電気通信大学紀要27巻1号 pp.37-43（2015）〔論文〕

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

中　井　日佐司*

Numerical Solutions and Error Estimation for the Gap length in One-dimensional Submonolayer Film Growth

Hisashi NAKAI*

Abstract

Numerical solutions and an error estimation formula for gap y_s between an island with size s and another island in one-dimensional submonolayer growth are presented. The origin of the error is assumed to be the numerical integral computation included in an equation for the y_s. In order to evaluate the error for Y_s^M which is the numerical approximation of y_s, numerical integrations in the equation of y_s are calculated with composite trapezoidal rule using $1/2M$, M and $2M$ of number of equal divided interval. As a result, the error of the gap for $M=2^{13}$ of the divided number is a one-third for the difference $\left|Y_s^{M/2}-Y_s^M\right|$. Similarly, the error for the numerical solution of the island size distribution N_s^M is the 1/4.2 of $\left|N_s^{M/2}-N_s^M\right|$ and was less than 7×10^{-9}. My size-distribution result is compared to both the results of literature on the kinetic Monte-Carlo simulation and the rate equation.

Keywords : Model for surface kinetics, rate equations, capture zone.

1 はじめに

蒸着による金属薄膜の初期成長では、島とよばれる様々な大きさの金属微結晶が基板上に点在している。蒸着源から供給された金属原子（モノマー）は基板に付着し、その表面を拡散する。その後モノマーは，(1)他のモノマーと出会って最小安定島（ダイマー）の形成、(2)既に基板上に存在する島による捕獲、(3)基板から脱離、のいずれかの過程を経る。(1) は核形成過程、(2) は捕獲過程、(3) は再蒸発過程と呼ばれている。

薄膜初期成長の実験結果を説明する手段として島のサイズ分布に関する速度方程式[1, 2]が用いられてきた。これらの研究では、その速度係数のサイズ依存性を分子運動論に基づいて求めた。その結果、上記三種類の過程によって、ダイマー以上のサイズをもった島の密度（島密度）とモノマー密度の蒸着時間依存性を説明することに成功した。しかしながら、サイズ分布を再現することはできなかった。

その後、Kinetic Monte-Carlo（KMC）シミュレーションを用いて、核形成と捕獲の両過程にもとづいた数値実験が行われた[3]。この数値実験は同じ過程にもとづいた速度方程式を自己無撞着に解いた結果と比較された。結果は、以前と同様、島密度とモノマー密度については速度方程式によってその結果が再現され、サイズ分布については失敗に終った。

BlackmanとMulheranは、一次元点状島の初期成長に捕獲領域の概念を取り入れることで、サイズ分布を再現した[4]。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り、その島を中心としたVoronoiセルが良い近似となっている。このBlackmanらによる結果は、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らと同様な一次元点状島成長について、

Received on September 8, 2014.
国際交流センター

Amarらは捕獲領域の概念をサイズ分布の速度方程式にとりいれた[5]。その際に、捕獲領域に対応する量として､島のサイズが s であるときの平均島間隔（ギャップ）y_s を導入し、その方程式を導いた。さらに、この方程式の根 y_s を使って、サイズ s の島が単位時間内に捕獲するモノマーの数、

$$Rn_1\tilde{\sigma}\,(y_s) \tag{1}$$

を求めた。ここで、$R = D/F$ は、モノマーの基板表面拡散定数 D と蒸着速度 F の比、n_1 はモノマー密度である。また、局所捕獲数 $\tilde{\sigma}(y) = 2l_1/l^2 \tanh\{y/(2l_1)\}$ である。l_1 は核生成の長さ、l は捕獲長と呼ばれる量で、n_1 と島密度 n に依存している。

式（1）を速度係数とする速度方程式によって得られたサイズ分布 n_s は､KMCの結果を再現できた。このことで、ギャップ依存性を導入した速度方程式による解析が有効であることが示された。

一次元基板上の点状島薄膜成長に関する以上のような研究方法は、二次元基板上の薄膜成長への拡張も可能である。筆者は今後、この拡張がなされた文献[6]を再現し、速度方程式にモノマーの再蒸発過程を付け加えた後、以前の実験[7]を再解析する予定である。その為に、実験データと比較する際に必要な、サイズ分布を始めとする数値解の誤差評価方法を確立しなければならない。そこで、解析が容易である一次元基板点状島成長においてこの評価方法を定め、その方法を二次元基板成長の数値解に適用することにした。

これまで述べてきたように、ギャップ y_s はKMCのサイズ分布を再現できた速度係数に含まれる重要な量である。そこで本報文では、このギャップに関する数値解の誤差評価式を求め、この誤差が島のサイズ分布 n_s に与える影響を議論する。

なお、この報文における数値計算はMATLABを用いて行なった。

2　解析方法

ギャップ y_s を求めるために、Amarらは周囲にギャップ y を持っているサイズ s の島密度に対して以下の式、

$$G_s(t,y) = B_y \exp(-x^{s-2})/(s-2)!$$

を得た[5]。ここで、

$$x(t,y) = \int_{\tau(y)}^{t} Rn_1(u)\tilde{\sigma}(u,y)du \tag{2}$$

である。また、$B_y = \gamma/y^2$ であり、$\tau(y)$ は $y = \gamma(\tau)/n(\tau)$ を τ について解いたもので、平均ギャップが y である時刻である。なお、γは島によって被覆されていない基板の割合である。

次に彼らは、$G_s(t,y)$ が、(1)核形成が主要な過程である蒸着の初期段階では $x \approx 0$ で y に関して比較的平坦な関数であること、(2)捕獲が主要な過程である時間では y に関して鋭いピークを持つこと,を示した。

更に、(1) から、蒸着の初期段階では $y_s = \gamma/n$ であり、(2) から、捕獲が主要過程である時間領域では、B_y の y 依存性を無視し、$G_s(t,y)$ の極値条件 $\partial G_s(t,y)/\partial y = 0$ を用いることで、y_s に関する方程式、

$$x(t, y_s(t)) = s-2$$

を得た。今後は上式を標準的な形

$$x(t, y_s(t)) - (s-2) = 0 \tag{3}$$

に書くことにする。

この章では、捕獲が主要過程である時間領域について、方程式(3)を数値的に解いて得られる近似値 $Y_s(t)$ と、その厳密解 $y_s(t)$ の誤差 $Y_s - y_s$ を数値計算可能な量で評価する。なお、数値計算による誤差の主要原因が式(2)における積分であるとした。

2.1　誤差評価式の導出

$x(y)$ が $y = y_s$、$y = Y_s$ を含む開区間で二階微分可能であれば、テイラーの定理より、

$$\begin{aligned} 0 &= x(Y_s) - (s-2) + x_y(Y_s)\cdot(y_s - Y_s) + Q \\ Q &= 1/2x_{yy}(Y_s + \theta(y_s - Y_s))\cdot(y_s - Y_s)^2, 0 < \theta < 1 \end{aligned} \tag{4}$$

を得る。この式から $Y_s - y_s$ について、

$$Y_s - y_s = \big(x(Y_s) - (s-2) + Q\big)/x_y(Y_s) \tag{5}$$

と表わす。$x(Y_s) - (s-2)$ と $x(Y_s)$ はそれぞれ、

$$x(Y_s) - (s-2) = X(Y_s) - (s-2) + x(Y_s) - X(Y_s)、$$

$$x_y(Y_s) = X_y(Y_s) + x_y(Y_s) - X_y(Y_s)$$

であるので、式(5)は、

$$Y_s - y_s = \frac{\big(X(Y_s) - (s-2)\big) + \big(x(Y_s) - X(Y_s)\big) + Q}{X_y(Y_s) + \big(x_y(Y_s) - X_y(Y_s)\big)} \tag{6}$$

となる。ここで、$X(Y_s)$ は $x(Y_s)$ の、$X_y(Y_s)$ は $x_y(Y_s)$ に関する数値解である。

次に、式(6)の右辺を計算可能な量で書き直し、誤差の評価式を得ることにする。

まず、式(6)の分子にある第二項について考えよう。この項は $X(Y_s)$ に関する誤差であり、式(2)の数値積分に関するアルゴリズムに依存する。この報文では、誤差評価方法が容易な等分区間台形公式を用いることにした。

区間数を M とする等分区間台形公式による数値積分ではその誤差の主要項を、

$$X(Y_s) - x(Y_s) \approx CM^{-2} \tag{7}$$

と表わすことができる[8]。ここで M は区間数であり、C は M に依存しない定数である。

$X(Y_s)$ が区間数 M で計算されたことを示すために、上付の添字をつかって $X^M(Y_s)$ と表わすことにする。$X^{M/2}(Y_s)$ と $X^{2M}(Y_s)$ に式(7)を使うと、$X^M(Y_s)$ の誤差につ

いて関係式、

$$X^M(Y_s) - x(Y_s) \approx \frac{X^{M/2} - X^M}{3} \approx \frac{4\left(X^M - X^{2M}\right)}{3} \tag{8}$$

を得る。

また、台形公式を使用した数値積分について、誤差の漸近則である式(7)が成立していれば、式(8)より、

$$\left(X^{M/2} - X^M\right)/\left(X^M - X^{2M}\right) \approx 4 \tag{9}$$

である。この関係式(9)は、台形公式を適用した数値積分 $X^M(Y_s)$ に関する漸近則(7)成立のテストとして利用できる。

Y_s は $X^M(Y_s) - (s-2) = 0$ の数値解なので、そのギャップの数値解を Y_s^M で表すことにすると、$X^M(Y_s^M)$ に関する誤差は式(8)から、

$$X^M(Y_s^M) - x(Y_s^M) \approx \frac{X^{M/2}(Y_s^M) - X^M(Y_s^M)}{3} \tag{10}$$

となる。

つぎに、式(6)の分母第二項は、

$$x_y(y) = \int_{\tau(y)}^{t} Rn_1(u)\tilde{\sigma}_y(u,y)du + Rn_1(t)\tilde{\sigma}(u,y)\tau'(y) \tag{11}$$

を数値計算することによって生じる誤差である。式(11)の第二項は、時間に関する積分を含まないために、M には無関係である。一方、第一項は積分を含み、先程と同様、その数値解は $O(M^{-2})$ の誤差を持っているから、

$$X_y^M(Y_s^M) - x_y(Y_s^M) \approx C_1 M^{-2} \tag{12}$$

となる。したがって、式(8)の導出と同様にして、

$$X_y^M(Y_s^M) - x_y(Y_s^M) \approx \frac{X_y^{M/2} - X_y^M}{3} \approx \frac{4\left(X_y^M - X_y^{2M}\right)}{3} \tag{13}$$

を得る。

これらの結果より、式(6)に式(8)と(13)を代入して、

$$Y_s^M - y_s \approx \frac{\left(X^M - (s-2)\right) + \dfrac{X^M - X^{M/2}}{3} + Q}{X_y^M + \dfrac{X_y{}^M - X_y{}^{M/2}}{3}} \tag{14}$$

となる。式(14)の右辺は、Q を除けば、数値計算可能な量のみで表されている。なお、右辺のギャップyに関する引数はすべて Y_s^M である。

ここで計算結果から各項のオーダーを評価する。分子について、第一項は10^{-13}、第二項は10^{-7}～ 10^{-3}のオーダーであるので、第一項は無視できる。また、分母については、第一項は10^{-3}～ 1、第二項は10^{-8}～ 10^{-6}なので、第二項が無視できる。

X_{yy} を x_{yy} の数値計算結果とし、3.1項の結果を用いて剰余項 Q を $1/2X_{yy}(Y_s{}^M)\{1/3(Y_s{}^{M/2} - Y_s{}^M)\}^2$ で評価した結果は、各サイズ $2 \le s \le 425$ について $|Q| < m\left|\dfrac{X^M - X^{M/2}}{3}\right|$ であった。ここで m は、

$$m = \begin{cases} 4\times10^{-5}, & 2 \le s \le 423 \\ 1\times10^{-1}, & 424 \le s \le 425 \end{cases}$$

である。したがって、サイズ s のほとんどの領域で、Q を無視することができる。$m = 1\times10^{-1}$ の領域においても、誤差評価において10%の不確かさを許容することにして、Q を無視することにする。

以上の結果から、最終的な誤差評価式は、

$$Y_s^M - y_s \approx \frac{\frac{1}{3}(X^M - X^{M/2})}{X_y^M} \tag{15}$$

になる。

2.2　計算方法

単原子密度 n_1 と島密度 n は、二元常微分方程式である還元速度方程式[5]を数値積分することによって得た。積分には適応刻み幅のルンゲ・クッタ5(4)次法[9]を利用し、相対許容誤差1×10^{-7}、絶対許容誤差1×10^{-12}で計算した。

y_s に関しては、式(2)を等分区間台形公式によって積分計算する際に、時間について等間隔な n_1 と n の出力が必要である。これらの出力は適応刻み幅間を内挿する密出力によって得た。又、方程式(3)から Y_s^M を計算するために、Brent法を利用した。その際に、許容誤差は機械イプシロン2.2204×10^{-16}を用いた。

サイズ分布 n_s については、以下のように計算した。

1. あらかじめ還元速度方程式で計算した n_1 と n から、l_1 と l を計算しておく。
2. サイズ s の最大数を425とし、還元方程式と連立させて、426元の連立常微分方程式を取り扱う。この際に、初期条件を $t = 0$、$n_1 = n_s = n = 0$ とした。蒸着時間が小さく、x が小さい場合には、$\sigma_s = \sigma_{av} = (1/l^2 - 1/l_1^2)/n$ によってサイズ $s > 1$ の捕獲数を計算し、これを速度方程式に用いる。
3. 蒸着時間が十分に大きく、平均サイズ S が10以上であるとき、捕獲数を $\sigma_s = 2l_1/l^2 \tanh\{y_s/(2l_1)\}$ で計算し、速度方程式で利用する。本報文では、2から3への切り替え時刻を $t_{sw} = 0.082$ とした。
4. 特定の時刻で、方程式(3)から全ての s について y_s を計算する。この時、1で求めた n_1 と l_1、l を用いる。次に、平均ギャップ$\langle y \rangle$が$\langle y \rangle = \gamma/n$ の関係を満すように、y_s を再スケールする[5]。この再スケールによって、方程式(3)では考慮されていない過程

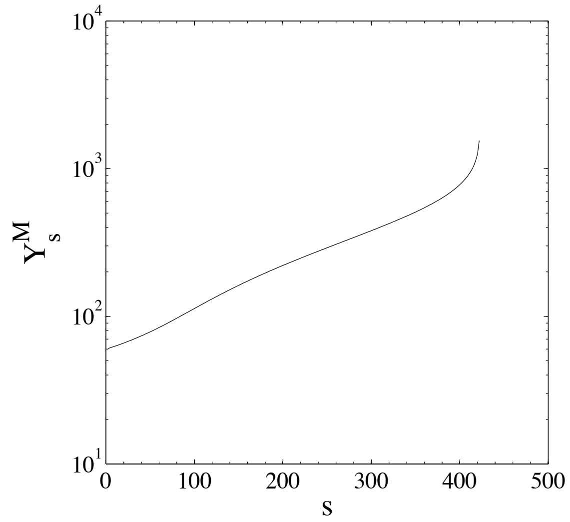

Fig. 1. Island size dependence of the numerical solution on the gap length Y_s^M .

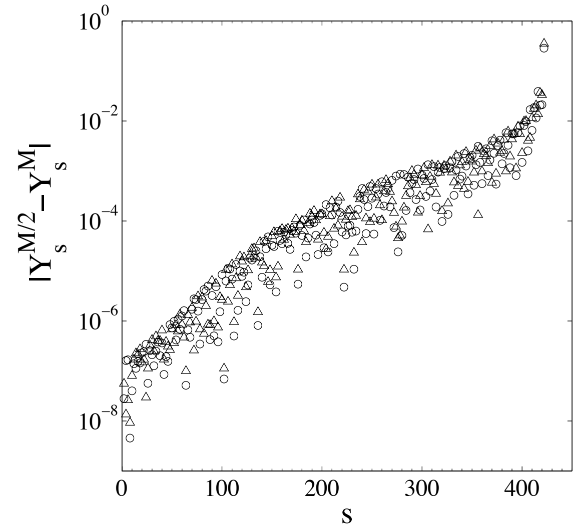

Fig. 2. Size dependence of differences $\left|Y_s^{M/2}-Y_s^M\right|$ (circle) and the four times the differences $\left|Y_s^M-Y_s^{2M}\right|$ (triangle).

である、ギャップ内に新しい島が生成することに起因するギャップ断片化過程を組み込む。

5. 再スケールした y_s を使って σ_s を計算し、速度方程式に対して新しい積分ステップを実行する。

この方程式の積分には、還元速度方程式と同じく、適応刻み幅のルンゲ・クッタ5(4)次法を利用し、相対許容誤差を10^{-5}、絶対許容誤差を10^{-10}とした。

許容誤差を変化させた結果を比較した結果、蒸着時間 $t=1$ において、当該許容誤差では10^{-7}以下の絶対誤差があると見積もった。なお、許容誤差は、絶対許容誤差が$10^{-5}\times$ 相対許容誤差になるように設定した。

3　結果

数値解と誤差を評価する積分区間数を $M=2^{13}=8{,}192$、$R=0.5\times10^7$、蒸着時間を $t=1$ とした。以下の各項において結果を示す。

3.1　ギャップの数値解とその差分

蒸着時間 $t=1$ におけるギャップ数値解 Y_s^M のサイズ依存性について、片対数プロットをFig. 1に示す。Y_s^M はサイズに対して単調に増加する。また、$M/2$と$2M$ に関するギャップの島サイズ依存性は、このプロットの尺度では M のものと一致している。

Figure 2は積分区間数 M を変化させた Y_s^M の差分に関して、そのサイズ依存性を片対数プロットしたものである。差分（の絶対値）$\Delta Y_s^M=\left|Y_s^{M/2}-Y_s^M\right|$ は円で、差分 $\Delta Y_s^{2M}=\left|Y_s^M-Y_s^{2M}\right|$ はその四倍を三角でプロットした。

プロットは曲線ではなく、明瞭な上限境界をもって散布している。両者のプロットを比較すると、差分 ΔY_s^{2M} を四倍することで、散布の上限境界とその下方における散布状況が ΔY_s^M とほぼ一致した。

この意味で両者の比 $R_M=\Delta Y_s^M/\Delta Y_s^{2M}\approx4$ と解釈すると、式（7）と同様に $\left|Y_s^M-y_s\right|$ の主要誤差項が $O(M^{-2})$ であると考えられる。このことから、$\left|Y_s^M-y_s\right|\approx1/3\Delta Y_s^M$ の関係が成立するとした。

3.2　X^M の差分

X^Mの差分 $\Delta X^M=\left|X^{M/2}-X^M\right|$ を円で、$4\Delta X^{2M}=4\left|X^M-X^{2M}\right|$ を三角でプロットしたものがFig. 3である。前項のΔY_s^Mと同様に、両差分のプロットは散布していて、且つ、上限境界と分散の仕方が一致している。そこで、3.1項の Y_s^M と同様に、X^M についても $R_M=\Delta X^M/\Delta X^{2M}\approx4$ であるとする。

この結果から、式（9）が成立し、台形公式による積分が機能していることとした。

3.3　誤差評価式との比較

この項では、誤差評価式(15)が成立していることを確かめる。

$\Delta Y_s^M=\left|Y_s^{M/2}-Y_s^M\right|$ の $1/3\left|X^{M/2}-X^M\right|/X_y^M$ 依存性をプロットしたものがFig. 4 である。

実線は、$\Delta Y_s^M=3(1/3\left|X^{M/2}-X^M\right|/X_y^M)$ であり、プロットとの一致は非常に良い。

この結果から、

$$1/3\Delta Y_s^M=\frac{1/3\left|X^{M/2}-X^M\right|}{X_y^M} \tag{16}$$

である。また、3.1項における議論から、$1/3\Delta Y_s^M\approx\left|Y_s^M-y_s\right|$ であるので、式(16)は、$\left|Y_s^M-y_s\right|\approx1/3\left|X^{M/2}-X^M\right|/X_y^M$ となる。したがって、絶対値の下ではあるが、誤差評価式(15)の

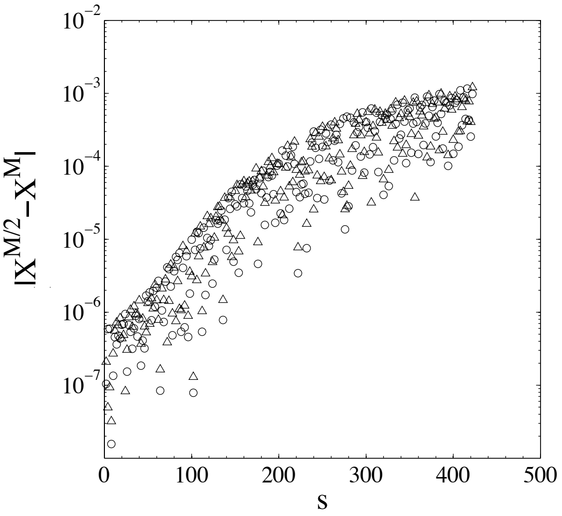

Fig. 3. Size dependence of differences $\left|X_s^{M/2}-X_s^M\right|$ (circle) and four times $\left|X_s^M-X_s^{2M}\right|$ (triangle).

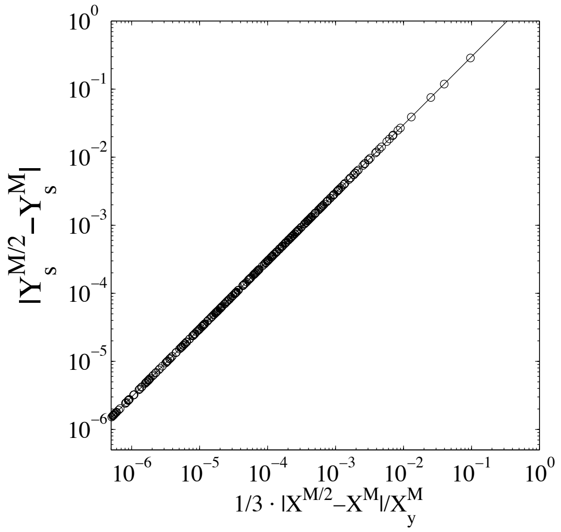

Fig. 4. Test plot for eq. (15). Solid line corresponds to $y=3x$.

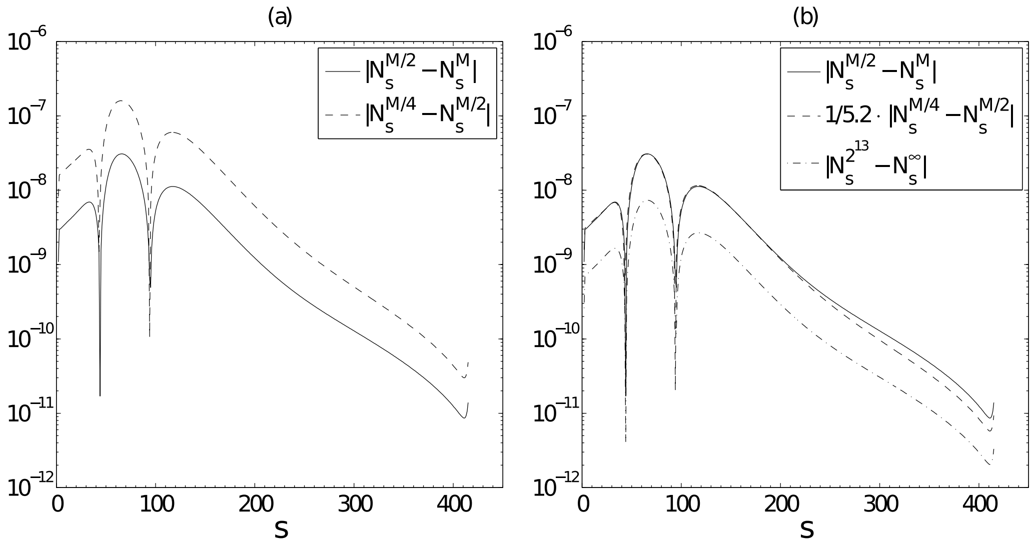

Fig. 5. Plot of the distribution differences to evaluate the error of the distributions due to the error of gap length.

成立が確かめられた。結局、数値解の差分$\Delta Y_s^M = \left|Y_s^{M/2}-Y_s^M\right|$から、ギャップの誤差が$\left|Y_s^M-y_s\right| \approx 1/3\Delta Y_s^M$として求められた。

3.4　サイズ分布の誤差

区間数 M に関係したサイズ分布 N_s^M に関する差分を fig. 5(a)に示す。誤差評価を行うサイズ分布の数値計算に使用した区間数を $M=2^{13}$、誤差評価のための数値計算に使用した区間数を $M/4=2^{11}$ と $M/2=2^{12}$ とした。Figure 5(a)の破線に対応している $M/2$ と $M/4$ 間に関する差分の1/5.2を(b)の破線として示した。サイズについて200原子以下、差の大きさで10^{-9}以上の部分で破線と実線が一致している。

さて、N_s^M の誤差について、M に関する漸近則

$$N_s^M - n_s \approx C_2 M^{-r} \tag{17}$$

が成立しているとする。上式から、r を正数として、

$$\begin{aligned} \frac{N_s^M - N_s^{M/2}}{N_s^{M/4} - N_s^{M/2}} &\approx 2^{-r}, \\ C_2 M^{-r} &\approx \frac{N_s^{M/2} - N_s^M}{2^r - 1} \end{aligned} \tag{18}$$

となる。

Figure 5(b)における破線の結果は$2^r \approx 5.2$($r \approx 2.4$)を示しているで、式(18)下段の式から、$1/4.2\left|N_s^{M/2}-N_s^M\right|$をサイズ分布の誤差とした(Fig. 5(b)の鎖線)。

以上の結果から、N_s^M はギャップの計算に起因する7×10^{-9}以下の誤差をもっていると結論した。

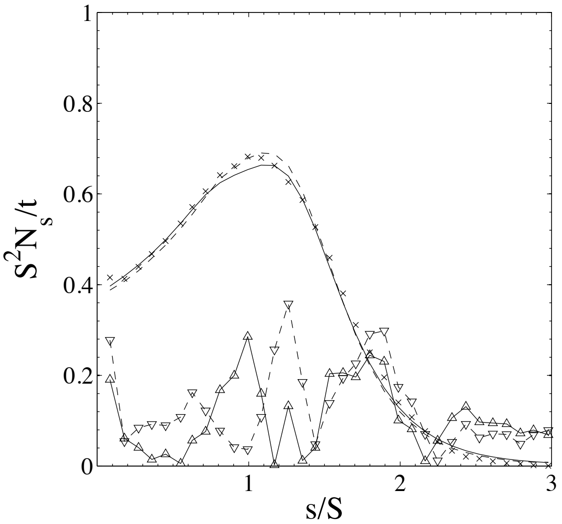

Fig. 6. Scaled island-size distribution for point islands (R=0.5 ×10^7) calculated using the rate equations in this study (solid line) along with corresponding KMC (symbols) [5] and rate equation results (dashed line) [5]. Triangle and solid line corresponds to ten times differences between the KMC and this study. Down-pointing triangle and dashed line corresponds to ten times differences between the KMC and the rate equations result of Ref 5.

4　議論

この章では、本報文の結果と文献[5]によるKMCシミュレーションおよび速度方程式の結果を比較する。

本報文より求めたサイズ分布（実線）、文献[5]における速度方程式による分布（破線）、同文献によるKMCによる分布（×）を、Fig. 6に示した。

文献[5]･Fig. 4(a)の表示にあわせて、サイズ s とサイズ分布 n_s を、それぞれ、平均サイズ S 、t/S^2 でスケールした。また、この図の下方にKMCの結果とそれぞれの速度方程式との解の差の大きさを10倍して示した。

まずKMCによる誤差の評価を試みる。文献[5]によると、KMCは一次元基板上の格子点数が10^6のシステムで計算されており、30から100回の試行の平均を取っている。

サイズが s である島の数について、ポアソン分布を仮定し、一回の試行に関する平均と分散が、それぞれ、$A_s = 10^6 n_s$ と $V_s = 10^6 n_s$ であるとする。以上の仮定から試行回数 m の平均に関する偏差 d は、$d = \sqrt{V_s/(m-1)} = 10^3(m-1)^{-1/2} n_s^{1/2}$ となる。この結果をスケールしたサイズ分布に適用すると、

$$\begin{aligned} D &= 10^{-6}(S^2/t)\cdot d \\ &\approx 10(m-1)^{-1/2} n_s^{1/2} \\ &\approx 2\cdot n_s^{1/2} \end{aligned}$$

となり、スケールしたサイズ分布の偏差 D が得られた。

ここで、t =1の時 S≈100とし、試行回数として m =30を用いた。0< s/S <1.3では n_s≈10^{-4}なので、KMCについて D =0.02の偏差が見込まれる。この偏差をKMCにおける誤差とする。

さて、KMCと本報文のサイズ分布には、s/S =1で最大値0.028の差がある。この差はKMCの誤差 D より大きく、2D より小さい。一方、本報文において数値計算に原因をもったサイズ分布の誤差は、3.4項より速度方程式の積分による誤差が$10^{-7} \times 10^4 = 10^{-3}$、2.2項よりギャップ計算の影響による誤差が$10^{-8} \times 10^4 = 10^{-4}$である。よって、数値計算による誤差はKMCとの差に比べて小さい。したがって、この差は数値計算以外の要因に基づいている。

s/S =1付近における差の傾向は、本報文の分布がKMCを下まわっている。このことはサイズ s が平均サイズ S 程度である速度係数が過大評価されていることを窺わせる。なぜなら、速度係数はサイズ s の島の寿命の逆数なので、この係数が大きいほどそのサイズに留まる島が少なくなるからである。速度係数はギャップについて単調増加するので、このことはギャップの過大評価に対応している。

ギャップが過大評価されている原因として、y_s の再スケールがギャップ断片過程を十分に取り込んでいない可能性が挙げられる。

速度方程式より求められた文献[5]のサイズ分布（Fig. 6破線）は s/S =1.3で最大値0.036の差があり、KMCの誤差 D よりも大きく、2D より小さい。したがって、速度方程式から求めた本報文と文献[5]のサイズ分布に関する結果は、KMCとの差が両者ともに D から2D の範囲にあり、KMCの結果に対して同等の誤差をもっている。

5　まとめ

この報文では、一次元薄膜の点状島成長について、ギャップの数値解とその誤差評価式を求めた。この結果から、積分区間数 M の数値解に関する誤差は、数値解の差分$\Delta Y_s^M = \left| Y_s^{M/2} - Y_s^M \right|$の三分の一から求められることが解った。また、ギャップの数値計算に起因するサイズ分布の誤差は7×10^{-9}以下になった。この誤差は、速度方程式の積分による誤差10^{-7}に比べて小さい。スケールされたサイズ分布に関するKMC自身の誤差は0.02以下である一方、本報文の結果との差は0.028以下であった。この差はKMCの誤差よりも大きく、ギャップに関する本報文の誤差や速度方程式の数値解に関する誤差に比べて非常に大きい。このことは、両者の結果の差が数値解の誤差以外に原因があることを示している。この原因として、ギャップに対する過大評価の可能性を提案した。

文献

[1] Zinsmister, G.: "A contribution to Frenkel's theory of condensation", *Vacuum* **16** (1966) 529-535.

[2] Zinsmister, G.: "Theory of thin film condensation Part D: Influence of a variable collision factor", *Thin Solid Films* **7** (1971) 51-75.

[3] Bales, G.S. and Chrzan, D.C.: "Dynamics of Irreversible Island Growth during Submonolayer Epitaxy", *Phys. Rev. B* **50** (1994) 6057-6067.

[4] Blackman, J.A. and Mulheran, P.A.: "Scaling behavior in submonolayer film growth: A one-dimensional model", *Phys. Rev. B* **54** (1996) 11681-11692.

[5] Amar, J.G., Popescu, M.N. and Family, F.: "Self-consistent rate-equation approach to irreversible submonolayer growth in one dimension", *Surface Science* **491** (2001) 239 - 254.

[6] Popescu, M.N., Amar, J.G. and Family, F.: "Rate-equation approach to island size distributions and capture numbers in submonolayer irreversible growth", *Phys. Rev. B* **64** (2001) 205404.

[7] Nakai, H., Baba, D., Kosuge, A. and Hashimoto, M.: "Growth Kinetics of Antimony Layers Prepared on SiO_x by Molecular Beam Deposition", *Thin Solid Films* **259** (1995) 32 - 37.

[8] Conte, S.D. and de Boor, C.: "*Elementary numerical analysis*", (McGraw-Hill, 1981).

[9] L.F. Shampine and M.W. Reichelt: "The MATLAB ODE Suite", *SIAM Journal on Scientific Computing* **18** (1997) 1-22.