

# 一次元薄膜初期成長における局所累積サイズの漸近解析

著者	中井 日佐司
雑誌名	電気通信大学紀要
巻	29
号	1
ページ	56-65
発行年	2017-02-01
URL	<a href="http://id.nii.ac.jp/1438/00008422/">http://id.nii.ac.jp/1438/00008422/</a>

# 一次元薄膜初期成長における局所累積サイズの漸近解析

中 井 日 佐 司

## Asymptotic analysis for cumulative local size for one-dimensional submonolayer growth

Hisashi NAKAI

### Abstract

By dimensional analysis, it is confirmed that a cumulative local size  $x_y$  for one-dimensional irreversible submonolayer growth of point islands [J. G. Amar and M. N. Popescu, Surf. Sci. **419**, 239 (2001)] is expressed by a function of scaled gap length  $Y$  and dimensionless deposition time  $R^{1/3}\theta$ , where  $R$  is the ratio of the monomer diffusion rate to the deposition rate and  $\theta$  is coverage. Using asymptotic analysis for  $x_y$  as the limit  $R \rightarrow \infty$ , I show that  $x_y/s_{av} \approx I = 1/B \int_{\phi_y}^1 u^\alpha \tanh(YBu^{-\alpha}) du$ , where  $B$  is a certain monotonically decreasing function of the variable  $R^{1/3}\theta$ ,  $\alpha$  is dynamical exponent of nucleation length and  $s_{av}$  is average size. At both of the numerical result of  $x_y/s_{av}$  and the approximate analytical evaluation for the integral  $I$  with Taylor expansion in  $YB$  for the integrand, correction term for  $Y - Y^{-3}$  (or limit of  $x_y/s_{av}$  as  $R \rightarrow \infty$ ) is shown to be proportional to  $(R^{1/3}\theta)^{-3/4}$ , and the analytical evaluation is in good agreement with the numerical result in  $R^{1/3}\theta \geq 400$ . Finally, I find another evaluation for  $I$  with the expansion in  $\alpha$  to improve the deviation in  $100 \leq R^{1/3}\theta < 400$ .

Keywords: dimensional analysis, asymptotic analysis, irreversible submonolayer growth of point islands.

## 1 はじめに

金属薄膜における不可逆なエピタキシャル初期成長では、島とよばれる様々な大きさの金属微結晶が基板に点在し、下記のような機構によって成長している [1]。

1. 薄膜の材料である金属原子、すなわち、モノマーは蒸着源から一定の速度で入射され、島や他のモノマーによって捕獲されるまで基板上を拡散する。
2. ダイマー以上で形成されたクラスターである島は基板上を移動しない。
3. 島のサイズはクラスターに含まれるモノマー数であり、蒸着源から供給されるモノマーによって、または、基板上を拡散するモノマーによる付着・捕獲によって増加し、分解はしない。そのため、蒸着時間の経過に従って島のサイズは増加する。

薄膜初期成長の実験結果を説明する手段として、サイズが  $s$  である島密度  $\hat{N}_s$  の蒸着時間  $t$  依存性に関する連立常微分方程式、

$$\frac{d\hat{N}_1}{dt} = \hat{J} - 2\hat{D}\sigma_1\hat{N}_1^2 - \hat{D}\hat{N}_1 \sum_{s=2} \sigma_s\hat{N}_s,$$

$$\frac{d\hat{N}_s}{dt} = -\hat{D}N_1\sigma_s\hat{N}_s + \hat{D}\hat{N}_1\sigma_{s-1}\hat{N}_{s-1} \quad (s \geq 2)$$

または、入射モノマー密度  $\hat{J}$  によって両辺を除し、独立変数を被覆密度  $\hat{\theta} := \hat{J}t$  とした、

$$\frac{d\hat{N}_1}{d\hat{\theta}} = 1 - 2\hat{R}\sigma_1\hat{N}_1^2 - \hat{R}\hat{N}_1 \sum_{s=2} \sigma_s\hat{N}_s, \quad (1)$$

$$\frac{d\hat{N}_s}{d\hat{\theta}} = -\hat{R}N_1\sigma_s\hat{N}_s + \hat{R}\hat{N}_1\sigma_{s-1}\hat{N}_{s-1} \quad (s \geq 2) \quad (2)$$

による速度方程式を用いる方法がある [2, 3, 4]。ここで  $\hat{D}$  は拡散定数、 $\hat{R} := \hat{D}/\hat{J}$  は拡散蒸着比である。なお、 $\sigma_s$  ( $s = 1, 2, 3, \dots$ ) は捕獲数と呼ばれる量で、 $s$  と  $\hat{\theta}$  に依存する。式 (1) 右辺第一項は入射モノマーによって基板上のモノマー密度  $\hat{N}_1$  を増加させる。一方、第二項と第三項はモノマーを減少させ、それぞれ、ダイマー形成 (核形成) と島による捕獲過程に対応している。又、第二項と第三項を含む  $\hat{R} \propto \hat{D}$  は基板上表面拡散を経てこれらの過程が実現されることを示している。式 (2) はサイズ  $s$  をもつ島密度  $\hat{N}_s$  の速度方程式であり、第一項、二項

ともにモノマーの捕獲過程を経て島のサイズ  $s$  が変化することを示している。

以上のように速度方程式の方法では右辺各項によって薄膜成長素過程を表し、速度係数  $\hat{R}N_1\sigma_s$ 、特に、 $\sigma_s$  のサイズおよび蒸着時間依存性を求める必要がある。伝統的な手法 [2, 3, 4] では分子運動論に基づいて  $\sigma_s$  を求め、その結果、ダイマー以上のサイズをもった島密度  $\hat{N} := \sum_{s=2} \hat{N}_s$  と  $\hat{N}_1$  の蒸着時間依存性を説明できた。しかしながら、サイズ分布  $\hat{N}_s$  の再現はできなかつた。

他方、Kinetic Monte-Carlo (KMC) シミュレーションでは、蒸着源からのモノマー入射と基板上拡散をランダムに発生するモノマーの素過程とすることで、実際のエピタキシャル薄膜成膜実験と比較し得る結果を得た [5]。

Blackman と Mulheran は初期成長を捨象して基板を一次元とし、更に島のサイズは捕獲したモノマーの個数を計数するのみで、島の大きさは変化しない点状島成長の KMC シミュレーションを行った [6]。このシミュレーションに対する解析において、島の周りに存在する捕獲領域の概念を取り入れることで島のサイズ分布を再現した。捕獲領域とは、ある特定の島によって捕獲されるモノマーが存在する領域である。Blackman らは島のサイズとその周囲をとりまく捕獲領域との相関も説明し、サイズ分布の再現にこの相関が重要であることを示唆した。

Blackman らと同じ系である一次元点状島成長において、Amar らはサイズ分布の速度方程式に捕獲領域の概念をとり入れた  $\sigma_s$  を用い、KMC のサイズ分布を再現した [7]。この際に捕獲領域に関する量として、サイズ  $s$  である島の周りにおける平均島間隔 (ギャップ長)  $y_s$  を導入した。この  $y_s$  を使って  $\sigma_s$  は、

$$\sigma_s = \bar{\sigma}(y_s) \quad (3)$$

で与えられる。なお、

$$\bar{\sigma}(y, \hat{\theta}) = \frac{2l_1}{l^2} \tanh \frac{y}{2l_1} \quad (4)$$

はギャップ長  $y$  を持っている島の局所捕獲数であり、ギャップ内のモノマー局所分布から求められた。また、 $l_1$  は最小サイズの島である核生成の特徴長さ (以下では核生成の長さと呼ぶ)、 $l$  は基板上を拡散するモノマーの島による捕獲に関する特徴長さ (以下、捕獲長) である。なお局所累積サイズ  $x_y(y, \hat{\theta})$  を用いて  $y_s$  は、

$$s - 2 = x_y(y_s, \hat{\theta}), \quad (5)$$

$$x_y := \int_{\theta_y}^{\hat{\theta}} \hat{R} \hat{N}_1(\hat{\theta}') \bar{\sigma}(y, \hat{\theta}') d\hat{\theta}' \quad (6)$$

の根として与えられる [7, 8]。ここで  $y$  の関数である  $\theta_y$  は  $y = y_{av}(\theta_y) = 1/N(\theta_y)$  を解くことで得られ、ギャップ長の平均が  $y$  のときの被覆率を表している。また、Amar

らは、 $\hat{N}_1$  と  $\hat{N}$  に関する還元速度方程式 (付録 A 参照) を見出し、サイズ分布の速度方程式 (2) とは独立に  $\hat{N}_1$  と  $\hat{N}$ 、 $l$ 、 $l_1$  を求めた。このため、サイズ分布の速度方程式と連立することなく  $x_y$  や方程式 (5) の計算が可能になった。

ここで  $x_y$  について物理的な意味を考えてみる。被積分関数である  $\hat{R} \hat{N}_1 \bar{\sigma}(y)$  はギャップ長  $y$  を持っている島が単位時間に捕獲するモノマー数を表し、ギャップ長  $y$  の島が生成した被覆率  $\theta_y$  から現在の被覆率  $\hat{\theta}$  までこの量を積分することで  $x_y$  を得ている。つまり、 $x_y$  とは、被覆率  $\theta_y$  において周囲にギャップ長  $y$  を持ったダイマーが生成した後から、被覆率  $\hat{\theta}$  までの間にこのダイマーが捕獲したモノマーの累積個数である。

したがって、 $y_s$  に関する方程式 (5) は、ダイマー ( $s = 2$ ) からサイズ  $s$  まで成長した島によって捕獲された累積モノマー数が  $s - 2$  であることを示している。

さらに Amar と Popescu は、拡散蒸着比の大きい極限  $\hat{R} \rightarrow \infty$  に関する  $x_y$  および、 $y_s$  の方程式 (5) の漸近極限、

$$X := \frac{x_y}{s_{av}} \simeq \Phi(Y) = Y - Y^{-3}, \quad (7)$$

$$u \simeq \Phi\left(\frac{y_s}{y_{av}}\right) \quad (8)$$

を見出した [8]。ここで、 $u := \frac{x_y}{s_{av}}$ 、 $s_{av}$  は平均の島サイズ、 $y_{av}$  は平均ギャップ長である。

ところで、大きい有限である  $\hat{R}$  において  $X$  はどのような形を取るのだろうか。このことを調べるためには、 $X - \Phi$  ( $\hat{R} \rightarrow \infty$ ) を求める必要がある。この量が  $\hat{R}$  と  $\hat{\theta}$  のべきで表わせるなら、 $X - \Phi \sim \hat{R}^{-\chi_1} \hat{\theta}^{-\alpha_1}$  ( $\hat{R} \rightarrow \infty$ ) のようになるであろう。ここで  $\chi_1$  と  $\alpha_1$  は、それぞれ、 $X - \Phi$  に関する静的指数と動的指数である。 $\hat{R} \rightarrow \infty$  のとき  $X - \Phi$  は零に近づくので、 $\chi_1 > 0$  である。一方、もし  $\hat{\theta} \rightarrow \infty$  においても  $\hat{R} \rightarrow \infty$  と同じ極限に  $X$  が落ち着くのなら、 $\alpha_1 > 0$  である。

筆者はギャップ長  $y_s$  の数値誤差の影響を調べ、島サイズ分布  $N_s$  への誤差伝播を検討した [9]。その結果、捕獲係数  $\sigma_s$  を求めるために必要な  $y_s$  に関する方程式 (5) に現れる数値積分の誤差を適切に制御すれば、この誤差伝播は軽微であることを示した。この際、方程式 (5) において、拡散蒸着比が  $\hat{R} \approx 10^8$  であり、非常に大きい値を用いている。したがって、 $X - \Phi$  に対する上記の推論が正しければ、この方程式に含まれる  $x_y$  を  $\Phi$  及びその補正項によって表現できるため、数値積分の必要がなくなる。速度方程式 (2) の数値計算では、それぞれの島サイズに対応する  $10^2$  個の  $y_s$  を時間ステップ毎に計算する必要があるため、結果として、積分が不要になることは計算量の削減になる。

そこで、本報文では  $X$  について  $\hat{R} \rightarrow \infty$  における漸近解析を行うことで、極限 (8) へどのように近づくかを近

似的な解析解によって見いだす。但し、捕獲過程が主要である蒸着時間(または、被覆密度)、すなわち、捕獲期間に議論を限定することにする。

なお、(1) 解析を容易にするために次元解析を行うことによる変数の通減および捕獲期間の見積、(2)  $\hat{R} \rightarrow \infty$  における  $x_y$  の近似的な解析解の計算、(3) 数値計算で得た  $x_y$  と近似解析解の比較、(4) 近似解析解の改良、によって本報文は構成される。

## 2 次元解析

次元解析は、物理における関係式が次的に斉一である要請を用いて問題を解析する方法である。この解析方法における Buckingham の  $\Pi$  定理 [10] の適用は、関係式を無次元量で構成し、取り扱う変数の通減や変数分離を可能にする。そこでこの章では、薄膜初期成長に関する 2 種類の研究方法である KMC シミュレーションと速度方程式に関してモノマー密度に関する次元解析を行い、得られた 2 つの無次元量を関連づけることで、速度方程式の解として得られる量の関数形について知見を得る。次に、従来の研究 [5, 6, 7, 8] と同様に、速度方程式の関数形を KMC シミュレーションによって検証するため、Blackman と Mulheran によって得られた結果 [6] との比較を行う。

まず KMC に関して次元解析を行う。格子点あたりに存在するモノマー数  $N_1$  は、単位時間あたりに格子点に入射する蒸着モノマー数  $J$ 、隣接した格子点へモノマーが拡散的に移動する遷移確率  $D$ 、蒸着時間  $t$  によって変化する [5, 6, 7, 8]。このことを式で書くと、

$$N_1 = F(J, t, D). \quad (9)$$

これらの量の次元は、 $[N_1] = 1$ 、 $[J] = [D] = T^{-1}$ 、 $[t] = T$  である。ここで  $T$  は時間の次元であり、KMC における独立した次元は  $T$  のみである。

時間の次元に対応する独立変数を  $J$  に選ぶと、 $\Pi$  定理より無次元の関係式、

$$\begin{aligned} N_1 &= \tilde{\rho}_1(Jt, D/J) \\ &= \tilde{\rho}_1(\theta, R) \end{aligned} \quad (10)$$

を得る。ここで  $\tilde{\rho}_1$  は無次元 2 変数関数であり、被覆率  $\theta := Jt$  と  $R := D/J$  を用いた。したがって、KMC のモノマー密度は  $\theta$  と  $R$  を変数とした 2 変数関数  $\tilde{\rho}_1$  によって表わすことができ、元の表式  $F$  より独立変数を一つ減らすことができた。

速度方程式では  $N_1$  に対応する量として基板の単位長さあたりにあるモノマー数  $\hat{N}_1$  を用いる。また、独立変数として、蒸着モノマーの入射密度  $\hat{J}$ 、拡散定数  $\hat{D}$ 、蒸着時間  $t$ 、長さの次元を持ったパラメータ  $a$  を選んだ。 $a$  は、点状島や基板上にあるモノマーに対して入射モノ

マーが直接附着する過程を特徴付けるパラメーターであり、本報文では格子間隔とする。このことを式で表すと、

$$\hat{N}_1 = \hat{F}(\hat{J}, \hat{D}, t, a). \quad (11)$$

これらの量の次元は、 $[\hat{N}_1] = L^{-1}$ 、 $[\hat{J}] = L^{-1} T^{-1}$ 、 $[\hat{D}] = L^2 T^{-1}$ 、 $[t] = T$ 、 $[a] = L$  である。ここで  $L$  は、長さの次元を表わす。したがって、独立した次元は  $L$  と  $T$  の 2 つである。

独立した 2 つの次元に対応する変数に  $\hat{J}$  と  $\hat{D}$  を選んで  $\Pi$  定理を用いることで、無次元量の関係式、

$$\hat{R}^{1/3} \hat{N}_1 = \hat{\rho}_1(\hat{R}^{1/3} \hat{\theta}, a \hat{R}^{-1/3}) \quad (12)$$

を得る。ここで被覆密度  $\hat{\theta} := \hat{J}t$ 、蒸着・拡散比  $\hat{R} := \hat{D}/\hat{J}$  を用いた。

さて、KMC に関する量と速度方程式に関する量の関係は、 $a$  が格子間隔であることに注意して、

$$N_1 = a \hat{N}_1, \quad (13)$$

$$J = a \hat{J}, \quad (14)$$

$$D = \hat{D}/a^2, \quad (15)$$

$$\theta = a \hat{\theta}, \quad (16)$$

$$R = \hat{R}/a^3 \quad (17)$$

である。これらの関係と式 (12) を使うと

$$\begin{aligned} N_1 &= a \hat{R}^{-1/3} \hat{\rho}_1(\hat{R}^{1/3} \hat{\theta}, a \hat{R}^{-1/3}) \\ &= R^{-1/3} \hat{\rho}_1(R^{1/3} \theta, R^{-1/3}) \end{aligned} \quad (18)$$

または、同等な無次元量の関係式、

$$R^{1/3} N_1 = \hat{\rho}_1(R^{1/3} \theta, R^{-1/3}) \quad (19)$$

を得る。したがって  $R^{1/3} \theta$  と  $R^{-1/3}$  を変数とする 2 変数無次元関数、および、 $R$  のべきの積によって KMC によるモノマー密度が表現できることを示している。

ここで無次元量である  $R$  の数値的な大きさについて調べてみよう。成膜において有効な  $R$  は、 $10^5 \leq R \leq 10^9$  の範囲にある。したがって、 $R^{-1/3} < 0.03 \ll 1$  であり非常に小さい。ここで極限  $\lim_{R \rightarrow \infty} \hat{\rho}_1(R^{1/3} \theta, R^{-1/3}) = \rho_1(R^{1/3} \theta)$  が存在し、 $R^{-1/3} \leq 0.03$  で  $\hat{\rho}_1(R^{1/3} \theta, R^{-1/3}) \approx \rho_1(R^{1/3} \theta)$  であると仮定しよう [11]。これは、 $\rho_1 = R^{1/3} N_1$  対  $R^{1/3} \theta$  でプロットすると、異った  $R$  について KMC の結果が一つの曲線に沿って並ぶことを意味する。

文献 [6] の KMC による結果を  $R^{1/3} N_1$  対  $R^{1/3} \theta$  によってプロットしたものが図 1 である。 $R^{1/3} N_1$  は実線に沿って並んでおり、 $N_1 = R^{-1/3} \rho_1(R^{1/3} \theta)$  で表わせることが確かめられた。したがって、ここで得た関数形をもつ  $\rho_1$  が得られるような速度方程式を構築すれば良い\*1。

\*1 具体的な速度方程式は、付録 A に記載した。

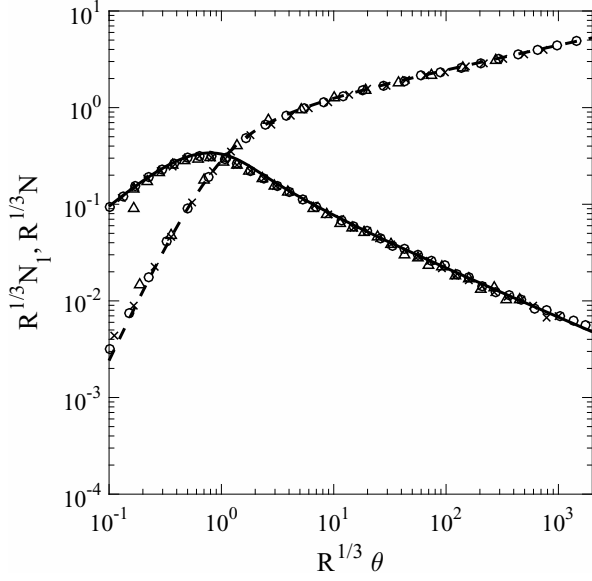


Fig.1 Scaled KMC monomer density  $R^{1/3}N_1$  and island density  $R^{1/3}N$  as function of  $R^{1/3}\theta$  for three values of  $R$  ( $0.5 \times 10^5$  ○;  $0.5 \times 10^6$  ×;  $0.5 \times 10^7$  △) [6]. Lines are numerical solutions of the reduced rate equations for scaled monomer density  $\rho_1$  (full line) and scaled island density  $\rho$  (broken line).

ところで、 $R^{-1/3} = a\hat{R}^{-1/3} \ll 1$  なので、 $\hat{\rho}_1$  の第二引数依存性を無視することは  $a$  を無視することでもある。したがって、入射モノマーの島や基板上モノマーへの直接付着を無視することができる。

同様な次元解析と KMC との比較 (図 1 破線) を行うことで、島密度  $N$  について  $N = R^{-1/3}\rho(R^{1/3}\theta)$  を得ることができる。まとめると、

$$N_1 = R^{-1/3}\rho_1(R^{1/3}\theta), \quad (20)$$

$$N = R^{-1/3}\rho(R^{1/3}\theta). \quad (21)$$

ここで  $\rho_1$  と  $\rho$  は速度方程式から得る一変数関数である。

なお、これ以降は格子間隔を単位にとり ( $a = 1$ )、KMC に関する量と「 $\wedge$ 」のついた速度方程式に関する量を区別しないことにする。

続いて、次元解析の結果と  $N_1$  および  $N$  に関するスケール則を使って、捕獲過程が主要である蒸着時間\*2  $T := R^{1/3}\theta$  の範囲を見積る。今後このような蒸着時間の範囲を捕獲期間と呼ぶことにする。

捕獲が主要な過程になるときにはモノマーに比較して島が多く、かつ、島が基板を埋めつくすほどではない。島密度がモノマー密度と同程度の時間を  $T_1$ 、島が基板を埋めつくす時間を  $T_2$  とすると、捕獲期間は  $T_1 \ll T \ll T_2$  であらわすことができる。定義から、 $T_1$  は  $N_1(T_1) \approx N(T_1)$  を満す。スケール則 (付録 A)

\*2 誤解のない限り、今後、 $T$  を蒸着時間と呼ぶ。

から  $N_1 \approx R^{-1/3}T^{-1/2}$  および  $N \approx R^{-1/3}T^{1/4}$  であるから、 $T_1 \approx 1$  になる。また、島が基板を埋めつくすとは、 $N(T_2) = 1$ 、すなわち、格子点全てが島によって占められるということである。この結果、 $T_2 \approx R^{4/3}$  になる。結局、捕獲期間は  $1 \ll T \ll R^{4/3}$  になる。なお被覆率については  $R^{-1/3} \ll \theta \ll R$  であり、 $R \rightarrow \infty$  の極限では  $0 < \theta < \infty$  なので、被覆率  $\theta$  の全ての範囲が捕獲期間になる。一方、 $T$  は  $1 \ll T < \infty$  になって上限がなくなる。

このように  $R$  を大きくすることで、蒸着時間  $T$  に対して捕獲期間を広げることができる。次章では、この捕獲期間で局所累積サイズに対して漸近解析を行い、どのように極限に近づくかを近似的に求める。

### 3 局所累積サイズ $x_y$ の漸近解析

ギャップ長  $y$  をもつ島が核生成した被覆率  $\theta_y$  から  $\theta > \theta_y$  までに捕獲したモノマーの累積数、すなわち、局所累積サイズ  $x_y$  は積分

$$x_y = \int_{\theta_y}^{\theta} RN_1(\theta') \frac{2l_1(\theta')}{l^2(\theta')} \tanh \frac{y}{2l_1(\theta')} d\theta' \quad (22)$$

になる。

さて、2章の次元解析の結果から、

$$N_1 = R^{-1/3}\rho_1(R^{1/3}\theta), \quad (23)$$

$$N = R^{-1/3}\rho(R^{1/3}\theta), \quad (24)$$

$$l_1 = R^{1/3}\eta_1(R^{1/3}\theta), \quad (25)$$

$$l = R^{1/3}\eta(R^{1/3}\theta), \quad (26)$$

を示すことができる。ここで  $\rho_1$  と  $\rho$ 、 $\eta_1$ 、 $\eta$  は一変数無次元関数で、還元速度方程式 (A.6) – (A.10) を解くことで求められる。これらの関係を用いて、無次元関数とスケールしたギャップ長  $Y := y/y_{av} = R^{-1/3}\rho y$  で  $x_y$  を書きなおすと、

$$x_y = \int_{T_y}^T \rho_1 \frac{2\eta_1}{\eta^2} \tanh \left[ \frac{Y}{2\rho(T)\eta_1} \right] dT' \quad (27)$$

になる。ここで、 $\rho_1$  と  $\eta_1$ 、 $\eta$  は積分変数  $T' := R^{1/3}\theta'$  の関数である。一方、積分内では  $\rho(T)$  は定数として取り扱われる。また  $T_y = R^{1/3}\theta_y$  である。 $\theta_y$  の定義より  $y = R^{1/3}/\rho(T_y)$  であり、 $T_y$  について解くと  $T_y = \phi_{T_y}(y/R^{1/3}) = \phi_{T_y}(Y/\rho(T))$  になる。ここで  $\phi_{T_y}$  は 1 変数無次元関数である。したがって  $T_y$  も  $Y$  と  $T$  だけの関数であることが示された。

結局、 $x_y$  は  $T$  と  $Y$  の関数として表すことができ、拡散蒸着比  $R$  は  $T = R^{1/3}\theta$  を通してのみ現われる。したがって二つの極限  $R \rightarrow \infty$  と  $\theta \rightarrow \infty$  に関して、 $x_y$  は同じ極限を持つ。

蒸着時間  $T$  を大きくしたときの振舞いが見通せるように、式 (27) の積分変数を変更しよう。 $u = T'/T$  とす

ると、

$$x_y(Y, T) = T \int_{\phi_Y}^1 \rho_1(Tu) \frac{2\eta_1(Tu)}{\eta^2(Tu)} \times \tanh \left[ \frac{Y}{2\rho(T)\eta_1(Tu)} \right] du \quad (28)$$

$$\phi_Y(Y, T) := T_y/T \quad (29)$$

と表わせる。

以上の結果から、平均サイズ  $s_{av}$  によってスケールした局所累積サイズ  $X(Y, T)$  は、

$$\begin{aligned} X(Y, T) &:= \frac{x_y}{s_{av}} \\ &= \frac{T}{s_{av}} \int_{\phi_Y}^1 \rho_1(Tu) \frac{2\eta_1(Tu)}{\eta^2(Tu)} \\ &\quad \times \tanh \left[ \frac{Y}{2\rho(T)\eta_1(Tu)} \right] du. \end{aligned} \quad (30)$$

$s_{av} = \frac{\theta - N_1}{N} = \frac{T - \rho_1}{\rho}$  なので [12]、

$$\begin{aligned} X(Y, T) &= \frac{\rho(T)}{1 - \rho_1(T)/T} \int_{\phi_Y}^1 \frac{\rho_1(Tu)}{\eta^2(Tu)} (2\eta_1(Tu)) \\ &\quad \times \tanh \left[ \frac{Y}{2\rho(T)\eta_1(Tu)} \right] du \end{aligned} \quad (31)$$

となる。

次に、 $R \rightarrow \infty$  における  $X(Y, T)$  の漸近解析を行い、 $X$  に関する近似的な解析解を得よう。

捕獲期間における蒸着時間の下限を  $T_c \gg 1$  とする。 $u$  に関する積分範囲は  $\phi_Y \leq u \leq 1$  なので、その下限  $\phi_Y$  が  $\phi_Y > T_c/T$  の制限の下で、被積分関数内の  $\rho_1$  と  $\eta_1$ 、 $\eta$  を捕獲期間の関数形  $f(Tu) \approx T^p u^p$  (付録 A 参照) で表すことができる。被覆率  $\theta$  が有限、すなわち、 $\theta > 0$  ならば、 $R \rightarrow \infty$  で  $T \rightarrow \infty$  になる。したがって、この極限では  $\phi_Y > 0$  であり、積分範囲の下限について制限はなくなる。そこで、大きい有限の  $R$  (または  $T$ ) についてもこの条件が満たされると仮定し、 $\rho_1(T)/T \ll 1$  ( $T \gg 1$ ) を用いて、

$$\begin{aligned} X(Y, T) &\approx 2\rho(T)\eta_1(T) \frac{\rho_1(T)}{\eta^2(T)} \\ &\quad \times \int_{\phi_Y}^1 u^{-r+2\alpha\eta+\alpha} \tanh \left[ \frac{Y}{2\rho(T)\eta_1(T)} u^{-\alpha} \right] du \\ &= \frac{Y \rho_1(T)}{\ell \eta^2(T)} \int_{\phi_Y}^1 u^{-r+2\alpha\eta+\alpha} \tanh[\ell u^{-\alpha}] du. \end{aligned} \quad (32)$$

捕獲期間において  $0 \approx 1 - \rho_1/\eta^2$  が成立し、 $r = 2\alpha\eta = 1/2$  なので、

$$X(Y, T) \approx \frac{Y}{\ell} \int_{\phi_Y}^1 u^\alpha \tanh[\ell u^{-\alpha}] du = \frac{Y}{\ell} \Psi(\ell, \phi_Y; \alpha) \quad (33)$$

となる。ここで  $\ell := Y/(2\rho(T)\eta_1(T))$  と定義した。積分した結果は無次元関数  $\Psi(\ell, \phi_Y; \alpha)$  で表わされ、助変数として核生成の長さに関する動的指数  $\alpha$  を持っている。

$\ell$  について極限をとると、

$$\frac{Y}{\ell} \Psi(\ell, \phi_Y; \alpha) \approx \begin{cases} Y(1 - \phi_Y) (\ell \rightarrow 0) \\ \frac{1}{1+\alpha} \frac{Y}{\ell} (1 - \phi_Y^{1+\alpha}) (\ell \rightarrow \infty) \end{cases} \quad (34)$$

になる。以降、評価を簡単にするために、付録 B の式 (B.9) から、 $T \rightarrow \infty$  の極限  $\phi_Y = T_y/T = \theta_y/\theta \approx Y^{-4} = Q_Y$  を使うことにする。このことから上記の極限は、

$$\frac{Y}{\ell} \Psi(\ell, \phi_Y; \alpha) \approx \begin{cases} Y(1 - Q_Y) = \Phi (\ell \rightarrow 0), \\ \frac{1}{1+\alpha} \frac{Y}{\ell} (1 - Q_Y^{1+\alpha}) (\ell \rightarrow \infty), \end{cases} \quad (35)$$

であり、 $T \rightarrow \infty$ 、すなわち、 $R \rightarrow \infty$  で  $\ell \rightarrow 0$  ( $\because \rho, \eta_1 \rightarrow \infty$ ) なので、近似式 (33) は、 $T \rightarrow \infty$  で  $\Phi(Y) = Y - Y^{-3}$  の極限を得る。これは、Amar らによる結果 (8) と一致する。

さて、 $\tanh z \approx z - z^3/3$  ( $z \ll 1$ ) に注意して  $\Psi$  の被積分関数を  $\ell$  でテーラー展開した後、項別積分すると、

$$\Psi(\ell, Q_Y; \alpha) \approx \ell(1 - Q_Y) - \frac{\ell^3}{3(1 - 2\alpha)} (1 - Q_Y^{1-2\alpha}). \quad (36)$$

したがって、

$$\begin{aligned} X &\approx \frac{Y}{\ell} \Psi \approx \tilde{\Phi}_\ell \\ &= Y(1 - Q_Y) - \frac{\ell^2}{3(1 - 2\alpha)} Y(1 - Q_Y^{1-2\alpha}) \\ &= Y(1 - Q_Y) - \frac{1}{3} \frac{B^2(T)}{1 - 2\alpha} Y^3 (1 - Q_Y^{1-2\alpha}) \end{aligned} \quad (37)$$

になる。ここで  $B$  は式 (A.5)、すなわち、 $B = (2\rho\eta_1)^{-1}$  である。スケーリング則より  $B^2 = [(2\rho\eta_1)]^{-2} \approx T^{-2(q+\alpha)} = T^{-\alpha_1}$  なので、第二項は  $T^{\alpha_1}$  に反比例する。この項の動的指数  $\alpha_1 := 2(q + \alpha) = 3/4 = 0.75$  であり、島密度と核生成の長さの動的指数の和を 2 倍したものになっている。

以上の結果から、 $T \rightarrow \infty$  における  $X$  の  $T$  および  $Y$  依存性は、

$$\begin{aligned} X &\approx \tilde{\Phi}_\ell \\ &= Y(1 - Q_Y) - \frac{1}{3} \frac{\tilde{A}}{1 - 2\alpha} \frac{Y^3 (1 - Q_Y^{1-2\alpha})}{T^{\alpha_1}} \end{aligned}$$

になる。ここで  $\tilde{A} = B^2(T)T^{\alpha_1}$  であり、スケーリング則が成立している捕獲領域  $T > T_c$  では  $\tilde{A}(T > T_c) = A$  である定数  $A$  で表わせるので、結局  $\tilde{\Phi}_\ell$  は、

$$\tilde{\Phi}_\ell = Y(1 - Q_Y) - \frac{1}{3} \frac{A}{1 - 2\alpha} \frac{Y^3 (1 - Q_Y^{1-2\alpha})}{T^{\alpha_1}} \quad (38)$$

となる。

この章では蒸着時間が捕獲期間内であるときに以下の仮定をすることで、 $X$  の漸近解  $\tilde{\Phi}_\ell$  を得た；

1.  $X$  の被積分関数を捕獲期間の関数形で表わすことができる。

2.  $\ell \ll 1$  であり、 $\ell$  による被積分関数の展開が妥当である。
3. 大きい  $\ell$  が、有限な  $T$  においても  $\phi_Y \approx Q_Y$  である。

次章では  $x_y$  の数値解を示し、その結果と式 (38) と比較して、上記仮定の妥当性を検討する。

#### 4 数値計算結果

式 (27) に基づいて局所累積サイズ  $x_y$  の数値計算を行うために、プログラミング言語として MATLAB を用いた。まず、数値微分式に基づく可変次数積分器 (ode15s) によって速度方程式 (A.6) と (A.7) を積分し、蒸着時間  $0 < T \leq 1.6 \times 10^5$  の範囲で  $\rho_1$  と  $\rho$  を得た。

蒸着時間について適応刻み幅で計算した  $\rho_1$  と  $\rho$  を密出力を使って内挿し、積分 (27) を数値的に実行した。この際スケールしたギャップ長  $Y$  については、 $1 \leq Y \leq 4$  を等分した 20 点で計算した。蒸着時間  $T$  については  $T_0 = 100$ 、 $T_n = 2^n T_0$  とし、非負整数の  $n$  について  $0 \leq n \leq 10$  の 11 点で計算した。この結果のうち、 $T = 100, 400, 1600, 6400, 25600, 102400$  ( $n = 0, 2, 4, 6, 8, 10$ ) について、スケールした局所累積サイズ  $X := x_y/s_{av}$  を  $Y$  に対してプロットしたものが図 2 である。なお、 $T_n \geq 6400$  (すなわち  $n \geq 6$ ) の  $X$  は太い実線と重なっている。この結果から、 $T$  の増加に従って、太い実線で描かれた  $\Phi(Y) = Y - Y^{-3}$  に  $X$  が漸近することを確認できた。

漸近する様子を定量的に観察するため、 $X_n := X(Y, T_n)$  に関する差分、 $\Delta X_n := X_n - X_{n-1}$  を  $Y$  についてプロットしたものが図 3 である。このプロットでは  $T_n$  が大きくなるほど  $\Delta X_n$  は減少している。また、各  $n$  に対する  $\Delta X_n$  のグラフは同じ形で、等間隔で下方に平行移動している。縦軸が対数軸であることに注意すると、 $r > 1$  があって  $r\Delta X_n \approx \Delta X_{n-1}$  になっている。つまり、隣接する  $n$  の間では  $\Delta X_n$  が比例関係にあることが解る。

この比例関係を満たすような  $X$  の関数形を求めよう。 $X$  が  $\Phi$  に漸近するので、 $X_n = \Phi + d_n$  とすると  $\lim_{n \rightarrow \infty} d_n = 0$  である。 $\Delta X_n = d_n - d_{n-1}$  なので、 $r\Delta X_n \approx \Delta X_{n-1}$  は  $r(d_n - d_{n-1}) \approx d_{n-1} - d_{n-2}$  となる。結局、 $n$  に依存しない  $C$  を用いて、 $d_n \approx Cr^{-n}$  になる。この結果から、 $X_n \approx \Phi + Cr^{-n}$  を得る。 $T$  と  $n$  の関係から  $n = \ln(T/T_0)/\ln 2$  なので、

$$X \approx \Phi + C \left( \frac{T}{T_0} \right)^{-\frac{\ln r}{\ln 2}}.$$

なお、 $C$  は  $Y$  に依存してよい。また  $\Phi_1 := CT_0^{\frac{\ln r}{\ln 2}}$  とすると、

$$X \approx \Phi + \frac{\Phi_1}{T^{\frac{\ln r}{\ln 2}}} \quad (39)$$

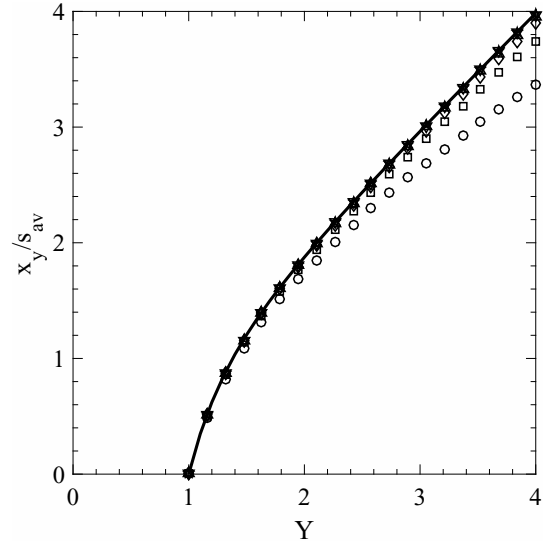


Fig.2 Numerical result of scaled cumulative local size as function of  $Y$  for six values of  $T = R^{1/3}\theta$  (100 ○; 400 □; 1600 ◇; 6400 △; 25600 ▽; 102400 ☆). Full line is  $Y - Y^{-3}$  or the asymptotic limit of  $x_y/s_{av}$  as  $R \rightarrow \infty$ .

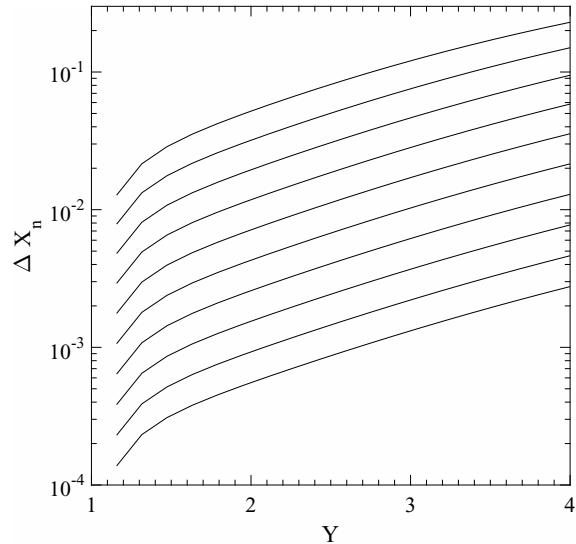


Fig.3 Difference of scaled cumulative local size  $\Delta X_n$  versus  $Y$  for ten deposition times ( $T = 200, 400, 800, 1600, 3200, 6400, 12800, 25600, 51200, 102400$  – plots top to bottom).

であり、近似解  $\tilde{\Phi}_1$  と同じ形をしている。図 3 から  $r$  を求めると  $r \approx 1.7$  であり、 $\ln r / \ln 2 \approx 0.77$  である。これは、 $\tilde{\Phi}_1$  の  $\alpha_1 = 0.75$  と 3% で一致する。

#### 4.1 解析解と数値解の比較

前項の最後における数値計算結果の解析から、 $T$  または  $R \rightarrow \infty$  の極限における  $\Phi(Y) = Y - Y^{-3}$  への接近の仕方  $X - \Phi$  は  $X - \Phi \sim -T^{-0.77}$  であり、3% の誤差を認めると、数値解の動的指数が解析解  $\tilde{\Phi}_\ell$  の指数に一致することが確認できた。数値計算の結果  $x_y/s_{av}$  と  $\tilde{\Phi}_\ell$  につい

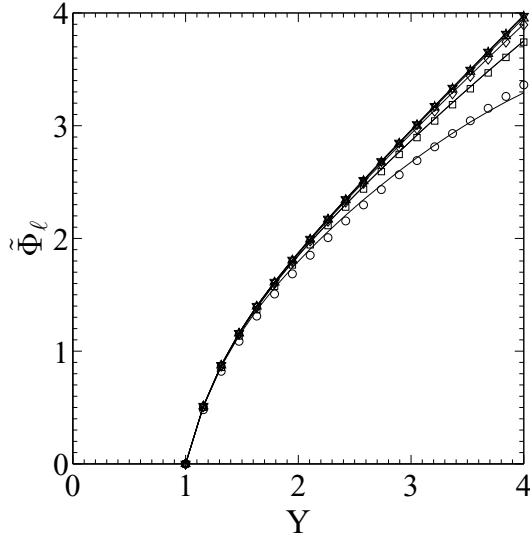


Fig.4 Asymptotic solution  $\tilde{\Phi}_\ell$  from Eq.(38) (solid line) calculated using Taylor expansion  $\tanh z \simeq z - z^3/3$  for the integrand along with the corresponding numerical results from Fig.2 (symbols). Lines are analytical solution from  $\tilde{\Phi}_\ell$  with various deposition time.

てプロットしたものを図4に示した。 $T \geq 400$ における数値解と解析解の一致は良い。一方、 $T = 100$ については、 $Y < 2.5$ で $\tilde{\Phi}_\ell > X$ 、 $Y > 3$ で $\tilde{\Phi}_\ell < X$ の顕著な差があり、 $Y = 3$ 近辺で $\tilde{\Phi}_\ell$ と $X$ の大小関係が逆転している。特に、 $Y > 3$ において $X$ よりも $\tilde{\Phi}_\ell$ が小さくなる原因は、 $Y \rightarrow \infty$ について $\tilde{\Phi}_\ell$ が $\tilde{\Phi}_\ell \sim -Y^3/T^{\alpha_1}$  ( $Y \rightarrow \infty$ )であり、負に発散するためである。この発散は $\ell = Y/(2\rho\eta_1)$ によるテイラー展開の妥当性 $\ell \ll 1$ が損われたために生じている。

以上のことから近似解析解 $\tilde{\Phi}_\ell$ (式(38))は、 $T \geq 400$ では $x_y/s_{av}$ に対する有効な近似である一方、 $T = 100$ では改善を要することが解った。

## 5 議論

前章で漸近解 $\tilde{\Phi}_\ell$ には2つの改善が必要であることが解った。一つは $T = 100$ における計算結果との不一致であり、もう一つは $Y \rightarrow \infty$ における負への発散である。特に後者の発散については、 $\ell \ll 1$ が満たされないことが原因になっている。そこで $\ell \ll 1$ の制約がない近似を行う。

式(33)における $\Psi(\ell, \phi_Y; \alpha)$ に対して、核生成の長さ $\eta_1$ の動的指数 $\alpha = 1/8$ に関する展開を項別積分した近似解 $\tilde{\Phi}_\alpha$ を考える。

この近似は $\eta_1$ がゆっくり変化するときに有効であり、

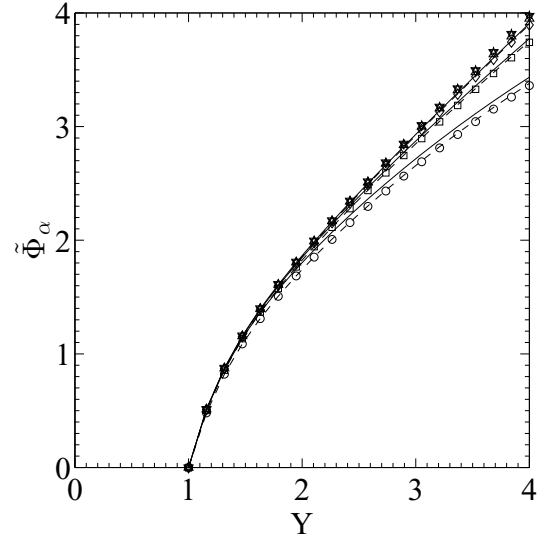


Fig.5 Asymptotic solution using the expansion for the integrand in dynamical exponent of the nucleation length for three deposition times ( $T=100, 400, 1600$ ) along with the corresponding numerical results from Fig.2 (symbols). Solid lines are the expression from Eq.(40). Broken lines are the expression from Eq.(41) as improvement of Eq.(40).

$\tilde{\Phi}_\ell$ で仮定した $\ell \ll 1$ の制約は無く、

$$\begin{aligned} X &\simeq \frac{Y}{\ell} \Psi(\ell, Q_Y; \alpha) \\ &\simeq \tilde{\Phi}_\alpha \\ &= \frac{Y}{\ell} (1 - Q_Y) \tanh \ell \\ &\quad - \alpha \frac{Y}{\ell} [(1 - Q_Y) + Q_Y \ln Q_Y] m(\ell), \end{aligned} \quad (40)$$

$$m(\ell) := \tanh \ell - \ell(1 - \tanh^2 \ell)$$

を得る。ここで $\tilde{\Phi}_\ell$ と同様に、 $\phi_Y \simeq Q_Y$ の置き換えを行った。また $\ell$ に関する極限は、

$$\begin{aligned} \tilde{\Phi}_\alpha &\simeq \begin{cases} Y(1 - Q_Y) & (\ell \rightarrow 0) \\ (1 - \alpha)/B & (\ell \rightarrow \infty) \end{cases} \\ \therefore m(\ell) &\simeq \begin{cases} O(\ell^3) & (\ell \rightarrow 0) \\ 1 - 4\ell e^{-2\ell} & (\ell \rightarrow \infty) \end{cases} \end{aligned}$$

なので、 $T \rightarrow \infty$ で極限(8)に一致し、 $\ell \rightarrow \infty$ 、すなわち、 $Y \rightarrow \infty$ において $\tilde{\Phi}_\alpha \simeq (1 - \alpha)B^{-1}$ であるため発散は無い。この結果をプロットしたものが図5の実線である。

$T = 100$ では先程議論した $\tilde{\Phi}_\ell$ の場合よりも $X$ と $\tilde{\Phi}_\alpha$ の差は大きい。しかしながら、 $Y \geq 1$ において $\tilde{\Phi}_\alpha$ はいつも $X$ より大きく、 $\tilde{\Phi}_\ell$ の $Y = 3$ 近くで見られたような大小関係の逆転はない。ここで式(40)を見直してみると、 $\phi_Y \simeq Q_Y = Y^{-4}$ という近似が行われている。 $\phi_Y = T_y/T$ に関する数値計算結果である図6から、



$\phi_Y \geq Q_Y$  であることが解る。したがって、 $\tilde{\Phi}_\alpha$  の第一項で入れ替え  $Q_Y \rightarrow \phi_Y$  を行うと、入れ換える前と後の関係は、 $\frac{Y}{\ell}(1 - Q_Y) \tanh \ell > \frac{Y}{\ell}(1 - \phi_Y) \tanh \ell$  である。結局、この入れ替えは式 (40) の減少を招くので、 $\tilde{\Phi}_\alpha$  に関する近似の改善が期待できる。そこで  $Q_Y$  を  $\phi_Y$  に戻すと、

$$\begin{aligned} X &\simeq \tilde{\Phi}_\alpha \\ &= \frac{Y}{\ell}(1 - \phi_Y) \tanh \ell \\ &\quad - \alpha \frac{Y}{\ell} [(1 - \phi_Y) + \phi_Y \ln \phi_Y] m(\ell), \quad (41) \\ m(\ell) &:= \tanh \ell - \ell(1 - \tanh^2 \ell) \end{aligned}$$

が得られる。この結果をプロットしたものが図 6 の破線である。 $T = 100$  において数値計算結果 (シンボル) と  $\tilde{\Phi}_\alpha$  の差は減少し、 $T \geq 400$  と同程度に両者を一致させることができた。

ここで  $\tilde{\Phi}_\ell$  を導出した際の 3 つの仮定について吟味しよう。 $T = 100$  のとき、もしくは厳しく見ると  $T < 400$  のときには  $\ell \ll 1$  の仮定は満たされない。また、 $\tilde{\Phi}_\alpha$  でおこなった議論により、おなじ時間領域で  $\phi_Y \simeq Y^{-4}$  も満たされない。然しながら、第一の仮定である「 $X$  の被積分関数は、積分領域内において捕獲期間の関数形によって表すことができる」は満たされている。なぜなら  $\phi_Y$  の数値解を用いた  $\tilde{\Phi}_\alpha$  が  $T \geq 100$  において数値解と良い一致を示しているからである。この第一の仮定はスケールされた局所累積サイズに関する積分 (33) を導出するために行なった仮定だった。このことから、少なくとも  $T \geq 100$  では第一の仮定が成立し、積分 (33) は  $X$  の良い近似になる。したがって、積分の評価方法を工夫することで近似的解析解の精度改善が期待できる。例えば部分積分を使用した漸近展開は系統的に精度を改善できる [13]。

## 6 まとめ

本報文ではスケールした局所累積サイズ  $X = x_y/s_{av}$  がスケールされたギャップ長  $Y$  と蒸着時間  $R^{1/3}\theta$  の 2 変数関数として表現されることを次元解析によって確認し、 $R \rightarrow \infty$  と  $\theta \rightarrow \infty$  によって  $x_y$  が同じ極限に導かれることを示した。更に  $R \rightarrow \infty$  において漸近解析を行い、 $X \simeq I := 1/B \int_{\phi_Y}^1 u^\alpha \tanh(YBu^{-\alpha}) du$  が見い出された。ここで  $B$  は  $R^{1/3}\theta$  のみで表わせる単調減少関数、 $\alpha$  は核生成の長さに関する動的指数である。 $I$  の被積分関数を  $YBu$  で展開して項別積分した近似解と数値解の双方で、漸近極限  $\Phi(Y) = Y - Y^3$  ( $R \rightarrow \infty$ ) に対する補正の蒸着時間依存性  $X - \Phi(Y) \sim (R^{1/3}\theta)^{-3/4}$  が見い出された。また、 $R^{1/3}\theta \geq 400$  において数値解と解析解の一致は良い。 $R^{1/3}\theta < 400$  における不一致は、積分  $I$  を  $\alpha$  で展開して評価することによって改善した。

## 付録 A 還元速度方程式とスケーリング

第 2 章で導入した  $\rho_1$  と  $\rho$  の具体的な関数形を得るために、Amar らによる従来の研究 [7] で得られている下記の速度方程式、

$$\frac{d}{d\theta} N_1 = 1 - R \frac{N_1}{\ell^2}, \quad (A.1)$$

$$\frac{d}{d\theta} N = \frac{R N_1}{2 \ell^2}. \quad (A.2)$$

を採用する。なお、第 2 章「次元解析」で考察したように、基板上にあるモノマーや島に入射モノマーが直接付着する過程を無視している。ここで、

$$l_1 = \frac{1}{2} \left( \frac{R}{N_1} \right)^{1/4}, \quad (A.3)$$

$$l = l_1 \sqrt{1 - \frac{\tanh B \langle Y^3 \rangle^{1/2}}{B \langle Y^3 \rangle^{1/2}}}, \quad (A.4)$$

$$B = (2Nl_1)^{-1}, \quad (A.5)$$

である。 $\langle Y^3 \rangle$  は  $Y$  の三乗平均であり、 $\langle Y^3 \rangle \simeq 1.6$  である [6, 7]。また中間変数である  $l_1$  と  $l$  に関する関係式 (A.3) と (A.4) は、Amar ら [7] によって得られた関係を用いた。特に式 (A.4) は、 $\theta \rightarrow 0$  の時の極限  $l \simeq l_1$  [7] と、 $\theta \rightarrow \infty$  の極限  $l \simeq \sqrt{\langle Y^3 \rangle / 12} N^{-1}$  [6] を内挿した式になっている。

式 (23) と (24) を速度方程式に代入すると、

$$\dot{\rho}_1 = 1 - \frac{\rho_1}{\eta^2}, \quad (A.6)$$

$$\dot{\rho} = \frac{1}{2} \frac{\rho_1}{\eta_1^2}, \quad (A.7)$$

$$\eta_1 = \frac{1}{2} (\rho_1)^{-1/4}, \quad (A.8)$$

$$\eta = \eta_1 \sqrt{1 - \frac{\tanh B \langle Y^3 \rangle^{1/2}}{B \langle Y^3 \rangle^{1/2}}}, \quad (A.9)$$

$$B = (2\rho\eta_1)^{-1}, \quad (A.10)$$

となる。ここで  $f := df/d(R^{1/3}\theta) = df/dT$  である。また、 $\eta_1$ ,  $\eta$  は  $R^{1/3}\theta$  の関数であり、それぞれ、無次元化した核生成の長さ と 捕獲長である。結局、独立変数が  $T := R^{1/3}\theta$  である無次元化した密度  $\rho_1$  と  $\rho$  の速度方程式 (A.6) と (A.7) が得られた。

式 (A.6)–(A.9) の数値解として得た  $\rho_1$  と  $\rho$  を、さきほど示した KMC の結果である図 1 と比較しよう。3 通りの  $R$  についてプロットした KMC の結果 (記号○、×、△) と、速度方程式の数値解  $\rho_1$  (実線) と  $\rho$  (破線) の曲線との一致は良い。このことから、速度方程式 (A.6) – (A.9) から得た  $\rho_1$  と  $\rho$  は KMC の結果を説明していると結論した。

### A.1 スケーリング則

$T \gg 1$  のとき、 $\rho_1$  と  $\rho$  の漸近解を求めよう。図 1 によると両対数プロットで直線になっているので、 $T$  に関するべき乗で表わせる。そこで、下記のように諸量が  $T$  に関するべき乗で表わせるとする。

$$\rho_1 \approx T^{-r}, \quad (\text{A.11})$$

$$\rho \approx T^q, \quad (\text{A.12})$$

$$\eta_1 \approx T^\alpha, \quad (\text{A.13})$$

$$\eta \approx T^{-\alpha_\eta}. \quad (\text{A.14})$$

なお、「極限における右辺の漸近解は左辺と同じ次元をもつが、1 のオーダーの無次元定数を無視している」関係を「 $\approx$ 」によって表わしている。 $T \rightarrow \infty$  の極限で  $B \rightarrow 0$  であることに注意すると、式 (A.9) は、

$$\eta \approx \sqrt{\frac{\langle Y^3 \rangle}{12}} \rho^{-1} \quad (\text{A.15})$$

である。速度方程式 (A.6)、(A.7) と中間変数の式 (A.8)、(A.15) にこれらの式を代入する。 $T \gg 1$  で  $|\dot{\rho}| \ll 1, \rho_1/\eta^2$  に注意すると、式 (A.6) は定常近似  $0 \approx 1 - \rho_1/\eta^2$  になるので、動的指数  $r, q, \alpha, \alpha_\eta$  は、

$$r = \frac{1}{2}, \quad (\text{A.16})$$

$$q = \frac{1}{4}, \quad (\text{A.17})$$

$$\alpha = \frac{r}{4} = \frac{1}{8}, \quad (\text{A.18})$$

$$\alpha_\eta = \frac{r}{2} = \frac{1}{4}. \quad (\text{A.19})$$

さて、Blackman と Mulheran [6] や、Amar ら [7] によって得られているモノマー密度と島密度のスケーリング則は、 $\theta \gg \theta_x \approx R^{-1/3}$  の極限で、それぞれ、

$$N_1 \approx R^{-1/2} \theta^{-1/2}, \quad (\text{A.20})$$

$$N \approx R^{-1/4} \theta^{1/4} \quad (\text{A.21})$$

である。これらの式と、式 (23)、(24) より、

$$R^{1/3} N_1 \approx R^{1/3} R^{-1/2} \theta^{-1/2} = (R^{-1/6} \theta^{-1/2}) = T^{-1/2}, \quad (\text{A.22})$$

$$R^{1/3} N \approx R^{1/3} R^{-1/4} \theta^{1/4} = (R^{1/12} \theta^{1/4}) = T^{1/4}. \quad (\text{A.23})$$

したがって、文献 [6, 7] によって得られた  $N_1, N$  を  $R^{-1/3}$  でスケールしたものと、本項で求めた無次元量に対するスケーリング則 (A.11)、(A.12) は、 $R$  に関する指数も含めて一致する。

### 付録 B 核形成時刻 $T_y$ とそのスケーリング

蒸着開始を  $\theta = 0$  としたとき、ギャップ長  $y$  を持つ核形成が生じる被覆率を  $\theta_y$  とする。この  $\theta_y$  は平均ギャップ長  $y_{av}(\theta)$  を用いて、

$$y = y_{av}(\theta_y) \quad (\text{B.1})$$

で定義される。つまり、平均ギャップ長が  $y$  であるような核生成が生じる被覆率として  $\theta_y$  は定義される。 $y_{av}(\theta) = 1/N(\theta) = R^{1/3}/\rho(R^{1/3}\theta)$  から、

$$y/R^{1/3} = 1/\rho(T_y), \quad (\text{B.2})$$

$$T_y := R^{1/3}\theta_y.$$

また、 $y = y_{av}Y = R^{1/3}Y/\rho(T)$  を式 (B.2) に代入し、 $Y$  について解くと、

$$Y = \rho(T)/\rho(T_y) \quad (\text{B.3})$$

を得る。この式から、 $Y = 1$  の時  $T_y = T$ 、 $Y \rightarrow \infty$  の時  $T_y \rightarrow 0$  を得る。また  $T_y \leq T$  であるので、 $0 \leq T_y \leq T$  が  $T_y$  の範囲になる。

スケーリング則 (A.12) と文献 [7] から  $\rho$  は、

$$\rho \approx \begin{cases} C_- T^{5/2} & (T \ll 1) \\ C_+ T^{1/4} & (T \gg 1) \end{cases} \quad (\text{B.4})$$

と表わすことができる。ここで  $C_- := \lim_{T \rightarrow 0} \frac{\rho(T)}{T^{5/2}}$ 、 $C_+ := \lim_{T \rightarrow \infty} \frac{\rho(T)}{T^{1/4}}$  である。この関係式を (B.3) に代入し、 $T$  を固定して  $T_y$  の変化について調べると、

$$Y = \rho(T)/\rho(T_y) \approx \begin{cases} \rho(T)/(C_- T_y^{5/2}) & (T_y \ll 1) \\ \rho(T)/(C_+ T_y^{1/4}) & (T_y \gg 1) \end{cases} \quad (\text{B.5})$$

となる。 $T_y$  について解くと、

$$T_y \approx \begin{cases} [\rho(T)/(C_+ Y)]^4 & (T_y \gg 1) \\ [\rho(T)/(C_- Y)]^{2/5} & (T_y \ll 1) \end{cases} \quad (\text{B.6})$$

になる。 $T$  を捕獲期間、すなわち、 $T \gg 1$  にとると  $\rho(T) \approx C_+ T^{1/4}$  になり、

$$T_y \approx \begin{cases} T Y^{-4} & (T_y \gg 1) \\ \left(\frac{C_+}{C_-}\right)^{2/5} T^{1/10} Y^{-2/5} & (T_y \ll 1) \end{cases} \quad (\text{B.7})$$

を得る。この  $T_y$  を  $T$  でスケールすると、

$$T_y/T = \phi_Y \approx \begin{cases} Y^{-4} & (\phi_Y \gg 1/T) \\ \left(\frac{C_+}{C_-}\right)^{2/5} T^{-9/10} Y^{-2/5} & (\phi_Y \ll 1/T) \end{cases} \quad (\text{B.8})$$

になる。この式の条件を  $Y$  で書くと、

$$\phi_Y \approx \begin{cases} Y^{-4} & (Y \ll T^{1/4}) \\ \left(\frac{C_+}{C_-}\right)^{2/5} T^{-9/10} Y^{-2/5} & (Y \gg T^{1/4}) \end{cases} \quad (\text{B.9})$$

になる。

図 6 に数値計算によって求めた  $\phi_Y = T_y/T$  対  $Y$  のプロットを示す。異った  $T$  に対応するシンボルは図 2 と同じである。 $T$  が大きくなるほど  $\phi_Y = Y^{-4}$  に一致する  $Y$  の範囲が広がっていきのが解る。また、 $Y$  が大きいところで  $\phi_Y$  の傾きが緩やかになり、式 (B.9) と定性的に一致する。

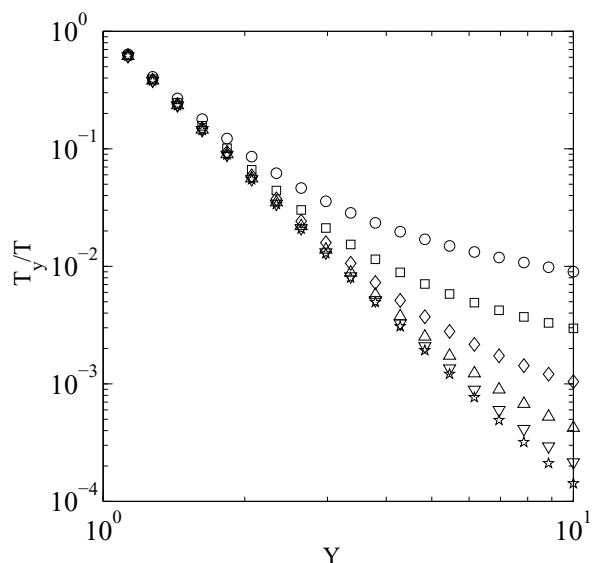


Fig.6 Scaled nucleation time  $T_y/T$  versus  $Y$  for six deposition times (symbols are same as these in Fig.2).

- [9] 中井：“一次元薄膜初期成長における結晶核間隔の数値解とその誤差評価”，電気通信大学紀要, **27**, pp. 37–43 (2015).
- [10] E. Buckingham: “On physically similar systems; illustrations of the use of dimensional equations”, *Phys. Rev.* **4**, pp. 345–376 (1914).
- [11] G. I. Barenblatt: “Scaling”, *Cambridge Texts in Applied Mathematics*, Cambridge University Press (2003).
- [12] J. G. Amar, F. Family and P.-M. Lam: “Dynamic scaling of the island-size distribution and percolation in a model of submonolayer molecular-beam epitaxy”, *Phys. Rev. B*, **50**, 12, pp. 8781–8797 (1994).
- [13] 江沢：“漸近解析入門”，岩波書店 (2013).

## 文献

- [1] D. L. González, A. Pimpinelli and T. L. Einstein: “Spacing distribution functions for the one-dimensional point-island model with irreversible attachment”, *Phys. Rev. E*, **84**, 011601 (2011).
- [2] G. Zinsmeister: “Theory of thin film condensation. part B: Solution of the simplified condensation equation”, *Thin Solid Films*, **2**, pp. 497–507 (1968).
- [3] G. Zinsmeister: “Theory of thin film condensation. part C: Aggregate size distribution in island films”, *Thin Solid Films*, **4**, pp. 363–386 (1969).
- [4] G. Zinsmeister: “Theory of thin film condensation. part D: Influence of a variable collision factor”, *Thin Solid Films*, **7**, pp. 51–75 (1971).
- [5] G. S. Bales and D. C. Chrzan: “Dynamics of irreversible island growth during submonolayer epitaxy”, *Phys. Rev. B*, **50**, 9, pp. 6057–6067 (1994).
- [6] J. A. Blackman and P. A. Mulheran: “Scaling behavior in submonolayer film growth: A one-dimensional model”, *Phys. Rev. B*, **54**, pp. 11681–11692 (1996).
- [7] J. G. Amar, M. N. Popescu and F. Family: “Self-consistent rate-equation approach to irreversible submonolayer growth in one dimension”, *Surface Science*, **491**, 12, pp. 239 – 254 (2001).
- [8] J. G. Amar and M. N. Popescu: “Asymptotic capture number and island size distributions for one-dimensional irreversible submonolayer growth”, *Phys. Rev. B*, **69**, 033401 (2004).