

Изменение формы термополевых наростов на вольфрамовом острие во время роста

© В.Г. Павлов

Физико-технический институт им. А.Ф. Иоффе Российской академии наук,
194021 Санкт-Петербург, Россия

E-mail: vpavlov@ms.ioffe.rssi.ru

(Поступила в Редакцию 1 июля 2005 г.)

Методом полевой десорбционной микроскопии непрерывного режима изучена форма термополевых наростов на грани (001) вольфрамового острия. Форма и огранка боковой поверхности нароста меняются при изменении его высоты. Это объясняется происходящей перестройкой боковой поверхности нароста из-за постепенного снижения напряженности поля в нижней части нароста при его росте. Перестройка происходит вследствие того, что при высокой напряженности поля форма и огранка определяются кинетикой роста, а при низкой — минимумом свободной поверхности энергии.

PACS: 68.37.Vj, 68.43.Vk

1. Введение

Термополевые наросты (макронаросты) образуются при высокой температуре в электрическом поле порядка 10^7 – 10^8 V/cm на плотноупакованных гранях металлического острия [1–3]. Считается, что наросты имеют форму усеченных пирамид или ступенчатых усеченных пирамид, все грани которых представляют собой плотноупакованные кристаллографические плоскости.

Выводы о форме наростов делались на основе данных полевой электронной и полевой ионной микроскопии. На поверхности наростов всегда имелись термополевые микровыступы — пирамидальные образования размером 1–10 nm. Из-за усиления локального электрического поля за счет микровыступов не удается наблюдать остальную поверхность острия методами полевой эмиссионной микроскопии. Для выявления формы наростов под микровыступами применялись методы их удаления: высокотемпературный нагрев [2] и низкотемпературное полевое испарение [3]. Вместе с удалением микровыступов нагревание острия приводило и к изменению формы наростов. Удаление микровыступов низкотемпературным полевым испарением и использование полевой ионной микроскопии позволяли изучать форму и атомарную структуру наиболее острых и выступающих частей наростов — углов и ребер вершины наростов и ступеней. В обоих случаях не было возможности наблюдать форму боковой поверхности наростов (особенно возле основания нароста) во время их роста или непосредственно после него.

В настоящей работе для изучения формы наростов используется метод полевой десорбционной микроскопии непрерывного режима, впервые примененный для изучения термополевых формоизменений в [4]. В этом методе изображение вершины острия создается ионами, образующимися при полевой десорбции адсорбата, нанесенного на поверхность, а изображающий адсорбат непрерывно поступает на вершину с боковой поверхности острия за счет поверхностной диффузии.

Возможность изучения формы всей поверхности вершины острия основана на свойстве метода, отличающем его от других методов полевой эмиссионной микроскопии. Эта особенность заключается в зависимости полевой десорбционной картины от скорости поступления изображающего адсорбата к изображаемому участку поверхности. Из-за неоднородности поля поверхность острия можно разделить на три зоны: зону слабого поля, где напряженность поля недостаточна для полевой десорбции; зону среднего поля, где происходит полевая десорбция, и зону сильного поля, где нет изображающего адсорбата, поскольку для того, чтобы попасть в эту зону, адсорбат должен был бы продиффундировать через зону среднего поля, где он десорбируется. Изменяя приложенный к острию потенциал, можно передвигать зоны и пройти второй (изображающей) зоной всю вершину острия, получив изображение не только областей наибольшего усиления поля, как в других методах полевой эмиссионной микроскопии, но и всей поверхности.

Метод полевой десорбционной микроскопии непрерывного режима применен совместно с методиками полевой электронной микроскопии и микроскопии высокотемпературного полевого испарения [5]. Подробности методики эксперимента описаны в [4].

2. Экспериментальные результаты

Сопоставление полевых десорбционных изображений с полевыми электронными и изображениями высокотемпературного полевого испарения позволило определить форму термополевых наростов, включая боковую поверхность вплоть до основания нароста. Кроме правильных усеченных пирамид или ступенчатых пирамид часто встречаются наросты, боковая поверхность которых отличается от пирамидальной. На рис. 1 приведены примеры полевых эмиссионных изображений наростов, выросших на грани (001) острия из вольфрама. Рис. 1, а

соответствует изображению, полученному с помощью видеозаписи процесса высокотемпературного полевого испарения непосредственно во время термополевой обработки (ТПО). Приведенный кадр предшествует моменту прекращения нагрева острья — окончанию ТПО. На рис. 1, *b* и *c* показаны полевые электронные изображения. Изображение на рис. 1, *b* получено сразу после окончания ТПО (после 1, *a*), а на рис. 1, *c* — после сглаживания нароста высокотемпературным прогревом. Рис. 1, *d-f* представляют кадры видеозаписи непрерывной полевой десорбции цезия. Нанесение цезия на поверхность острья и его полевая десорбция производились между получением снимков 1, *b* и *c*. На рис. 1, *g-i* приведены кадры видеозаписи полевой десорбции цезия после другой термополевой обработки.

На рис. 1 приведены только отдельные кадры видеосъемки процесса непрерывной полевой десорбции. При изменении приложенного к острью напряжения и его температуры изображение изменялось, что давало возможность выявить различные участки поверхности. Сопоставление этих изменений позволило определить форму наростов. Схематическое изображение нароста представлено на рис. 2. Форма наростов, примеры полевых эмиссионных изображений которых приведены на рис. 1, *a-f* и 1, *g-i*, различается. Различия касаются в

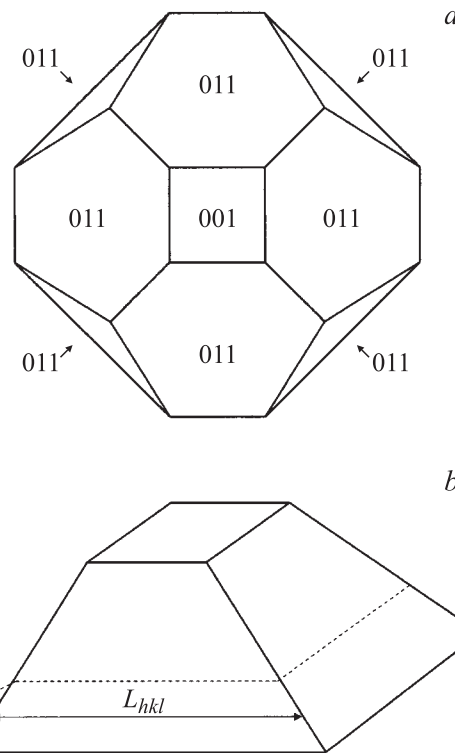


Рис. 2. Схематическое изображение нароста. *a* — форма нароста после ТПО, *b* — расположение анализируемого пояса боковой поверхности.

основном размеров граней и ребер, но общие черты формы обоих наростов совпадают. Верхняя часть нароста является усеченной четырехгранной пирамидой, верхняя грань которой представляет собой плоскость $\{001\}$ в форме прямоугольника, а боковые грани — плоскости типа $\{011\}$ в форме трапеции. В нижней части нароста боковые ребра пирамиды срезаны плоскостями типа $\{011\}$. Боковая поверхность этой части нароста состоит из плоскостей типа $\{011\}$ в форме неправильных шестиугольников (под углом 45° к основанию нароста) и перпендикулярных основанию плоскостей типа $\{011\}$ в форме треугольников.

3. Обсуждение результатов

В работах [6–10] процессы изменения формы кристалла при нагревании в электрическом поле рассматривались как результат воздействия двух противоположно направленных давлений: давления поверхностного натяжения на выпуклую поверхность, пропорционального кривизне поверхности, и отрицательного давления электрического поля на поверхность проводника, пропорционального квадрату напряженности поля. Этот подход позволяет определять направление и количественные характеристики поверхностной самодиффузии, объясняет основные процессы формоизменения металлического острья в электрическом поле. Он применим, если ра-

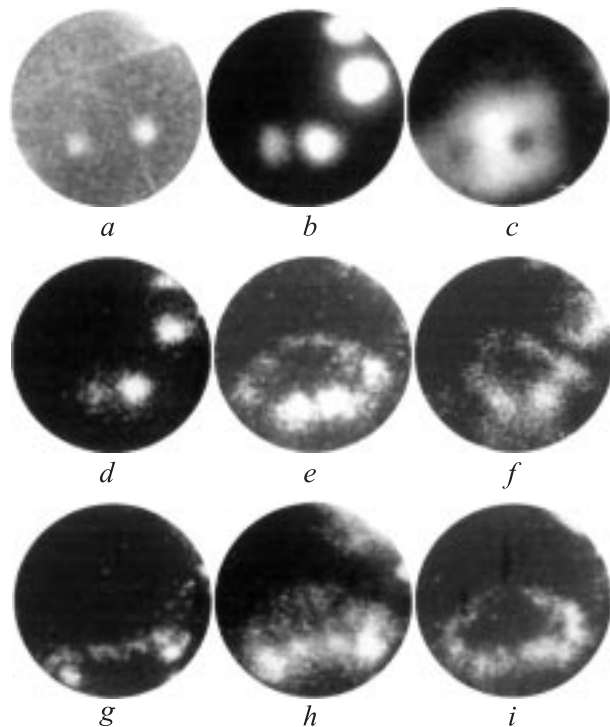


Рис. 1. Полевые эмиссионные изображения термополевых наростов на грани $\{001\}$ вольфрамового острья (центр наростов на нижнем крае изображения). *a* — высокотемпературное полево испарение во время ТПО, *b, c* — полевые электронные изображения (*c* — после прогрева без поля, острье поднято), *d-i* — полевые десорбционные изображения непрерывного режима.

диус кривизны поверхности много больше межатомного расстояния. Для анализа формы поверхности нароста, которая состоит из плоских граней и моноатомных ребер, этот подход представляется малополезным.

В общем случае равновесная форма кристалла определяется минимумом свободной поверхностной энергии. Для свободной поверхностной энергии нароста, приняв ее изменение в электрическом поле пропорциональным давлению поля [6,7], можно записать

$$E = \sum [\gamma_{hkl}s_{hkl} - \int a p_F(x, y)^2 dx dy] + E_e, \quad (1)$$

$$E = \sum (\gamma_{hkl} - a F_{hkl}^2 / 8\pi) s_{hkl} + E_e, \quad (1)$$

где γ_{hkl} — удельная свободная поверхностная энергия кристаллографической плоскости с индексами Миллера $\{hkl\}$, s_{hkl} — площадь грани (hkl) , a — параметр с размерностью длины, характеризующий привносимую давлением поля $p_F(x, y)$ на грань (hkl) энергию упругой деформации, F_{hkl} — среднее эффективное поле на этой грани, x и y — координаты в плоскости грани, E_e — энергия, вносимая ребрами и углами нароста. Суммирование ведется по всем граням поверхности нароста, а интегрирование — по всей площади грани.

Возможна ситуация, когда при увеличении площади граней кристалла его поверхностная энергия не растет, например в том случае, если для плоскостей с наименьшей удельной поверхностной энергией (наиболее плотно упакованных) выражение в скобках в (1) равно нулю или имеет отрицательное значение и при увеличении площади грани не возрастает

$$a F_{hkl}^2 / 8\pi \geq \gamma_{hkl}. \quad (2)$$

В этом случае поверхностная энергия не ограничивает расширение плотноупакованных граней, и даже наоборот: увеличение площади поверхности может привести к уменьшению свободной поверхностной энергии. У кристалла нет минимума свободной поверхностной энергии и равновесной формы. Форма кристалла определяется соотношением скоростей роста на различных гранях. Поскольку скорость роста меньше на плотноупакованных гранях, при наличии поверхностной диффузии кристалл ограняется наиболее плотно упакованными плоскостями. Этот случай реализуется при полевоом кристаллическом росте, и боковая поверхность растущих термопольных наростов вольфрама состоит из наиболее плотно упакованных плоскостей типа $\{011\}$. Это относится и к верхней части нароста, показанного на рис. 2. Можно предположить, что нарост первоначально рос ограненный плоскостями $\{011\}$, а затем его нижняя часть перестроилась.

По мере увеличения высоты нароста поле у его основания ослабляется и условие (2) перестает действовать. Вступает в силу уменьшение свободной поверхностной энергии с уменьшением площади поверхности. Нарост

стремится приобрести равновесную форму (минимизировать E) и в соответствии с (1) уменьшить площадь поверхности, для которой (2) не выполняется. Нижняя часть нароста перестраивается, и для уменьшения периметра его сечения появляются новые грани. Уменьшение площади поверхности при появлении новых граней может компенсировать увеличение числа ребер и углов, а также увеличение γ_{hkl} , если уменьшение площади обеспечивается появлением менее плотно упакованных плоскостей.

Рассмотрим пояс боковой поверхности высотой H у основания нароста (рис. 2, *b*). Поверхностную энергию пояса можно представить в виде

$$E_b = \sum_{hkl} (\gamma_{hkl} - a F_{hklb}^2 / 8\pi) L_{hkl} H / \cos \theta_{hkl} + E_{eb}, \quad (3)$$

где F_{hklb} — среднее поле на полосе грани (hkl) , L_{hkl} — длина полосы (hkl) , θ_{hkl} — угол наклона грани (hkl) к основанию нароста, E_{eb} — энергия ребер в пределах пояса. При

$$a F_{hklb}^2 / 8\pi < \gamma_{hkl} \quad (4)$$

уменьшение периметра пояса ($\sum L_{hkl}$), а также появление граней с большими θ_{hkl} , чем у исходных граней, уменьшает E_b . Если величина такого уменьшения превышает рост E_b за счет большего значения γ_{hkl} новых граней, то появление этих граней становится энергетически выгодным. Для появления новых граней у основания образующегося нароста необходимо такое снижение напряженности поля в нижней части нароста, чтобы выполнялось условие (4) для уже существующих граней (как правило, имеющих наименьшую удельную поверхностную энергию). Кроме того, в кристаллической решетке должны существовать плоскости, появление которых в огранке нижней части нароста приводило бы к уменьшению совокупной свободной поверхностной энергии за счет уменьшения длины периметра и увеличения угла наклона граней.

На схеме, приведенной на рис. 2, показан симметричный нарост. Однако напряженность поля не обязательно будет одинаковой на одной и той же высоте с разных сторон нароста. Это может быть связано с расположением нароста относительно оси острия, влиянием соседних наростов, конфигурацией поля, создаваемой другими электродами. Все отмеченное выше относится и к наростам, создаваемым на плоской поверхности под острием сканирующего туннельного микроскопа [11,12]. Нарушение условия (2) и изменение формы боковой поверхности может происходить на различной высоте с разных сторон нароста.

Таким образом, обнаружено изменение формы термопольных наростов с высотой, которое объясняется уменьшением во время роста напряженности электрического поля на нижней части нароста. Вследствие этого изменяются условия, определяющие форму боковой поверхности нароста, и он перестраивается.

Список литературы

- [1] M. Benjamen, R.O. Jenkins. Proc. Roy. Soc. Lond. A **176**, 262 (1940).
- [2] В.Г. Павлов, А.А. Рабинович, В.Н. Шредник. Письма в ЖЭТФ **17**, 247 (1973).
- [3] В.Н. Шредник, В.Г. Павлов, А.А. Рабинович, Б.М. Шайхин. Изв. АН СССР. Сер. физ. **38**, 296 (1974).
- [4] В.Г. Павлов. ФТТ **47**, 167 (2005).
- [5] Ю.А. Власов, В.Г. Павлов, В.Н. Шредник. Письма в ЖЭТФ **12**, 548 (1986).
- [6] C. Herring. In: Structure and Properties of Solid Surfaces / Eds R. Gomer, C.S. Smith. Univ. Press, Chicago (1953). P. 5.
- [7] J.P. Barbour, F.M. Charbonnier, W.W. Dolan, W.P. Dyke, E.E. Martin, J.K. Trolan. Phys. Rev. **117**, 1452 (1960).
- [8] F.A. Nicols, W.W. Mallins. J. Appl. Phys. **36**, 1826 (1965).
- [9] Ю.А. Власов, О.Л. Голубев, В.Н. Шредник. Изв. АН СССР. Сер. физ. **52**, 1538 (1988).
- [10] В.Н. Шредник, Д.В. Глазанов, Е.Л. Конторович. ЖТФ **73**, 120 (2003).
- [11] К.-Н. Park, J. Kim, J.S. Ha, K.B. Song. J. Vac. Sci. Techn. B **21**, 1357 (2003).
- [12] A. Houel, D. Tonneau, N. Bonnail, H. Dallaporta, V.I. Safarov. J. Vac. Sci. Techn. B **20**, 2337 (2002).