々な大きさのクラスターが存在し始める。

・区間cでは、脱離の効果が大きくではじめ、サイズが1のクラスターが多くなる。

Taを数式で表す！





これらより、Taは

$Ta = \alpha \log_{10} T + \gamma 1$

$Ta = \beta n + \gamma 2$　　　　(但し、$T \geqq 10^4$、$n \geqq 500$)

と、書けることが分かった。

参考文献

- M.Naruse , et al,
  Appl.Phys.Lett.**100**,(2012),193106

- 「ドレスト光子　光･物質融合工学の原理」
  大津元一　著、 朝倉書店