電気通信大学紀要 30 巻第 1 号 pp.1-8（300107）〔論文〕

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

中　井　日佐司

Scaling theory for submonolayer growth of point Islands based on the minimal model

Hisashi NAKAI

Abstract

For the both of Kinetic Monte-Carlo (KMC) and rate equations (RE) based on irreversible sub monolayer growth of point islands in substrate spatial dimension $d = 2, 3$ and 4 as the limit $R \to \infty$, I find that monomer density N_1 and island density N have $N_1 = \lambda^{-1}\hat{\rho}(\lambda\theta)$ and $N = \lambda^{-1}\hat{N}(\lambda\theta)$, where R is the ratio of the monomer diffusion rate to the deposition rate, θ is coverage and λ is the scaling factor determined by the detail of the system. The function $\hat{\rho}$ and $\hat{N}$ are universal functions independent of R and d, and calculated in the minimal model for submonolayer epitaxy by Tang [L. -H. Tang, J. Phys. I France **3**, 935 (1993)]. As result, $\lambda = (R\sigma)^{1/2}$ was obtained for the both KMC and RE in $d = 2, 3$ and 4, where σ is the capture number of diffusing monomer. Finally, for RE in $d > 4$ as the limit, I show N_1 and N have function form as same as the form in $d \leq 4$.

Keywords: Model for surface kinetics, substrate spatial dimension, universal function, scaling.

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金属微結晶が基板上に点在し、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流速密度で入射され、基板上にある島やモノマーへ直接付着するか、これらの島やモノマーに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直接付着・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。

薄膜初期成長の研究手法として、サイズが s である島密度 $\tilde{N}_s$ の蒸着時間 t 依存性に関する、

$$\frac{d\tilde{N}_1}{dt} = \tilde{J} - 2\tilde{D}\sigma_1\tilde{N}_1^2 - \tilde{D}\tilde{N}_1\sum_{s=2}\sigma_s\tilde{N}_s - \tilde{J}\tilde{\kappa}_1\tilde{N}_1 - \tilde{J}\sum_{s=1}\tilde{\kappa}_s\tilde{N}_s,$$

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

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

$$\frac{d\tilde{N}_1}{d\tilde{\theta}} = 1 - 2\tilde{R}\sigma_1\tilde{N}_1^2 - \tilde{R}\tilde{N}_1\sum_{s=2}\sigma_s\tilde{N}_s - \tilde{\kappa}_1\tilde{N}_1 - \sum_{s=1}\tilde{\kappa}_s\tilde{N}_s, \tag{1}$$

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

が用いられる [2, 3, 4]。ここで $\tilde{D}$ は拡散定数、$\tilde{R} := \tilde{D}/\tilde{J}$ は拡散蒸着比であり、実際の成膜では $10^5 \leq \tilde{R} \leq 10^9$ の範囲にある[*1]。なお、σ_s $(s = 1, 2, 3, \cdots)$ は捕獲数と呼ばれる量で、s と $\tilde{\theta}$ に依存する。また、κ_s は入射モノマーの直接付着に関連している係数である。

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 $\tilde{R}\tilde{N}_1\sigma_s$ と $\tilde{\kappa}_s$、特に、σ_s

Received on September 6, 2017.
国際教育センター

*1 ここでは、格子定数を 1 とした単位で数値を記した。

のサイズおよび蒸着時間依存性を求める必要がある。島密度 $\tilde{N} := \sum_{s=2} \tilde{N}_s$ と N_1 に関する $\tilde{\theta}$ と $\tilde{R}$ のベキ乗則を説明した分子運動論による σ_s [2, 3, 4] に続いて、Bales と Chrzan は局所モノマー密度の準静的拡散方程式に基づいて σ_s に関する自己無撞着な表式を得た。この σ_s を用いた速度方程式 (1) と (2) から得た $\tilde{N}_1$ と $\tilde{N}$ は、ベキ乗則の一致に留まらず、中間の $\tilde{\theta}$ についても Kinetic Monte-Carlo (KMC) のシミュレーション結果と非常に良い一致を示している [5]。更に Shi らはモノマーが拡散する空間次元 (以下では基板次元と呼ぶ) を $d = 3, 4$ にまで拡張し、それぞれの基板次元についてサイズに依存しない捕獲係数 σ を求め、$\tilde{N}_1$ と $\tilde{N}$ に関する点状島成長の速度方程式を得た [6, 7]。この速度方程式の数値計算結果と KMC の結果も非常に良い一致を得ている。

一方 Tang は、$d = 2$ の格子点におけるモノマーと島の格子点における占有率 N_1 と N に関して、KMC の素過程に関する量のみを用いた極小モデルを考察した。その結果、N_1 と N に対して素過程に関する量に依存しない普遍的なスケーリング関数として、それぞれ、$\hat{\rho}$ と $\hat{N}$ を見い出し、素過程に関する量で構成されたスケール ℓ_1 と t_1 を用いて下記のように N_1 と N を表した [8]。

$$N_1 = \ell_1^{-2}\hat{\rho}(t/t_1), \tag{3}$$
$$N = \ell_1^{-2}\hat{N}(t/t_1), \tag{4}$$
$$\ell_1 := (4D/J)^{1/4}, \quad t_1 := (4DJ)^{-1/2}. \tag{5}$$

ここで特定の最近接格子にモノマーが移動する遷移確率 D と格子一つあたりに単位時間に入射するモノマー数 J が KMC を特徴づける量である。関連する各量の次元は $[N_1]$=$[N]$=1 と $[D]$ =$[J]$ = T^{-1}、$[t]$ = T であり、時間の次元 T のみで構成される。

なお、2 つの 1 変数関数 $\hat{\rho}$ と $\hat{N}$ は連立微分方程式、

$$\hat{\rho}' = 1 - (2\hat{\rho} + \hat{N})\hat{\rho} \tag{6}$$
$$\hat{N}' = \hat{\rho}^2, \tag{7}$$

かつ、初期条件 $\hat{\rho}(0) = \hat{N}(0) = 0$ の解である。また、スケーリング関数は $u \ll 1$ で $\hat{\rho}(u) \simeq u$、$\hat{N}(u) \simeq 1/3u^3$ であり、$u \gg 1$ で $\hat{\rho}(u) \simeq (3u)^{-1/3}$、$\hat{N}(u) \simeq (3u)^{1/3}$ の極限を持つ。$R := D/J$、$\theta := Jt$ を定義すると、

$$\ell_1 := (4R)^{1/4}, \tag{8}$$
$$t_1 := J^{-1}(4R)^{-1/2}. \tag{9}$$

になるので、$N_1 \approx R^{-2/3}\theta^{-1/3}$ などの $d = 2$ における点状島成長のベキ乗則を式 (3) と (4)、(5) は再現する。

以上の N_1 と N に対する表式を現象論的に解釈すると、下記のことが解る。

1. 極小モデルにおける N_1 と N の θ および R 依存性は、個々の KMC シミュレーションを特徴づける現象論的パラメータ ℓ_1 および t_1 と、これらのパラメータに依存しない普遍的なスケーリング関数 $\hat{\rho}(u)$ および $\hat{N}(u)$ によって表わすことができる。
2. この極小モデルと同じ現象のクラスに属する他のモデルがあるとしよう。この時、そのモデルに固有な量で構成した ℓ_1 および t_1 によって、N_1 と N は、それぞれ、式 (3) と (4) で表わすことができる。

特に上記 2 によって、極小モデルで得た知見を「同じ現象のクラスに属する他のモデル」に拡張する方法が提供されている。例えば、点状島成長における速度方程式 (以下 RE*2) モデルと KMC モデルは、モノマー密度と島密度に関するベキ乗則を極小モデルと共有している。もしこれら三つのモデルが「同じ現象のクラスに属する」モデルなら、ベキ乗則は、普遍的なスケーリング関数 $\hat{\rho}(u)$ および $\hat{N}(u)$ の u に関する極限に起因すると解釈される。

また、次項で述べるように、基板次元が $d = 3, 4$ の場合にも点状島成長では極小モデルと同じベキ乗則を持っていることが知られている。

そこで本報文では、すでに KMC シミュレーションが報告されている $d = 2, 3, 4$ について、点状島初期成長における RE と KMC が、モノマー密度と島密度の被覆率および拡散蒸着比依存性に関して同じスケーリング関数 $\hat{\rho}(u)$ および $\hat{N}(u)$ を有していることを示すことで、極小モデルと同じ現象のクラスに属していることを明らかにする。

2　KMC におけるスケーリング関数の同定

基板次元 $d = 2, 3, 4$ の点状島成長初期過程について、N_1 と N おけるべき乗則は、それぞれ、 $N_1 \sim R^{-\omega}\theta^{-r}$、$N \sim R^{-\chi}\theta^{q}$ で表わされ、KMC の結果やスケーリング理論 [10, 11, 9, $d = 2$]、[6, $d = 3$]、 [7, $d = 4$] より $\theta \to 0$ の極限で $N_1 \sim \theta$、$N \sim R\theta^3$、$\theta \to \infty$ の極限で $N_1 \sim R^{-2/3}\theta^{-1/3}$、$N \sim R^{-1/3}\theta^{1/3}$ であることが確認されている。これらのべき乗則において、R の指数である ω と χ を静的指数、θ の指数 r と q を動的指数と呼ぶ。以上の結果を見ると、基板次元 $d = 2, 3, 4$ においては動的および静的指数が極小モデルと同じであるので、スケーリング関数を探す範囲として基板次元 $d = 2, 3, 4$ の点状島成長に限定する。

同じ指数を共有している異った基板次元 $d = 2, 3, 4$ について、N_1 と N に関する KMC シミュレーションの結果 [9, $d = 2$] と [6, $d = 3$]、[7, $d = 4$] をプロットしたものが図 1 である。このプロットを観察すると、特定の d について異った R のシミュレーション結果が一つの曲線に沿って並んでいる。一方、異なる d については結果

*2 Rate Equations

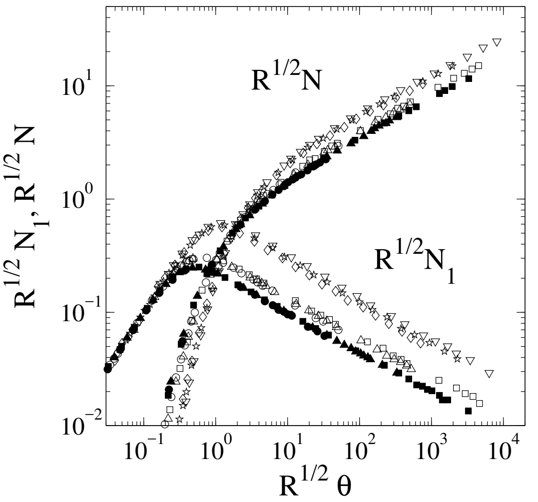

Fig.1 Scaled KMC monomer densities $R^{1/2}N_1$ and scaled island densities $R^{1/2}N$ as function of $R^{1/2}\theta$ for $d = 2$ [9] ($R = 0.25 \times 10^7$ ◇; 0.25×10^8 ☆; 0.25×10^9 ▽), $d = 3$ [6] ($R = 0.17\times10^5$ ○; 0.17×10^7 △; 0.17×10^9 □) and $d = 4$ [7] ($R = 0.13 \times 10^5$ ●; 0.13×10^7 ▲; 0.13×10^9 ■).

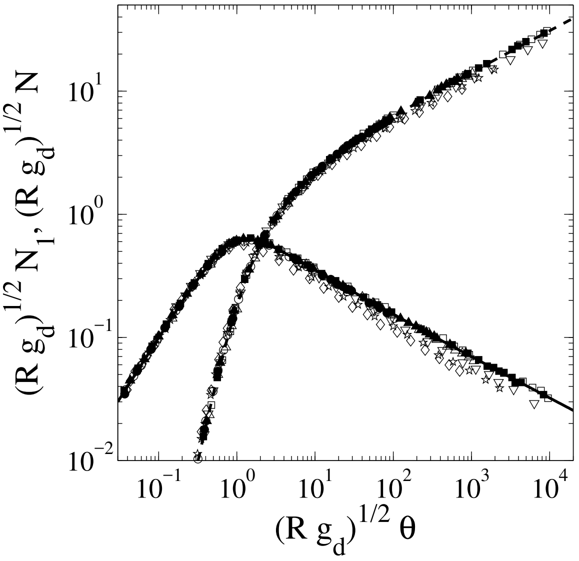

Fig.2 Scaled KMC monomer densitiy $(Rg_d)^{1/2}N_1$ and scaled island density $(Rg_d)^{1/2}N$ as function of $(Rg_d)^{1/2}\theta$ (symbols are same as these in Fig.1). Lines are scaling functions for monomer density $\hat{\rho}$ (full line) and island density $\hat{N}$ (broken line).

が異なった曲線に沿っている。従って N_1 と N は、

$$N_1 = R^{-1/2}\tilde{F}_1(R^{1/2}\theta, d), \quad (10)$$

$$N = R^{-1/2}\tilde{F}(R^{1/2}\theta, d) \quad (11)$$

のような関数形を持つ。ここで $\tilde{F}_1(u, d)$ と $\tilde{F}(u, d)$ は R に依存しないが d には依存する関数である。異った d のプロットを比較すると互いに相似であるように見える。このプロットは両対数であるので、縦軸と横軸をスケールすることで、これらの曲線を重ねることができるであろう。もしこのスケールによって異った d のプロットが一つに重なるなら、R にも d にも依存しないスケーリング関数を KMC の結果から得たことになる。そこで、下記のような方針で図 1 に対してスケールを行うことにする。

1. $d = 2$ を基準にし、スケールしない。
2. $d = 2$ におけるモノマーの極大と一致するようにスケールする。
3. スケールは d に依存する g_d を用いて $R^{1/2} \to (Rg_d)^{1/2}$ とし、縦軸、横軸共通とする。

このスケールの結果、異なる d についても KMC データが一つの曲線に沿うなら、その関数形は下記のようになる。

$$N_1 = (Rg_d)^{-1/2}F_1\left((Rg_d)^{1/2}\theta\right), \quad (12)$$

$$N = (Rg_d)^{-1/2}F\left((Rg_d)^{1/2}\theta\right). \quad (13)$$

$F_1(u)$、$F(u)$ は 1 変数関数で、R と d に依存しない普遍関数である。

ここで変換定数 g_d の次元を調べ、g_d に関する知見を得よう。まず KMC と RE から得られた量*3の関係を調べよう。これらの間には、格子定数 a を用いて $N_1 = a^d\tilde{N}_1$、$N = a^d\tilde{N}$、$\theta = a^d\tilde{\theta}$、$D = a^{-2}\tilde{D}$、$R = a^{-d-2}\tilde{R}$ などのように a のベキが変換定数になっている。以降は a を長さの単位とし、$a = 1$ にすることで 2 種類の量を区別しないことにする。

次に $F_1(u)$ と $F(u)$ が無次元関数であることを要請すると、各量の次元は $[N_1] = [N] = [\theta] = \mathrm{L}^{-d}$、$[R] = \mathrm{L}^{d+2}$ である。従って、関係式の次元斉一性から $[(Rg_d)^{-1/2}] = \mathrm{L}^{-d}$ である。結局スケール定数 g_d の次元は $[g_d] = \mathrm{L}^{d-2}$ になる。これは捕獲数の次元と同じである。

このスケールを実行したプロットが図 2 である。ここで $g_3 = 4.0$、$g_4 = 6.3$ としてモノマーの極大部分を一致させた。その結果、$d = 3, 4$ では KMC における全ての θ について、スケールした量 $(Rg_d)^{1/2}N_1$ と $(Rg_d)^{1/2}N$ の $(Rg_d)^{1/2}\theta$ 依存性は、それぞれ、$\hat{\rho}$ (実線) と $\hat{N}$ (破線) に沿っている。従って、$d = 3, 4$ では $F_1 = \hat{\rho}$、$F = \hat{N}$ である。

一方、$d = 2$ では $(Rg_d)^{1/2}\theta < 1$ においてスケールした N_1 と N は $d = 3, 4$ と非常によく一致しているが、$(Rg_d)^{1/2}\theta > 1$ では N_1 と N の両方で $d = 3, 4$ よりも小

*3 この項までは、'~' が付いている量を速度方程式によって得られる量とする。

さく、動的指数は N_1 と N で、それぞれ、$r > 1/3$ と $q < 1/3$ になっている。また、R が増加するに従って r と q は共に 1/3 に近づき、$d = 2$ と $d = 3,4$ との差は減少している。このことは g_2 は R と θ について定数ではないことを示唆する。また次元解析によって g_d が捕獲数に関連することが推測できるので、次項における RE に関する考察から g_2 について知見を得ることにする。

3 速度方程式におけるスケーリング関数の導出

N_1 と N に関する速度方程式を用いて、RE に関するスケーリング関数の方程式を求めよう。モノマー密度 N_1 と島密度 N の速度方程式は下記の二元連立常微分方程式で表わされる [6]。

$$\frac{dN_1}{d\theta} = 1 - 2R\sigma_1 N_1^2 - R\sigma_{av} N N_1 - 2N_1 - N, \tag{14}$$
$$\frac{dN}{d\theta} = R\sigma_1 N_1^2 + N_1. \tag{15}$$

ここで平均捕獲数 $\sigma_{av} := N^{-1}\sum_{s=2}^{\infty}\sigma_s N_s$ である。上式第一式右辺は第一項がモノマーの入射、第二項と第三項は、それぞれ、基板上に存在するモノマー同志が合体することによるダイマー生成と島によるモノマーの捕獲を表わしている。また第四項と第五項は、それぞれ、基板上のモノマーと島による入射モノマーの直接付着であり、点状島成長において $\tilde{\kappa}_1 = \tilde{\kappa}_s = a^d = 1$ とした。

点状島成長を扱うにあたり、以下の仮定をする。

1. 島の大きさ r_s は s に依存しない大きさを持ち、$r_s = r_1 = r_0$ である。
2. σ_s のサイズ依存性は r_s に由来している。
3. $R \to \infty$ の時、$R\sigma \to \infty$ である。

これらの仮定から、$\sigma_{av} = \sigma_1 =: \sigma$ を得る。結局上記の微分方程式は、点状島成長について、

$$\frac{dN_1}{d\theta} = 1 - R\sigma(2N_1 + N)N_1 - 2N_1 - N, \tag{16}$$
$$\frac{dN}{d\theta} = R\sigma N_1^2 + N_1 \tag{17}$$

になる。更に σ が θ に依存しない場合、$\lambda := (R\sigma)^{1/2}$ でスケールして $\phi_1 := \lambda N_1$、$\phi_1 := \lambda N_1$、$T := \lambda\theta$ とすることで式 (16) と (17) は、

$$\frac{d\phi_1}{dT} = 1 - (2\phi_1 + \phi)\phi_1 - \lambda^{-1}(2\phi_1 + \phi), \tag{18}$$
$$\frac{d\phi}{dT} = \phi_1^2 + \lambda^{-1}\phi_1 \tag{19}$$

になる。$\lambda = (R\sigma)^{1/2}$ であるので、上式で λ^{-1} に比例する項は $R \to \infty$ の極限で小さくなる。R の範囲が $10^5 \leq R \leq 10^9$ のように大きいので、λ^{-1} の項を無視すると、R がパラメータとして含まれない微分方程式、

$$\frac{d\phi_1}{dT} = 1 - (2\phi_1 + \phi)\phi_1, \tag{20}$$
$$\frac{d\phi}{dT} = \phi_1^2 \tag{21}$$

が得られた。以上の微分方程式は Tang によって得られたスケーリング関数 $\hat{\rho}$ と $\hat{N}$ に関する連立微分方程式 (3) および (4) と同じ形をしているので、$\phi_1(T) = \hat{\rho}(T)$、$\phi(T) = \hat{N}(T)$ になる。更に $T = (R\sigma)^{1/2}\theta$ なので、$\phi_1 = \hat{\rho}((R\sigma)^{1/2}\theta)$、$\phi = \hat{N}((R\sigma)^{1/2}\theta)$ の関数形をもっている。結局、σ が二つの条件 (1) θ に依存せず、且つ、(2) $R \to \infty$ の時に $R\sigma \to \infty$、を満せば、RE は極小モデルと同じスケーリング関数 $\hat{\rho}$ と $\hat{N}$ を共有する。また、モノマー密度と島密度は、それぞれ、$N_1 = \lambda^{-1}\hat{\rho}(\lambda\theta)$、$N = \lambda^{-1}\hat{N}(\lambda\theta)$ と表わせることが解った。ここで $\lambda := (R\sigma)^{1/2}$ である。従って、σ がこの二つの条件を満すなら、RE は極小モデルと同じクラスに属する。

次に、$d = 3,4$ について、σ の表式を得ることにする。島またはモノマーの大きさ r_0 を半径とする d 次元球形トラップが原点にある場合について、Shi らは局所モノマー密度の準静的拡散方程式から $d = 3,4$ における σ の表式を求めた。結果として $R \to \infty$ の極限で、$\sigma \simeq 4\pi r_0 =: \sigma_3^*$ [6] と $\sigma \simeq 4\pi^2 r_0^2 =: \sigma_4^*$ [7] を得ている。したがって、$d = 3,4$ では σ は θ にも R にも依存しないので、この基板次元で RE は極小モデルと同じクラスに属する。更に、Shi らはこれらの σ を用いた RE から求めた N_1 と N を調整パラメータ r_0 によって KMC シミュレーションにフィットすることで $r_0 = 1/3$ $(d = 3)$ と $r_0 = 0.407$ $(d = 4)$ を得、KMC と RE とは非常に良く一致している。以上の結果から、$\sigma_3^* = 4.19$、$\sigma_4^* = 6.54$ である。

$d = 3,4$ の時、RE と同様に、KMC は極小モデルと同じクラスに属していることが前項の議論で明らかになっている。また、RE と KMC における各量は格子定数 $a = 1$ とすることで同一視できるので、関係式、

$$\hat{\rho}((Rg_d)^{1/2}\theta) = \hat{\rho}((R\sigma)^{1/2}\theta), \tag{22}$$
$$\hat{N}((Rg_d)^{1/2}\theta) = \hat{N}((R\sigma)^{1/2}\theta) \tag{23}$$

が得られる。この関係式が満されるのは $g_d = \sigma$ であり、g_d と $\sigma = \sigma_d^*$ が同じものであることが確かめられた。そこで、σ と g_d を比較してみよう。前項の結果から、$g_3 = 4.0$ と $g_4 = 6.3$ であった。一方、$\sigma_3^* = 4.19$ と $\sigma_4^* = 6.54$ であるので、5 % と 4 % の誤差で $g_d = \sigma_d^*$ $(d = 3,4)$ が成り立っている。

さて、$d = 2$ において σ が θ と R について緩やかに依存するなら、$N_1 = \lambda^{-1}F_1(\lambda\theta)$、$N = \lambda^{-1}F(\lambda\theta)$ を用いることができるであろう。つまり、先程の条件 (1) を弱めて、(1) σ の θ 依存性は弱い、としよう。更に $g_2 = \sigma$ が成り立つことを仮定して KMC に関する g_2 を得よう。

次項では $d=2$ の場合の σ を具体的に求め、$R\to\infty$ における θ 依存性と $R\sigma$ の極限を調べる。その後、この σ を使って RE を解き、結果が KMC シミュレーション結果にフィットするように r_0 を決める。σ の妥当性は KMC との一致の程度で判断する。

3.1　基板次元 $d=2$ の捕獲数

$d=2$ において、Bales と Chrzan [5] は、モノマー密度の準静的拡散方程式からサイズ s の島に関する捕獲数 σ_s を、

$$\sigma_s = 2\pi\frac{r_s}{l}\frac{K_1(r_s/l)}{K_0(r_s/l)}, \tag{24}$$

$$l^{-2} \coloneqq 2\sigma_1 N_1 + \sigma_{av} N, \tag{25}$$

と求めた。ここで K_0 と K_1 は、それぞれ、零次と一次の第二種変形ベッセル関数である。また l は捕獲長であり、他のモノマーや島によってモノマーが捕獲される特徴的な長さである。原理的には、上記の σ_s を速度方程式で用いて自己無撞着に l は決定される。なお、準静的拡散方程式が有効であるためには、捕獲長が基板の格子定数にくらべて十分大きい必要があるので、$l\gg 1$ である。さらに、$d=3,4$ で用いた点状島成長に関する仮定をここでも用いると、上記の表式は $\sigma_s=\sigma_1=\sigma_{av}=\sigma$ であり、$r_s=r_0$ になる。r_0 は格子定数程度の大きさ、即ち、1 程度と期待されるので、変形ベッセル関数の引数は $r_0/l\ll 1$ になる。更に、θ が大きい時に Tang が議論したモノマー密度の速度方程式に関する断熱近似 [8] に基づいて $l^2\simeq RN_1$ を用い、

$$\sigma = 2\pi\frac{r_0}{l}\frac{K_1(r_0/l)}{K_0(r_0/l)} \simeq \frac{4\pi}{\ln(l^2/r_0^2)} \simeq \frac{4\pi}{\ln(RN_1/r_0^2)} \tag{26}$$

を得る。ここで変形ベッセル関数の漸近形、$K_0(x)\simeq -\ln x$、$K_1(x)\simeq x^{-1}$ $(x\to 0)$ を用いた。

さて、極限 $R\to\infty$ に対する σ の振舞いを調べるために (26) を変形してみる。σ について r_0^2 と l^2 を長さの 2 乗の次元をもつ $R^{1/2}$ でスケールすると、

$$\sigma = \frac{4\pi g_0}{1+g_0\ln(R^{1/2}N_1)}, \tag{27}$$

$$g_0 \coloneqq \frac{1}{\ln(R^{1/2}/r_0^2)} \tag{28}$$

と変形され、r_0 を含む部分が g_0 に分離される。$R\to\infty$ の極限で $g_0\to 0$ であるので、この極限で g_0 は小さいパラメータである。従って、$\sigma\simeq 4\pi g_0[1-g_0\ln(R^{1/2}N_1)+O(g_0^2)]$ のように展開できる。この展開で、$d=2$ における捕獲数の主要な R 依存性は $\sigma\simeq 4\pi g_0$ $(R\to\infty)$ であり、R に依存するが θ には依存しない。また、$R\to\infty$ のとき、$Rg_0\to\infty$ であり、先に行った σ に対する条件 (2) を満している。一方、θ 依存性は補正 $-4\pi g_0^2\ln(R^{1/2}N_1)$ として表われる。この補正は N_1 の対数で時間変化する

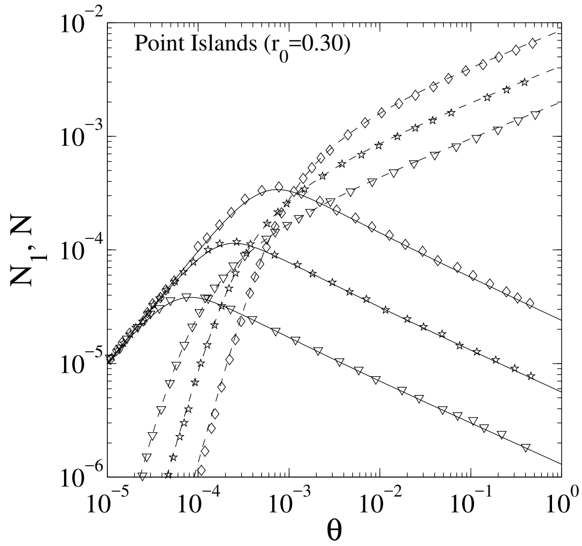

Fig.3　Comparison between KMC results (symbols) and the corresponding RE solutions (lines) for the monomer density N_1 and island density N as a function of coverage θ in $d=2$. Symbols are same as these in Fig.1. Solid and broken line are the solution for N_1 and N, respectively.

ので、σ の緩やかな時間変化が期待できる。σ の妥当性を検証し調整パラメータ r_0 を得るために、表式 (27) で与えられる σ を用いて、式 (14) および式 (15) を数値積分した RE の結果と KMC シミュレーションの結果 [9] について比較したプロットが図 3 である。ここで KMC の結果に RE をフィットすることで $r_0=0.30$ を得た。速度方程式と KMC の一致は非常に良い。このことから、捕獲数 σ に関する表式 (27) が妥当であると結論した。

$d=2$ について妥当な σ の表式 (27) が求められたので、関係 $g_2=\sigma$ を使用して KMC をスケールした結果が図 4 である。ここで黒塗りのプロットは $(R\sigma)^{1/2}$ でスケールしたものである。比較のために $R^{1/2}$ でスケールしたプロットを白抜きのシンボルで示した。また、実線と破線は、それぞれ、スケーリング関数 $\hat{\rho}$ と $\hat{N}$ をプロットしたものであり、$(R\sigma)^{1/2}N_1$ と $\hat{\rho}$、$(R\sigma)^{1/2}N$ と $\hat{N}$ の一致は非常によい。

以上の結果から、基板次元 $d=2,3,4$ において点状島成長する時、N_1 と N の R および θ 依存性は、極小モデルより得られたスケーリング関数 $\hat{\rho}$ と $\hat{N}$ を用いて、KMC と RE の双方で $N_1=(R\sigma)^{1/2}\hat{\rho}((R\sigma)^{1/2}\theta)$、$N=(R\sigma)^{1/2}\hat{N}((R\sigma)^{1/2}\theta)$ によって表わすことができる。従って、KMC と RE はスケーリング関数を共有している Tang の極小モデルと同じ現象のクラスに属すると結論した。

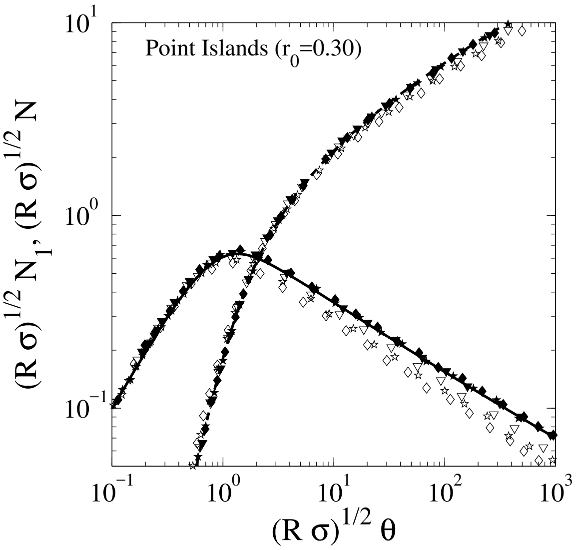

Fig.4　Scaled monomer density $(R\sigma)^{1/2}N_1$ and scaled island density $(R\sigma)^{1/2}N$ for KMC results as function of scaled coverage $(R\sigma)^{1/2}\theta$ for three values of R (0.25×10^7 ◆; 0.25×10^8 ★; 0.25×10^9 ▼) in $d = 2$. Open Symbols are scaled monomer density $R^{1/2}N_1$ and scaled island density $R^{1/2}N$ as function of scaled coverage $R^{1/2}\theta$ (open symbols are same as these in Fig.1).

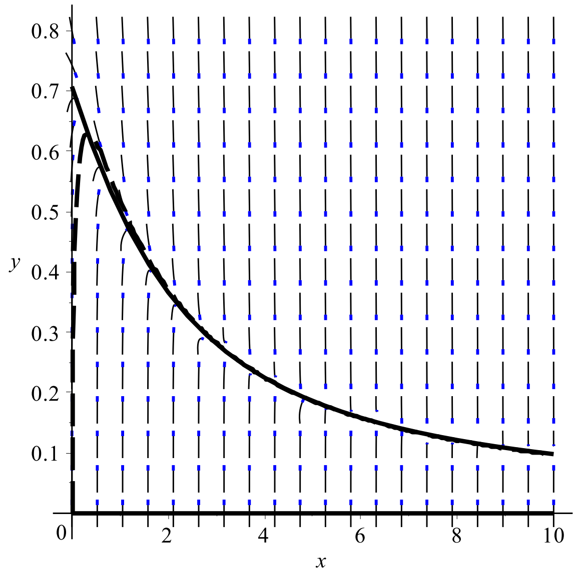

Fig.5　Phase plane for scaling functions $\hat{\rho}$ and $\hat{N}$ with nullclines (solid lines), direction field (directed segments) and trajectory (broken line).

4　議論

この項では、まず、Tang のスケーリング関数に関する二元連立常微分方程式 (3) と (4) の解について幾何学的な解析を行ない、断熱近似の妥当性を考察する。次に基板次元が $d \geq 2$ における捕獲数の一般表式を求め、$d > 4$ において RE が極小モデルと同じ現象のクラスに属する可能性について議論する。

4.1　スケーリング関数 $\hat{\rho}$、$\hat{N}$ の幾何学的性質

連立常微分方程式 (3) と (4) について幾何学的な考察を行うために、その方程式の解 $\hat{N}(T)$ と $\hat{\rho}(T)$ を直交座標 (x, y) に対して $x = \hat{N}(T)$ および $y = \hat{\rho}(T)$ に対応させる。すると $\hat{N}(T)$ と $\hat{\rho}(T)$ は (x, y) の座標を有する位相平面内の曲線、すなわち、軌道に沿って移動する点になる。方程式 (3) (4) を x と y で書き直すと、

$$\dot{x} = y^2 =: f_x(x, y), \tag{29}$$

$$\dot{y} = 1 - (2y + x)y =: f_y(x, y) \tag{30}$$

になる。

ヌルクライン $f_x(x, y) = 0$ と $f_y(x, y) = 0$、すなわち、$y = 0$ と $y = \sqrt{x^2 + 8}/4 - x/4$ を実線で、速度場ベクトル $(f_x(x, y), f_y(x, y))$ の方向場を有向線分で位相平面に描いたものが 図 5 である。破線は $(0, 0)$ を通る軌道であり、$t \geq 0$ においてスケーリング関数 $(\hat{N}(t), \hat{\rho}(t))$ の描く曲線である。

平面のほとんどの位置でこの系の方向場は垂直方向を向き、y の速度に比較して x の速度が小さく、x が相対的にゆっくり変化していることを表している。これは準定常近似、すなわち、断熱近似が系に適用でき、早く変化する量について断熱消去が適用できる要件である [12]。そこで、位相平面における情報から断熱消去によって得られる表式 $\hat{\rho} \simeq 1/\hat{N}$ を求めてみよう。

まず、ヌルクライン $f_y(x, y) = 0$ から離れた上方と下方で、それぞれ、方向場は負と正になっている。一方、このヌルクラインのごく近傍では方向場がヌルクラインに沿っている。軌道は方向場に沿って描かれるので、位相平面内の $(0, 0)$ の近辺を通る軌道はヌルクライン $f_y(x, y) = 0$ に収束し、$x > 3$ ではヌルクラインにこれらの軌道が一致している。このことから軌道は $y = \sqrt{x^2 + 8}/4 - x/4 \simeq 1/x\ (x^2 \gg 8)$、すなわち、$\hat{\rho} \simeq 1/\hat{N}$ と近似することができる。結局、系の位相空間においてヌルクラインへの軌道収束がこの系における断熱消去の適用を可能にしている。

4.2　基板次元 $d \geq 2$ における捕獲数の d 依存性

この報文の第二項と第三項では、$d = 2, 3, 4$ における N_1 と N の R と θ 依存性ついて、点状島成長に関する KMC と RE の二つのモデルが Tang の極小モデルと同じクラスに属することを明らかにした。それでは更に高い基板次元 $d > 4$ ではどうだろうか?ここでは RE についてこの可能性を議論してみよう。

このクラスに属する RE に課された条件は捕獲数に対するもので、

1. σ は 被覆率θ に依存しないか、緩やかな依存性が

ある。

2. 拡散蒸着比 R と σ の積は、$R \to \infty$ で $R\sigma \to \infty$ である。

の二つであった。つまり、$d > 4$ における RE の σ が上記 1 と 2 を満しているなら、$d = 2, 3, 4$ と同様に極小モデルと同じクラスに属し、スケーリング関数を共有している。そこで、まず $d \geq 2$ において成立する σ の一般表式を求め、次にこの二つの条件を検証することで、$d > 4$ における RE がこのクラスに属するか否かを判断する。

従来の研究において、捕獲数 σ は個々の基板次元に対してそれぞれ別々に求められてきた [5, $d = 2$] [6, $d = 3$] [7, $d = 4$]。点状島またはモノマーの大きさ r_0 を半径とする d 次元球形トラップが原点にある場合について、局所モノマー密度に関する準静的拡散方程式の球対称解から $d \geq 2$ における σ は、

$$\sigma = \sigma_d^* + \Omega_d r_0^{d-2} \frac{r_0}{l} \frac{K_{\frac{d-4}{2}}(r_0/l)}{K_{\frac{d-2}{2}}(r_0/l)}, \tag{31}$$

$$\sigma_d^* := (d-2)\Omega_d r_0^{d-2} \tag{32}$$

として求められる (付録 A 参照)。ここで Ω_d は 半径が 1 である d 次元球の表面積であり、$d = 2$ と 3、4 のときに、それぞれ、$\Omega_d = 2\pi$ と 4π、$2\pi^2$ である。$K_{-\mu}(x) = K_\mu(x)$ を使って、個別に求められた $d = 2, 3, 4$ と一致していることが確かめられる。

$d = 2$ において議論したように、準静的拡散方程式が有効であるためには捕獲長 $l \gg 1$ であるので、(31) における変形ベッセル関数に関して漸近形 $K_\mu(x) \simeq 2^{\mu-1}\Gamma(\mu)x^{-\mu}$ ($\mu \neq 0$)、$K_0(x) \simeq -\ln x$ を使うことができる。そこで $d \geq 3$ について σ の漸近形を求めると、

$$\sigma \simeq \sigma_d^* + \Omega_d r_0^{d-2} \frac{r_0}{l} \times \begin{cases} 1 & (d = 3) \\ (r_0/l)\ln(l/r_0) & (d = 4) \\ \frac{(r_0/l)}{d-4} & (d \geq 5) \end{cases} \tag{33}$$

になる。

文献 [6] と同様な議論で $R \to \infty$ の時に $l \to \infty$ となることを示すことができる。このことから $d = 3, 4$ に加えて、$d \geq 5$ においても $\sigma \simeq \sigma_d^*$ ($R \to \infty$) であり、$\sigma \approx r_0^{d-2}$ のように R に依存しない定数になる。従って $d \geq 5$ においても条件 1 と 2 を満すため、RE は $d \geq 2$ において、極小モデルと同じ現象のクラスに属する。

5　まとめ

基板次元 d が $d = 2, 3, 4$ のとき、点状島初期成長の Kinetic Monte-Carlo(KMC) と速度方程式 (RE) においてモノマー密度 N_1 と島密度 N が $N_1 = (R\sigma)^{-1/2}\hat{\rho}((R\sigma)^{1/2}\theta)$ と $N = (R\sigma)^{-1/2}\hat{N}((R\sigma)^{1/2}\theta)$ であることを $R \to \infty$ の極限で見いだした。ここで、$\hat{\rho}(u)$ と $\hat{N}(u)$ は Tang によって 2 次元エピタキシャル成長の極小モデルから導き出された普遍関数で、R と d に依存しない。このことは、$d = 2, 3, 4$ における KMC と RE が N_1 と N の R と θ 依存性について、この極小モデルと同じ現象のクラスに属することを示している。

付録 A　基板次元 $d \geq 2$ における捕獲数の導出

A.1　モノマー局所密度 n_1 の球対称解

基板次元 d において原点にある d 次元球形トラップ周辺の球対称局所モノマー密度 $\tilde{n}_{1,d}$ は、

$$\frac{\partial(\tilde{n}_{1,d} - N_1)}{\partial t} = D \frac{1}{r^{d-1}} \frac{\partial}{\partial r}\left(r^{d-1} \frac{\partial(\tilde{n}_{1,d} - N_1)}{\partial r}\right) - \frac{D}{l^2}(\tilde{n}_{1,d} - N_1) \tag{A.1}$$

を満す。$\frac{\partial(n_1 - N_1)}{\partial t} \simeq 0$ を仮定した準静的拡散方程式は、

$$\frac{1}{r^{d-1}} \frac{\partial}{\partial r}\left(r^{d-1} \frac{\partial(\tilde{n}_{1,d} - N_1)}{\partial r}\right) - \frac{1}{l^2}(\tilde{n}_{1,d} - N_1) = 0 \tag{A.2}$$

$$\tilde{n}_{1,d}(r_0) = 0, \tag{A.3}$$

$$\tilde{n}_{1,d}(\infty) = N_1. \tag{A.4}$$

ここで、両辺を D で割った。

$f := (\tilde{n}_{1,d} - N_1)/N_1$、$z := r/l$ で変数変換すると、

$$\frac{d^2 f}{dz^2} + \frac{d-1}{z}\frac{df}{dz} - f = 0, \tag{A.5}$$

$$f(z_0) = -1 \ \ (\because z_0 := r_0/l), \tag{A.6}$$

$$f(\infty) = 0 \tag{A.7}$$

であり、二階の線形同次常微分方程式になる。μ 次の任意の円筒関数 C_μ を使って、この方程式の一般解は

$$f(z) = z^{\frac{2-d}{2}} C_{\frac{2-d}{2}}(iz) = z^{\frac{2-d}{2}}\left(aI_{\frac{2-d}{2}}(z) + bK_{\frac{2-d}{2}}(z)\right) \tag{A.8}$$

になる。ここで I_μ と K_μ は、それぞれ、第一種と第二種の変形ベッセル関数、a と b は任意定数である。なお $d > 2$ の場合は、$I_{-\mu} = I_\mu + (2/\pi)\sin\mu\pi\, K_\mu$、$K_{-\mu} = K_\mu$ を用いて、

$$f(z) = z^{\frac{2-d}{2}}\left(aI_{\frac{d-2}{2}}(z) + b' K_{\frac{d-2}{2}}(z)\right). \tag{A.9}$$

ただし、b' は任意定数である。

$z \to \infty$ の境界条件を満すためには $a = 0$ が必要であるので、$f(z) = b' z^{\frac{2-d}{2}} K_{\frac{d-2}{2}}(z)$ が解になる。$f(z_0) = b' z_0^{\frac{2-d}{2}} K_{\frac{d-2}{2}}(z_0) = -1$ だから、$b' = -1/(z_0^{\frac{2-d}{2}} K_{\frac{d-2}{2}}(z_0))$ であり、

$$f(z) = -\left(\frac{z}{z_0}\right)^{\frac{2-d}{2}} \frac{K_{\frac{d-2}{2}}(z)}{K_{\frac{d-2}{2}}(z_0)}. \tag{A.10}$$

従って局所密度 $\tilde{n}_{1,d}$ は、

$$\tilde{n}_{1,d} = N_1\left[1 - \left(\frac{z}{z_0}\right)^{\frac{2-d}{2}} \frac{K_{\frac{d-2}{2}}(z)}{K_{\frac{d-2}{2}}(z_0)}\right]. \tag{A.11}$$

なお、ここで用いている記号で [7, Eq. (10)] を表すと、

$$f(z) = \frac{1}{z}\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}z}\left(b_1 I_0(z) + b_2 K_0(z)\right) = z^{-1}\left(b_1 I_1(z) + bK_1(z)\right) \tag{A.12}$$

であり、$d = 4$ の場合の一般解と一致している。

A.2　モノマーによるモノマーの捕獲数 σ

定義より、

$$\sigma := \frac{\Omega_d r_0^{d-1}}{N_1}\frac{\partial \tilde{n}_{1,d}}{\partial r}(r_0) \tag{A.13}$$

であるので、

$$\sigma = \frac{\Omega_d r_0^{d-1}}{l} f'(z_0).$$

ここで、

$$f'(z) = \left(\frac{z}{z_0}\right)^{-d/2} \frac{1}{K_{\frac{d-2}{2}}(z_0)}\left[\frac{d-2}{2z_0}K_{\frac{d-2}{2}}(z) - \frac{z}{z_0}K'_{\frac{d-2}{2}}(z)\right] \tag{A.14}$$

である。$K_\mu(z)$ の微分に関する漸化式 $zK'_\mu(z) = -zK_{\mu-1}(z) - \mu K_\mu(z)$ をつかうと、

$$f'(z) = \left(\frac{z}{z_0}\right)^{-d/2} \frac{1}{z_0 K_{\frac{d-2}{2}}(z_0)}\left[(d-2)K_{\frac{d-2}{2}}(z) + zK_{\frac{d-4}{2}}(z)\right]. \tag{A.15}$$

この結果から、

$$\begin{aligned}\sigma &= \frac{\Omega_d r_0^{d-1}}{l} f'(z_0) \\ &= (d-2)\Omega_d r_0^{d-2} + \Omega_d r_0^{d-2}\frac{r_0}{l}\frac{K_{\frac{d-4}{2}}(z_0)}{K_{\frac{d-2}{2}}(z_0)}\end{aligned} \tag{A.16}$$

となる。

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**, 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] 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, 245411 (2005).

[7] 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**, 021606 (2006).

[8] L. H. Tang: "Island formation in submonolayer epitaxy", J. Phys. I France, **3**, pp. 935–950 (1993).

[9] 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**, 205404 (2001).

[10] 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).

[11] M. Körner, M. Einax and P. Maass: "Capture numbers and island size distributions in models of submonolayer surface growth", Phys. Rev. B, **86**, 085403 (2012).

[12] H. Haken: "共同現象の数理", 東海大学出版会 (1986). 斎藤信彦, 小森 尚志, 長島 知正 共訳.