

点状島初期成長におけるサイズ分布のWidom型スケーリング解析

中 井 日 佐 司

Scaling analysis for submonolayer growth of point islands based on Widom scaling law

Hisashi NAKAI

Abstract

I found new scaling law for island-size distribution (ISD) of a point-island model of irreversible nucleation and growth through Widom scaling used for analysis of critical phenomena. Entire families of curves depending on R for the ISD results of kinetic Monte Carlo simulations by Amar's group in spatial dimension $d = 2, 3$ and 4 were analyzed based on the new scaling law, where R is the ratio of the monomer diffusion constant to the deposition rate. As the analysis result, peak exponent ϕ , shift exponent γ , scaled Bartelt-Evans singular point S_c and scaling function Φ_d were obtained. Finally, phenomenological and universal features of the scaling function were discussed.

Keywords: island size distribution, scaling form, asymptotic behavior

1 はじめに

不可逆な核形成初期成長では島とよばれる微結晶が空間内に点在し、下記のような機構によって成長している [1]。

1. 微結晶の材料であるモノマーが空間内に一定流速密度 J で蒸着時間 t のあいだ供給され、島やモノマーに直接付着するか、これらの島や他のモノマーに捕獲されるまで空間を拡散定数 D で拡散する。
2. ダイマー以上で形成されたクラスターである島は空間内を移動しない。
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、供給されるモノマーによって、または、空間を拡散するモノマーによる直接付着・捕獲によって増加し、分解はしない。そのため、成長時間の経過に従って島のサイズは増加する。

このような初期成長過程の研究手法として、Kinetic Monte-Carlo 法 (KMC) がある。KMC では上記に示したモノマー供給事象か空間内拡散事象の選択と選択した事象に対する発生時間間隔の双方を確率的にとりあつかい、不可逆核生成初期成長をシミュレーションする。この KMC によって、モノマー密度 N_1 や島密度 N 、捕獲領域のサイズ依存性 B_s などについて薄膜形成の実験結果と比較し得る結果を得ている [2, 3, 4, 5]。特に KMC

で得られたモノマーを s 個含む島のサイズ密度 (Island Size Distribution, ISD) N_s に関して、動的スケーリング仮説 [2, 6, 7]、

$$N_s = \theta s_{av}^{-2} f(s/s_{av}) \quad (1)$$

に基づいた解析がおこなわれてきた。ここで、 $\theta := Jt$ は被覆率であり、平均島サイズ $s_{av} := \sum_{s=2} s N_s / N$ である。また、1 変数関数 f は他のパラメータによらない普遍関数である。このスケーリング仮説 (1) を用いた解析例として、蒸着時間に渡って島の半径が変化しないように単純化した点状島成長過程について、モノマー拡散の空間次元 $d = 4$ の ISD に対する Shi らの KMC データを図 1 に示す [8]。この図は、KMC から得た N_s からスケーリング仮説 (1) に基づいて f を得るプロット $(X, Y) = (s/s_{av}, N_s s_{av}^2 / \theta)$ である。この図より、拡散蒸着比 $R := D/J$ の増加にともなって f のピークが高くなり、ピークの幅は狭くなる。加えて、ピーク位置は左側から $s/s_{av} = 3/2$ に近づいていく。更に $s/s_{av} < 3/2$ において、 f は図 1 に破線で示した Bartelt-Evans (B-E) 特異性と呼ばれる発散特異性、

$$f \approx (S_c - s/s_{av})^{-\nu} \quad (2)$$

に R の増加に伴なって漸近する*1。ここで、 $S_c = 3/2$ を

*1 本論文では漸近関係を示す等号として、以下の 3 つを用いる。
(1) ' \approx ': 右辺は左辺の漸近解を必要な近似の下で完全にしめしている、(2) ' \approx ': 右辺において左辺の漸近解における無次元の数因子を無視するが、物理量の依存性は完全である、(3) ' \sim ': 右

スケールした B-E 特異点、 $\nu = 1/2$ を B-E 特異指数とよぶことにする。

以上のように漸近極限として f の B-E 特異性が示された一方で、図 1 で示された $10^5 \leq R \leq 10^9$ の範囲で観察される B-E 特異性へ漸近する過渡の様子である漸近的挙動は動的スケールリング仮説 (1) によっては説明できない。そのため、スケールリング仮説 (1) では表わせない漸近的挙動を補うために、文献 [8] では f のピークの高さ f_{pk} と S_c を基準としたピーク変位 u_{pk} の R 依存性を解析し、それぞれ、 $f_{pk} \sim R^\phi$ と $u_{pk} \sim R^\gamma$ として、KMC からピーク指数 $\phi = 0.08$ とシフト指数 $\gamma = 1/5$ を得ている。

以上の検討から、この仮説における関数 f は 1 変数普遍関数と言うよりも、 s/s_{av} に加えて R も独立変数として含んだ 2 変数関数として取扱うべきである。

そこで本報文では、動的スケールリング仮説 (1) とは異なった、ピーク指数 ϕ とシフト指数 γ 、B-E 特異点 S_c を陽に含む新たなスケールリング則を導出し、 ϕ と γ の関係であるスケールリング関係式を求める。次にこのスケールリング則に基いたスケールリング解析によって、空間次元 $d = 4, 3, 2$ に対する先行研究 [4, 8, 9] から得られた ISD の $R \rightarrow \infty$ における漸近的挙動に対する ϕ と γ 、 S_c 、スケールリング関数 Φ_d を得て、更に異なった空間次元 d 間の Φ_d が互いに相似であることを調べる。これらの結果から、異なる空間次元における点状島成長初期成長過程の ISD が、スケールリング関数を共有する同じ現象のクラスに属することを議論する。

2 Widom 型スケールリング則の同定

この節では、まず、本報文で ISD に適用する新たなスケールリング則である Widom 型スケールリング則を導出する。スケールした ISD f にこのスケールリング則を適用した時に得られる特異性や、特徴量として現われる指数間の関係式であるスケールリング関係式もここで与えられる。続いて R に関する変化が他の次元より著しい空間次元 $d = 4$ における f の KMC データ [8] の特徴を述べ、Widom 型スケールリング則の特徴量 B-E 特異点 S_c とピーク指数 ϕ 、シフト指数 γ 、スケールリング関数 Φ_4 の抽出を試みる。その後、 $d = 4$ で得た知見を用いて、他の空間次元 $d = 3, 2$ に関してこのスケールリング則を検証する。

2.1 Widom 型スケールリング則の導出

前項で述べたように、動的スケールリング仮説に基づいてスケールされた ISD である f は、 R の増加に伴って B-E 特異性 (2) に近づく傾向はあるものの、その漸近的

挙動を表わすことができない。したがって、 s/s_{av} の 1 変数関数と言うよりも、 R も変数として加え、更に S_c を陽に導入した 2 変数関数 $f = f(s/s_{av} - S_c, R)$ としてスケールリング関数 f を記述するべきである。

このような関数形の下で f に対する $R \rightarrow \infty$ の極限におけるスケールリング則として、自己相似型スケールリング則 [10, 11, 12, 13] が適用できる場合がある。このスケールリング則は独立変数 y を持つ量 Q に関して、漸近の程度を示すもう一つの独立変数 L が $L \rightarrow \infty$ の時に、 $Q(y, L) \approx L^\alpha \Phi[L^\beta y]$ ($L \rightarrow \infty$) の関数形をもつものである。ここで α と β はスケールリング指数、 Φ は独立変数以外にパラメータをもたない 1 変数関数でスケールリング関数と呼ばれる。更に Q が陽に特異点 y_c を持つとき、臨界現象における熱力学量のスケールリング解析で用いられる Widom のスケールリング [13, 14, 15, 16]、 $Q \approx L^\alpha \Phi[L^\beta(y - y_c)]$ で書くことができる。

Q がこのような関数形を持つとき、 L に依存しない解 $Q^* = Q^*(y - y_c)$ に対する微分方程式は $\partial Q^*/\partial L = 0$ である。この方程式からスケールリング関数の微分方程式は $\Phi'^*(u) + (\alpha/\beta)\Phi^*(u)/u = 0$ であり、解 $\Phi^*[L^\beta(y - y_c)] = CL^{-\alpha}|y - y_c|^{-\alpha/\beta}$ (C は積分定数) になる。結局、 $Q^* \approx L^\alpha \Phi^*[L^\beta(y - y_c)] \approx |y - y_c|^{-\alpha/\beta}$ になる。 α と β が同符号の場合、この解は $y = y_c$ で特異指数 $\nu_Q = \alpha/\beta$ で発散する特異性を持つ。

ここで Q にスケールリング関数 f 、 y にスケールしたサイズ $S := s/s_{av}$ を対応させ、 L と α 、 β には、それぞれ、 R とピーク指数 ϕ 、シフト指数 γ を対応させ、

$$f(S, R) \sim R^\phi \Phi_4[R^\gamma(S - S_c)] \quad (3)$$

のスケールリング則を得る。ここで、B-E 特異点 S_c は y_c に対応している。特異点を陽に含んでいるこの f に関するスケールリング則を Widom 型スケールリング則と呼ぶことにする。なお、 $Q^* \approx |y - y_c|^{-\alpha/\beta}$ に対応して、 R に依存しない $f \approx |S_c - S|^{-\phi/\gamma}$ になる。この結果を $R \rightarrow \infty$ における f と解釈して、B-E 特異指数 ν は、

$$\nu = \phi/\gamma \quad (4)$$

になる。

さて、 $R \rightarrow \infty$ の極限で、サイズ s の連続近似に基づいた ISD 速度方程式の準流体力学近似の解 [17] として得られる f は、

$$f(S, R \rightarrow \infty) \approx |S - S_c|^{-\nu_F} \quad (S < S_c), \quad (5)$$

$$\nu_F = (2z - 1)/z \quad (6)$$

であり、準流体力学近似からも B-E 特異指数 ν_F が得られた。ここで z は s_{av} の動的指数であり、 $z := \lim_{\theta \rightarrow \infty} d \ln s_{av} / d \ln \theta$ で定義される。従って、平均サイズの被覆率依存性は $s_{av} \sim \theta^z$ ($\theta \rightarrow \infty$) になる。更に二つ

辺では左辺の漸近解のうち、興味のあるものの依存性のみを示している。

の B-E 特異指数 ν と ν_F を等しいとにおいて、スケーリング指数 ϕ と γ 、 ν 、動的指数 z 間のスケーリング関係式、

$$\nu = \phi/\gamma = (2z - 1)/z = \nu_F \quad (7)$$

を得る。

以上の結果から、スケーリング関係式 (7) によって特異性指数 ν は $\nu = (2z - 1)/z$ と表わせる。今回とりあつかっている 3 つの空間次元で平均サイズの動的指数 $z = 2/3$ で共通であるため、 $\nu = 1/2$ である。このことから、本報文中で取り扱う 3 つの次元で $\phi/\gamma = 1/2$ 、即ち、ピーク指数はシフト指数の半分であるとする。

2.2 $d = 4$ における ISD スケーリング関数 f の特徴およびスケーリング則の検証

文献 [8] において空間次元 $d = 4$ の f に関する KMC データには下記の特徴がある。なお、以下ではスケールしたサイズの変位 $\tau := S - S_c$ とする。

- A1. S が特異点に近い、すなわち、 $|\tau|$ が小さい時、 S_c より小さい位置に有限なピークを持つ。 R の増加に伴ってピークは成長し、その位置は左から S_c に漸近して行く一方で、B-E 特異性による発散は除かれている。またこの発散が除かれている区間は R の増加に従って減少する。
- A2. 上記とは対照的に、 $|\tau|$ が大きい場合は f が B-E 特異性 (図 1 の破線) に漸近している。また、 R の増加とともに B-E 特異性に漸近する範囲は拡大する。
- A3. ISD は平均場近似の速度方程式の数値解と非常によく一致している。

以上のような特徴を踏まえ、特異点 S_c とスケーリング指数 ϕ 、 γ 、スケーリング関数 Φ_4 を求め、KMC のデータについてスケーリング則 (3) が満たされているか否かを検証する。このスケーリング則に f が従う場合、 τ や R に関する様々な $f(S, R)$ のデータを座標

$$(X, Y) = [R^\gamma \tau, f(S, R)/R^\phi] \quad (8)$$

によってプロットすることで、全てのデータはスケーリング関数 $\Phi_4(X)$ に沿う。この性質を用いて、プロットが単一の曲線に沿うようにスケーリング指数 ϕ 、 γ や特異点 S_c を選ぶことで、 Φ_4 を見出すことができる。このような解析方法をスケーリング解析と言う [18, 19]。なお、本報文中では、スケーリング解析を行なう際に用いるスケーリング指数および特異点をスケーリングパラメータと呼ぶことにする。

空間次元 $d = 4$ では、サイズ特異点 S_c に既知の $3/2$ を使用し、異なる R においてピークの高さとその位置が一致するように、それぞれ、 ϕ と γ を調整することでスケーリングプロットを作成した。なお、各パラメータは

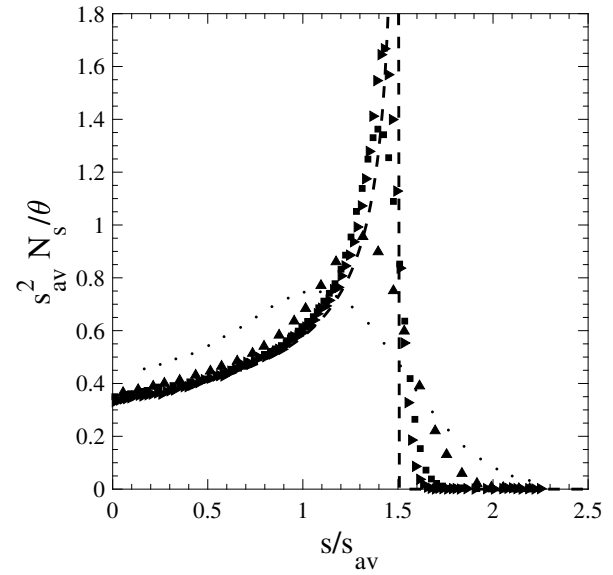


Fig.1 Scaled KMC island-size distribution $s_{av}^2 N_s / \theta$ as function of s/s_{av} for $d = 4$ [8] ($R = 10^5/8$; \circ , $10^7/8$; \blacktriangle , $10^9/8$; \blacksquare , and $10^{10}/8$; \blacktriangleright). Broken line is Bartelt-Evans (B-E) singularity curve, $(4 \times 3/2)^{-1/2} (s/s_{av} - 3/2)^{-1/2}$.

文献 [8] を出発点とした。得られたパラメータを表 1 に示す。

$d = 4$ における KMC データである図 1 について、スケーリング則 (3) に基いてスケールしたプロットが図 2 である。横軸は $X := R^{1/6} (s/s_{av} - 3/2)$ 、縦軸 $Y := s_{av}^2 N_s / (\theta R^{1/12})$ である。 $R_h = 8R = 10^5$ より大きい R_h をもつ 3 つの KMC データは散らばりをもって同一曲線上に沿っている。ピークにおける偏差の相対値 $\Delta f_{pk}/f_{pk}$ によってスケーリング関数の精度を見積ると 1% であり、この結果からこの曲線がスケーリング関数 Φ_4 を示していると判断した。

2.3 スケーリング関数の性質

前項で得たスケーリング関数 $\Phi_4(X)$ は、以下の特徴を持っている。

- B1. 位置 $X^* = -2.35$ に極大をもった滑らかに変化する関数で発散特異性はない。また、半値幅 $X_{hw} = 8.0$ である。横軸 $X < -X_{hw}$ の領域で B-E 特異性 $Y \approx |X|^{-1/2}$ (図 2 破線) に沿い、 $X > 0$ ではその増加に従って Y が X のべきよりも速やかに零に近づいている。
- B2. $-X_{hw} < X < X^*$ では、 $|X|^{-1/2}$ から著しく外れ、発散特異性はない。

上記特徴 B1 によって、 $\Phi_4(X)$ は $X = X^* < 0$ に極大を持つなめらかな関数である。 $X = R^\gamma (S - S_c)$ であるので、図 1 のように横軸を S に取ったときのピーク位置 S^* は、 $S^* - S_c = -R^{-\gamma} |X^*|$ になり、 R の増加とともに

Table 1 Scaling parameters for ISD.

d	S_c	ϕ	γ	α	β	Scaling plot	KMC Data
4	3/2	1/12	1/6	1/4	1/2	Fig. 2	[8]
3	1.55	1/18	1/9	1/6	1/3	Fig. 4	[9]
2	1.65	1/48	1/24	1/16	1/8	Fig. 6	[4]

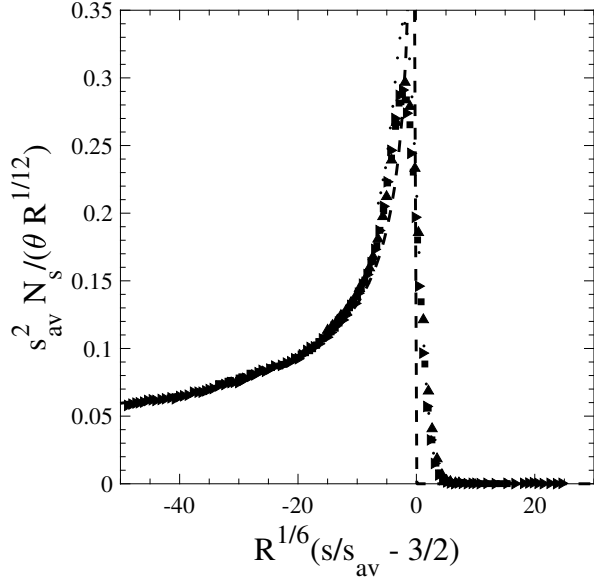


Fig.2 Scaled KMC island-size distribution $s_{av}^2 N_s / (\theta R^{1/12})$ as function of $R^{1/6}(s/s_{av} - 3/2)$ for $d = 4$. Broken line is B-E singularity curve, $(4 \times 3/2)^{-1/2} R^{-1/12} (s/s_{av} - 3/2)^{-1/2}$. Symbols are same as these in Fig 1.

$f(S, R)$ のピーク S^* は左から S_c に近づく。スケールリング則 (3) より、ピークの高さ f_{pk} は $f_{pk} \sim R^\phi \Phi_4(X^*) \approx R^\phi$ で表わされる。このピーク位置と高さの挙動は図 1 と一致している。

また、特徴 B2 によって、 $S < S_c - X_{hw} R^{-\gamma}$ が B-E 特異性を示す範囲になる。結局、 $R \rightarrow \infty$ の極限ではこの範囲が $S < S_c$ になるため、 $0 < S < S_c$ の領域で特異性を示すことになり、極限 $R \rightarrow \infty$ で B-E 特異性 (2) を得る。

2.4 $d = 3, 2$ に関するスケールリング

空間次元 $d = 3, 2$ に関するスケールリング則の検証を図 3, 4、および、図 5, 6 に示す。 $d = 4$ も含めて、スケールリングパラメータとして表 1 を得た。なお、 $d = 3$ の各スケールリングパラメータは、Shi らによる結果 [9] を用いた。

一方、 $d = 2$ に関しては、これらのパラメータに関する先行研究がないため、以下のようにして決定した。(1) KMC データがスケールリング則に従うと仮定すると、

$f \sim R^\phi \Phi_2(R^\gamma \tau)$ で表わされ、 $S = S_c$ では、 $R^\phi \Phi_2(0)$ になる。(2) 図 5 によると、 R の増加に伴うピークの高さの変化は非常に小さい。したがって、 $S = S_c$ の KMC データは実効的に一定値 $C \Phi_2(0)$ (C は定数) になる。このことから R を変化させても同じ値になっている KMC データの交点の位置が S_c になる。そこで KMC データの交点を探し、 $S_c = 1.65$ を得た。また、この空間次元では、2 種類の被覆率 $\theta = 0.1, 0.5$ のデータが存在する。物理量の次元斉次性によって、本来、 f と Φ_d は引数も含めて無次元関数であるべきである。そこで、無次元量である平均サイズ $s_{av} \sim R^{1/3} \theta^{2/3} = (R\theta^2)^{1/3}$ を通して R が出現すると仮定すると、 R を $R\theta^2$ で置き換えることで、 θ にも関連したスケールリング則、

$$f(S, R\theta^2) \sim (R\theta^2)^\phi \Phi_2[(R\theta^2)^\gamma \tau] \quad (9)$$

が得られる。 $d = 2$ では、このスケールリング則に基づくスケールリングプロットとして、 $(X, Y) = [(R\theta^2)^\gamma \tau, f/(R\theta^2)^\phi]$ を採用した。 $d = 3, 2$ に関するスケールリングプロットを、それぞれ、図 4, 6 に示す。

まず $d = 3$ に関しては、 $R_h = 2dR = 10^5$ より大きいデータについて、2 つの KMC データが一つの曲線に沿っている。従ってこの曲線が Φ_3 を示していると判断した。 $d = 4$ の場合と同様に $\Delta f_{pk}/f_{pk}$ で Φ_3 の精度を見積ると 1% になり、 $d = 4$ と同じになった。一方 $d = 2$ では、他の次元と比較すると偏差が大きく、 $\Delta f_{pk}/f_{pk} = 3\%$ であった。この精度の範囲内でプロットの描く曲線が Φ_2 である。また、 R と θ が独立には出現せず、 $R\theta^2$ または $R^{1/2}\theta$ で現われると判断した。

以上の結果、それぞれの精度の下で、スケールされた ISD は空間次元 $d = 2, 3, 4$ に依存するスケールリングパラメータ (表 1) とスケールリング関数 Φ_d によって、

$$f(S, R\theta^2) \sim (R\theta^2)^\phi \Phi_d[(R\theta^2)^\gamma \tau], \quad (10)$$

$$\tau := s/s_{av} - S_c \quad (11)$$

のスケールリング則を満たすことが解った。ここで、 $d = 2$ の際に導入した θ も含むスケールリング則 (9) が $d = 3, 4$ でも成立するとした。

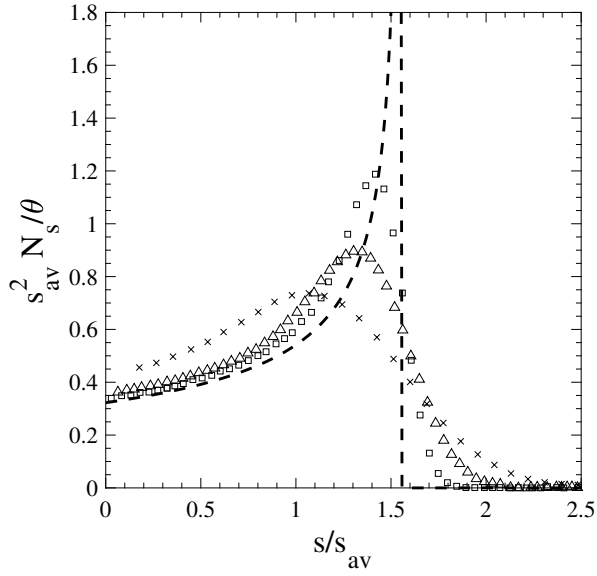


Fig.3 Scaled KMC island-size distributions $s_{av}^2 N_s / \theta$ as function of s/s_{av} for $d = 3$ [9] ($R = 10^5/6$; \times , $10^7/6$; \triangle , and $10^9/6$; \square). Broken line is B-E singularity curve, $(4 \times 1.55)^{-1/2} (s/s_{av} - 1.55)^{-1/2}$.

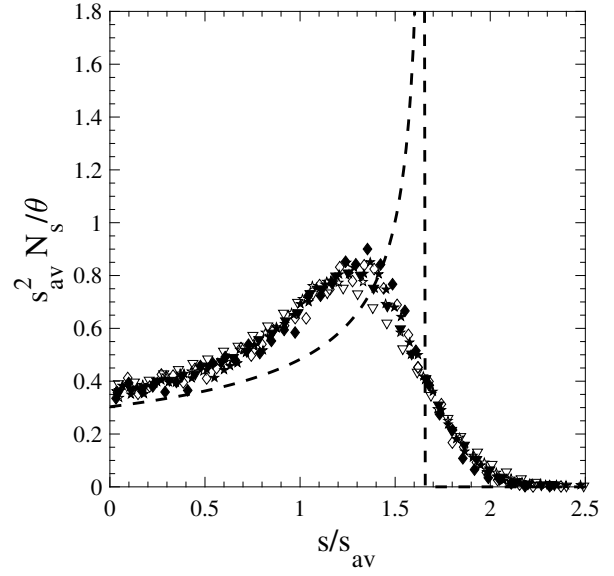


Fig.5 Scaled KMC island-size distribution $s_{av}^2 N_s / \theta$ as function of s/s_{av} for $d = 2$ [4] ($R = 10^7/4$; ∇ and \triangle , $10^8/4$; \star and \diamond , and $10^9/4$; \diamond and \blacklozenge , with open symbols (∇ , \star and \diamond) for $\theta = 0.1$, and close symbols (\blacktriangledown , \blackstar and \blacklozenge) are $\theta = 0.5$). Broken line is B-E singularity curve, $(4 \times 1.65)^{-1/2} (s/s_{av} - 1.65)^{-1/2}$.

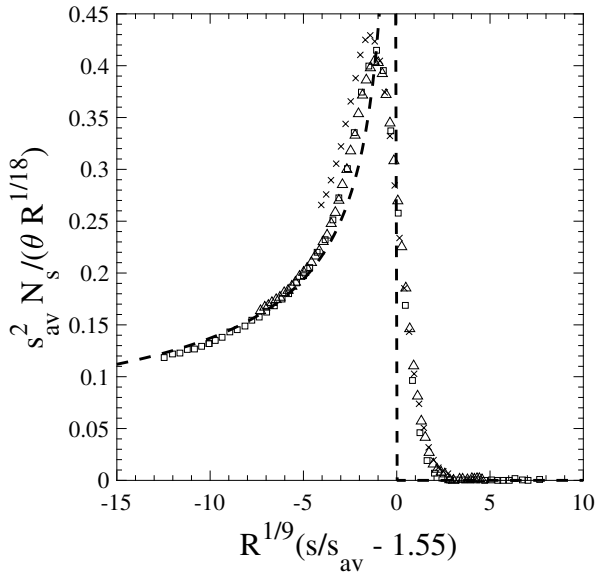


Fig.4 Scaled KMC island-size distribution $s_{av}^2 N_s / (\theta R^{1/18})$ as function of $R^{1/9} (s/s_{av} - 1.55)$ for $d = 3$. Broken line is B-E singularity curve, $(4 \times 1.55)^{-1/2} R^{-1/18} (s/s_{av} - 1.55)^{-1/2}$. Symbols are same as these in Fig 3.

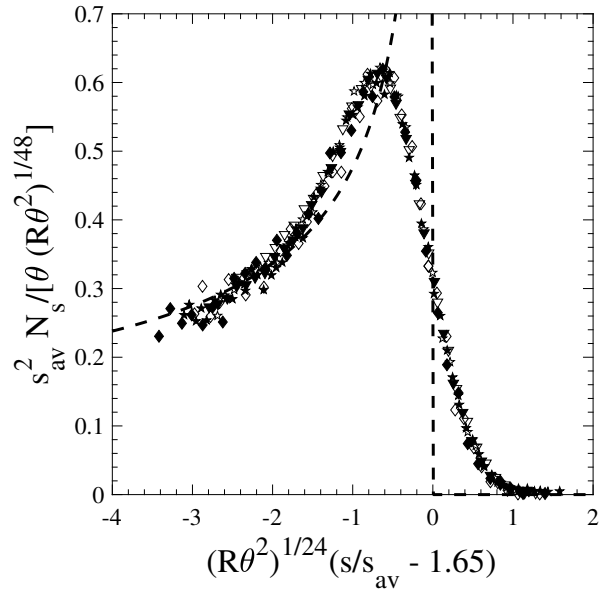


Fig.6 Scaled KMC island-size distribution $s_{av}^2 N_s / [\theta (R \theta^2)^{1/48}]$ as function of $(R \theta^2)^{1/24} (s/s_{av} - 1.65)$ for $d = 2$. Broken line is B-E singularity curve, $(4 \times 1.65)^{-1/2} (R \theta^2)^{-1/48} (s/s_{av} - 1.65)^{-1/2}$. Symbols are same as these in Fig 5.

2.5 スケーリングパラメータとスケーリング関数の空間次元依存性

この小節では、スケーリング解析から得られたスケーリングパラメータの空間次元依存性と、異った空間次元間のスケーリング関数相似性について述べる。

■**スケーリングパラメータ** 蒸着開始時 ($\theta = 0$) に発生した島のサイズ、すなわち、累積モノマー捕獲量 $x := R \int_0^\theta N_1(\theta') \sigma(\theta') d\theta'$ を用いて、B-E 特異点 S_c は $S_c = x/s_{av}$ であらわせる。サイズの離散性によるゆらぎを無視する準流体力学近似の下でサイズ s の島によるモノマー捕獲数 σ_s にサイズ依存性を無視した平均場近似 $\sigma(\theta)$ を用いたとき、定義より、 x は θ における最大サイズになる [20]。 $d = 4$ における S_c は、これら近似の下で求めた $2/3$ に一致している。一方、 $d = 3, 2$ では次元の減少に伴い、 S_c が増加する。

表 1 によると、スケーリング指数 ϕ と γ は d の減少に伴って減少する。特に、二次元基板上における点状島成長 ($d = 2$) の先行研究 [17, 21, 22] では、B-E 特異性に達する前に f が $f(S)$ の関数形に漸近して行く結論されている。これは、 $\phi = \gamma = 0$ に対応している。対照的に、本報文では非常に小さいが有限な $\phi = 1/48$ と $\gamma = 1/24$ を得た。

■**スケーリング関数とその相似性** $d = 4, 3, 2$ におけるスケーリング関数において、それぞれ、ピーク位置 $X^* = -2.4, -1.2, -0.65$ 、ピーク高さ $\Phi_d(X^*) = 0.29, 0.41, 0.60$ 、半値幅 $X_{hw} = 8.0, 4.0, 2.5$ を得た。従って、空間次元の減少にともなってピークは尖鋭化している。

一方、ピークやその位置、広がりには以上のように異なるものの、各次元のスケーリング関数 Φ_d は互いに良く似ている。そこで、スケーリング解析で得た Φ_d が相似変換 $\Phi_d(X) = A_{dd'} \Phi_{d'}(B_{dd'} X)$ で表わせることを確かめた。相似変換の結果を図 7 に示す。

この図では、 $d = 4$ とし、 $d' = 3, 2$ とした。 $d = 4$ と 3 の一致は非常に良い。 $d = 2$ では、 $-X_{hw}/4 < X < -X_{hw}/8$ における範囲でピークの尖鋭に伴う不一致が見られる以外は、良い一致が見られる。よって、 $d = 2$ における不一致がある範囲を除き、異なった次元 d の間でスケーリング関数 Φ_d が互いに相似であると判断した。

3 議論

この節では、前節までに得た結果からスケーリング関数 Φ_d に関して次元斉一性によって引数を検討し、 Φ_d が異なる空間次元 d の間で近似的に相似である前項の結果から d に依存しないスケーリング関数 Φ を持ったスケーリング則を示す。最後に、このスケーリング関数の持つ現象論的な特徴について議論する。

3.1 スケーリング関数に関する関数形の検討

これまで、各々の d について、スケーリング則 (10) を提示した。この関数形では、無次元関数である f および Φ に対して、左辺やその引数が無次元ではない ($[R] = L^{d+2}$ 、 $[\theta] = L^{-d}$ 、ここで、 L は長さの次元を示す)。そこで次元斉一性を陽に表すために、無次元量である s_{av} で書きなおす。実数 λ について、 $(R\theta^2)^{\lambda} = (R^{1/2}\theta)^{2\lambda/z} \sim s_{av}^{2\lambda/z}$ であるので、

$$f(S, s_{av}) \approx s_{av}^{2\phi/z} \Phi_d(s_{av}^{2\gamma/z} \tau) \quad (12)$$

$$=: s_{av}^{\alpha} \Phi_d(s_{av}^{\beta} \tau) \quad (13)$$

を得る。上式 2 番目の等号で、 R に関するスケーリング指数 ϕ と γ に対応する s_{av} に関するスケーリング指数を、それぞれ、 $\alpha := 2\phi/z$ と $\beta := 2\gamma/z$ で定義した。今回とりあつかっている空間次元 $d = 2, 3, 4$ では $z = 2/3$ である [4, 6, 8, 9, 23] ので、 $\alpha := 3\phi$ と $\beta := 3\gamma$ として、表 1 に示した。

スケーリング則 (13) において、サイズ s と累積モノマー捕獲量 x でスケーリング関数 Φ_d の引数を表わすと、 $X = s_{av}^{\beta} \tau = (s - x)/s_{av}^{1-\beta}$ である。この引数から、ピーク $\hat{s} \approx x$ の周辺で ISD が大きく変化するサイズ s の区間は、引数の分母 $s_{av}^{1-\beta}$ 程度になる。SID のピーク \hat{s} の周りでガウス分布にあてはめると ISD は $\sim \exp[-c(s - \hat{s})^2/s_{av}^{2(1-\beta)}]$ (c は無次元の正定数) で表わすことができ、島サイズの偏差 s_d が $s_d \approx s_{av}^{1-\beta} =: s_{av}^{\delta}$ であることが解る。ここで s_d の指数として $\delta = 1 - \beta$ を定義した。従って、 β の減少によって、 s_d の指数 δ は 1 に向って増加する。 $d = 4, 3, 2$ では、それぞれ、 $\beta = 1/2, 1/3, 1/8$ であり、次元の減少にともなって減少するため、 δ は増加する。この s_d に関する s_{av} 依存性から、 $s_{av} \rightarrow \infty$ の極限で空間次元が小さいほど島サイズのゆらぎが大きくなることを示しており、先行研究における空間次元に関したゆらぎの影響の議論 [24, 25, 26, 27] と一致している。

3.2 空間次元を跨ぐ普遍性

スケーリング則 (13) に基づいたスケーリング解析によって、 f が表 1 および、各スケーリング関数 Φ_d ($d = 2, 3, 4$) によって表わせることが解った。また、 $d = 2$ に関しては近似的にはあるが、スケーリング関数 Φ_d が互いに相似であることが確かめられた。つまり、異った d と d' 、 d'' におけるスケーリング関数 Φ_d と $\Phi_{d'}$ 、 $\Phi_{d''}$ は、

$$\Phi_d(X) = A_{dd'} \Phi_{d'}(B_{dd'} X)$$

$$\Phi_d(X) = A_{dd''} \Phi_{d''}(B_{dd''} X)$$

の関係にある。この時、第 1 式で $X \rightarrow (B_{dd'} X)$ 、第 2 式で $X \rightarrow (B_{dd''} X)$ と再定義すると、

$$\Phi_{d'}(X) = \Phi_d(X/B_{dd'})/A_{dd'}$$

$$\Phi_{d''}(X) = \Phi_d(X/B_{dd''})/A_{dd''}$$

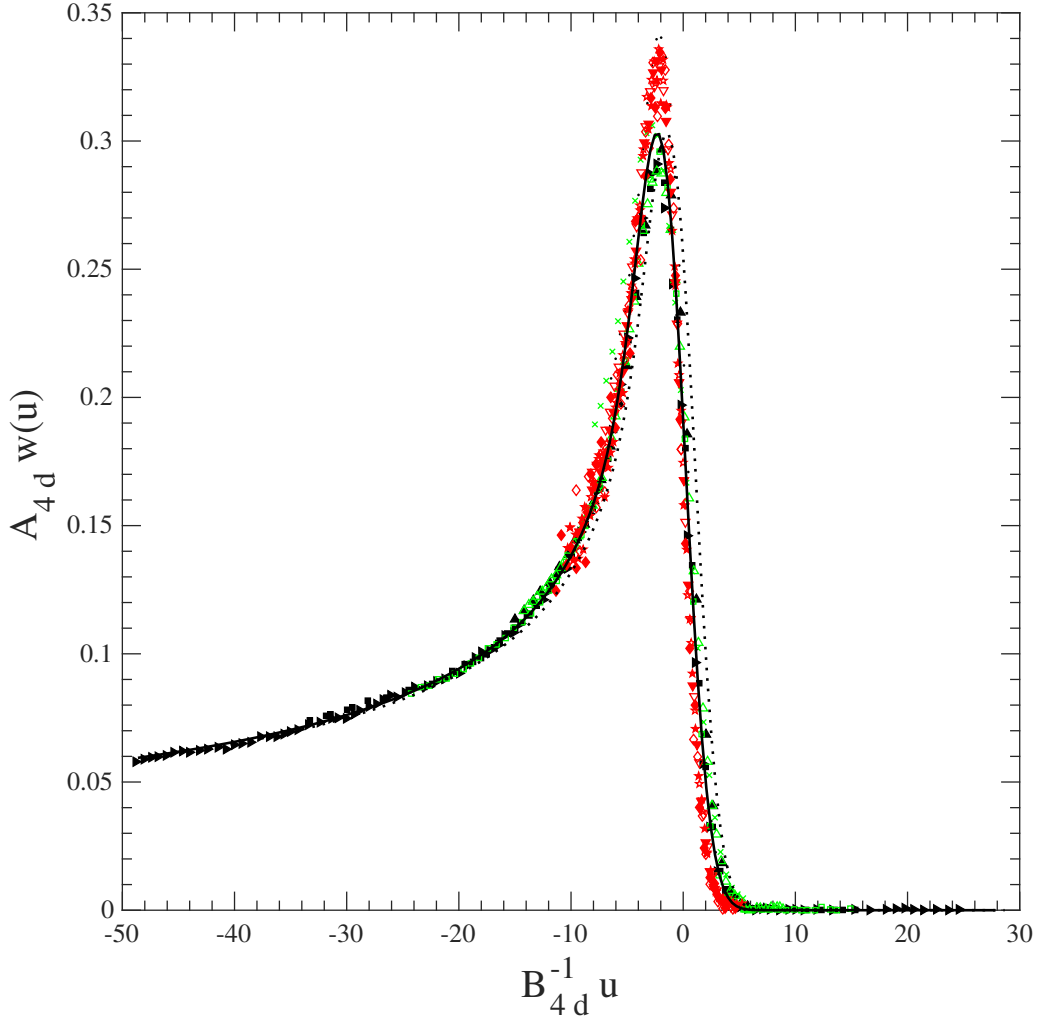


Fig.7 Scaled KMC island-size distribution $A_d w = A_d s_{av}^2 N_s / (\theta R^{\gamma/2})$ for $d = 4$ (black), 3 (green) and $A_d w = A_d s_{av}^2 N_s / [\theta (\theta^2 R)^{\gamma/2}]$ for $d = 2$ (red) as function of $B_{4d}^{-1} u = B_{4d}^{-1} R^\gamma [s/s_{av} - S_c]$ and $B_{4d}^{-1} u = B_{4d}^{-1} (\theta^2 R)^\gamma [s/s_{av} - S_c]$, respectively, where A_{4d} and B_{4d} are metric factors ($A_{43} = 0.71$, $B_{43} = 0.51$, $A_{42} = 0.54$, and $B_{42} = 0.30$) with which the two scaling functions Φ_4 and Φ_d are equal as $\Phi_4(X) = A_{4d} \Phi_d(B_{4d} X)$. Symbols are same as these in Fig 1, 3, and 5.

になる。この式で $\Phi_{d'}(X)$ と $\Phi_{d''}(X)$ はどちらも $\Phi_d(X)$ に相似であり、 d の依存性を考慮せず、 $\Phi_d = \Phi$ として良い。 $\mathcal{A}_{d'} = A_{d'}^{-1}$ 、 $\mathcal{B}_{d'} = B_{d'}^{-1}$ などとすると

$$\Phi_{d'}(X) = \mathcal{A}_{d'} \Phi(\mathcal{B}_{d'} X),$$

と書ける。従って、一般には、 $\Phi_d(X) = \mathcal{A}_d \Phi(\mathcal{B}_d X)$ と書くことができる。

以上の結果をスケーリング則 (13) に代入して、次元を跨いだスケーリング則

$$f(S, s_{av}) \simeq \mathcal{A}_d s_{av}^\alpha \Phi(\mathcal{B}_d s_{av}^\beta \tau), \quad (14)$$

$$N_s \simeq \mathcal{A}_d \theta s_{av}^{\alpha-2} \Phi(\mathcal{B}_d s_{av}^\beta \tau) \quad (15)$$

を得る。まとめると、

1. スケーリングパラメータである特異点 S_c とスケーリング指数 α 、 β は空間次元に依存する。

2. 一方、スケーリング関数 Φ は空間次元 d に依存しない普遍的な 1 変数関数である。
3. 以上のスケーリングパラメータとスケーリング関数を用いて、空間次元や系の詳細に依存する計量因子 \mathcal{A}_d と \mathcal{B}_d を用いた相似変換として、スケーリング則 (15) が構成される。

以上は、現象論的には「スケーリング則 (15) を通して、 $d = 2, 3, 4$ におけるスケールした ISD は ($d = 2$ では限定的であるものの) スケーリング関数 Φ を共有する同じクラスに属する」と解釈できる。

Φ の解析解を求めるために、スケーリング則 (15) を利用しよう。 α と β は空間次元に依存して変化する一方、 Φ は依存しない。したがって、一番簡単に解くことができる空間次元で Φ を求めれば良い。先に節 2.2 の特徴 A3 で述べたように、 $d = 4$ において、ISD は捕獲

数のサイズ依存性を無視した平均場近似による ISD の速度方程式に関する数値計算結果と非常によく一致する [8]。更に、 $R \rightarrow \infty$ の際に捕獲数の主要項 σ_4^* は、点状島の半径に対応するフィッティングパラメータ r_0 を用いて、 $\sigma_4^* \approx 4\pi^2 r_0^2$ であるので [23]、この項のみを残して捕獲数を定数として取り扱うと、Dubrovskii らによって得られた漸近解 [20]、

$$N_s \approx \frac{e^{-p^2}}{\sqrt{2\pi} \sqrt{R\sigma_4^*} (2x)^{1/4}} \int_0^\infty \frac{e^{-q^2-2pq}}{q^{1/2}} dq \quad (16)$$

で表わすことができる。ここで、 $p = (s-x)/\sqrt{2x} \approx s_{\text{av}}^{1/2}(S-S_c)$ である。 $s_{\text{av}}^2/\theta \sim s_{\text{av}}^{1/2} \approx x^{1/2}$ であり、次元解析から得られる $f \approx \sqrt{R\sigma_4^*} x^{1/2} N_s$ から、

$$f(S, x) \approx x^{1/4} e^{-p^2} \int_0^\infty \frac{e^{-q^2-2pq}}{q^{1/2}} dq \quad (17)$$

$$\approx s_{\text{av}}^{1/4} \varphi_4(p) \quad (18)$$

になる。ここで、 $\varphi_4(p) := e^{-p^2} \int_0^\infty \frac{e^{-q^2-2pq}}{q^{1/2}} dq$ は漸近解 (16) から得られたスケーリング関数である。

式 (17) をスケーリング則と解釈すると、スケーリング指数が $\alpha = 1/4$ 、 $\beta = 1/2$ であり、 $d = 4$ における KMC から得られた結果と一致している。本報文では計量因子が不明なので、スケーリング関数 φ_4 を相似変換したスケーリングプロット $(X, Y) = [1.91p, 0.21\varphi_4(p)]$ (図 7 の点線) と Φ_4 を比較した。線幅とピークの高さは $d = 3, 4$ と一致して Φ_4 とほぼ相似であり、 Φ_4 の主要な性質を有していると判断した。Dubrovskii らによれば島サイズが離散的であることによる速度論的ゆらぎによって φ_4 が決定されている [28, 29, 30, 31]。したがって、 φ_4 のこの性質をスケーリング解析で得たスケーリング関数 Φ_4 および Φ が引き継いでいるとすれば、これらのスケーリング関数は d や系の詳細に依存しない速度論的ゆらぎによって構成される部分であり、ISD のピークに広がりをもたせ、発散を抑えている。他方、スケーリングパラメータと計量因子は、 d や島成長の詳細による影響を受ける部分となっている。なお、スケーリングプロットで $(X, Y) = [1.91(p-0.45), 0.21\varphi_4(p)]$ として、 φ_4 を左にシフトしたものを実線で図 7 に示す。この曲線と $d = 4$ との一致が非常によい一方でシフトの意味は明かではない。しかしながら、内挿式としての使用には有効である。

ISD 速度方程式で空間次元依存性を反映させることができるのは、島がモノマーを捕獲する強さを表わす捕獲数 σ_s のサイズ依存性である。もし、適切な σ_s の発見によって得られた ISD 速度方程式が今回検討した KMC と同じスケーリング則を有し、スケーリングパラメータとスケーリング関数が一致するなら、現象論的には、この速度方程式も KMC の ISD が属する現象クラスに属

することになる。更に自己相似型スケーリング則を満たす物理量のスケーリング指数に関しては、これらを系統的に求めるくりこみ群による研究がある [13, 12]。今後はこれらの事項に注意しながら、ISD に関するスケーリング則の研究を継続する。

4 まとめ

KMC による不可逆点状島成長について、空間次元 $d = 3, 4$ では、Widom のスケーリングに基づいた ISD に関する新たなスケーリング則 $f \approx \mathcal{A}_d s_{\text{av}}^\alpha \Phi(\mathcal{B}_d s_{\text{av}}^\beta (s/s_{\text{av}} - S_c))$ が得られた。一方、 $d = 2$ では他の次元のスケーリング関数と比べて、半幅幅で 1/4 のピーク周辺領域で尖鋭化が認められた。また、スケーリング関数 Φ が空間次元に依存しないことを利用し、 $d = 4$ に対応する平均場近似の ISD 速度方程式を用いて得た解析的なスケーリング関数 $\varphi_4(p) = e^{-p^2} \int_0^\infty \frac{e^{-q^2-2pq}}{q^{1/2}} dq$ は Φ の特徴を再現した。このことは、 φ_4 の方程式の特徴である運動論的機構と島サイズの離散性に伴うゆらぎ、すなわち、速度論的ゆらぎによって対応する KMC のスケーリング関数 Φ が構成されていることを示している。

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**, p. 011601 (2011).
- [2] M. C. Bartelt and J. W. Evans: “Scaling analysis of diffusion-mediated island growth in surface adsorption processes”, *Phys. Rev. B*, **46**, pp. 12675–12687 (1992).
- [3] G. S. Bales and D. C. Chrzan: “Dynamics of irreversible island growth during submonolayer epitaxy”, *Phys. Rev. B*, **50**, 9, pp. 6057–6067 (1994).
- [4] M. N. Popescu, J. G. Amar and F. Family: “Rate-equation approach to island size distributions and capture numbers in submonolayer irreversible growth”, *Phys. Rev. B*, **64**, p. 205404 (2001).
- [5] J. Royston and J. G. Amar: “Island-size distribution and capture numbers in three-dimensional nucleation: Dependence on island morphology”, *Phys. Rev. E*, **80**, p. 041602 (2009).
- [6] 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).
- [7] D. D. Vvedensky: “Scaling functions for island-size distributions”, *Phys. Rev. B*, **62**, 23, pp. 15435–15438 (2000).

- [8] F. Shi, Y. Shim and J. G. Amar: “Upper critical dimension for irreversible cluster nucleation and growth in the point-island regime”, *Phys. Rev. E*, **74**, p. 021606 (2006).
- [9] F. Shi, Y. Shim and J. G. Amar: “Island-size distribution and capture numbers in three-dimensional nucleation: Comparison with mean-field behavior”, *Phys. Rev. B*, **71**, p. 245411 (2005).
- [10] G. I. Barenblatt: “Scaling”, *Cambridge Texts in Applied Mathematics*, Cambridge University Press (2003).
- [11] G. I. Barenblatt and Y. B. Zel’dovich: “Self-similar solutions as intermediate asymptotics”, *Annual Review of Fluid Mechanics*, **4**, pp. 285–312 (1972).
- [12] N. Goldenfeld, O. Martin and Y. Oono: “Intermediate asymptotics and renormalization group theory”, *Journal of Scientific Computing*, **4**, pp. 355 – 372 (1989).
- [13] N. D. Goldenfeld: “Lectures On Phase Transitions And The Renormalization Group”, Vol. 85 of *Frontiers in Physics*, Addison-Wesley (1992).
- [14] B. Widom: “Equation of state in the neighborhood of the critical point”, *J. Chem. Phys.*, **43**, pp. 3898–3905 (1965).
- [15] H. E. Stanley: “Scaling, universality, and renormalization: Three pillars of modern critical phenomena”, *Rev. Mod. Phys.*, **71**, 2, pp. S358–S366 (1999).
- [16] 西森: “相転移・臨界現象の統計物理学”, *新物理学シリーズ*, 第 35 巻, 培風館 (2005).
- [17] M. C. Bartelt and J. W. Evans: “Exact island-size distributions for submonolayer deposition: Influence of correlations between island size and separation”, *Phys. Rev. B*, **54**, pp. R17359–R17362 (1996).
- [18] K. Harada: “Bayesian inference in the scaling analysis of critical phenomena”, *Phys. Rev. E*, **84**, p. 056704 (2011).
- [19] K. Harada: “Kernel method for corrections to scaling”, *Phys. Rev. E*, **92**, p. 012106 (2015).
- [20] V. G. Dubrovskii and N. V. Sibirev: “Size distributions, scaling properties, and Bartelt-Evans singularities in irreversible growth with size-dependent capture coefficients”, *Phys. Rev. B*, **89**, p. 054305 (2014).
- [21] M. Körner, M. Einax and P. Maass: “Capture numbers and island size distributions in models of submonolayer surface growth”, *Phys. Rev. B*, **86**, p. 085403 (2012).
- [22] D. D. Vvedensky, C. Ratsch, F. Gibou and R. Vardavas: “Singularities and spatial fluctuations in submonolayer epitaxy”, *Phys. Rev. Lett.*, **90**, 18, p. 18961 (2003).
- [23] 中井: “極小モデルに基づいた薄膜点状島初期成長のスケーリング理論”, *電気通信大学紀要*, **30**, 1, pp. 300107_1–300107_8 (2018).
- [24] J. G. Amar and M. N. Popescu: “Asymptotic capture number and island size distributions for one-dimensional irreversible submonolayer growth”, *Phys. Rev. B*, **69**, p. 033401 (2004).
- [25] 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).
- [26] F. Shi, Y. Shim and J. G. Amar: “Capture-zone areas in submonolayer nucleation: Effects of dimensionality and short-range interactions”, *Phys. Rev. E*, **79**, p. 011602 (2009).
- [27] F. Family, M. N. Popescu and J. G. Amar: “Self-consistent rate equation theory of cluster size distribution in aggregation phenomena”, *Physica A*, **306**, pp. 129–139 (2002).
- [28] V. G. Dubrovskii: “Fluctuation-induced spreading of size distribution in condensation kinetics”, *J. Chem. Phys.*, **131**, pp. 164514–1–7 (2009).
- [29] V. G. Dubrovskii and N. V. Sibirev: “Analytic scaling function for island-size distributions”, *Phys. Rev. E*, **91**, p. 042408 (2015).
- [30] V. G. Dubrovskii: “Analytic form of the size distribution in irreversible growth of nanoparticles”, *Phys. Rev. E*, **99**, pp. 012105–1–012105–9 (2019).
- [31] V. G. Dubrovskii, N. V. Sibirev and A. S. Sokolovskii: “Kinetic broadening of size distribution in terms of natural versus invariant variables”, *Phys. Rev. E*, **103**, p. 012112 (2021).