

## ИОННО-МИКРОСКОПИЧЕСКОЕ ОПРЕДЕЛЕНИЕ ЭНЕРГИИ СОБСТВЕННЫХ МЕЖУЗЕЛЬНЫХ АТОМОВ

*В.И.Герасименко, Т.И.Мазилова, И.М.Михайловский, Е.В.Саданов*

*Харьковский физико-технический институт*

*310108 Харьков, Украина*

Поступила в редакцию 11 января 1994 г.

Предложен метод измерения энергии образования межузельных атомов, основанный на явлении низкотемпературного полевого испарения. Впервые проведено прямое экспериментальное определение энергии собственных межузельных атомов в металле.

Собственные точечные дефекты являются неотъемлемыми элементами структуры металлов, находящихся как в равновесном, так и в неравновесном состояниях. Значения энергий образования  $E_i^f$  и миграции  $E_i^m$  точечных дефектов необходимы для оценки скоростей структурных изменений и фазовых превращений при облучении и механико-термической обработке. Они входят как важнейшие параметры в большинство теорий структурно-чувствительных свойств твердых тел. Теории точечных дефектов содержат многочисленные приближения и, как правило, не могут надежно предсказать абсолютные значения энергии образования межузельных атомов [1]. Экспериментальные методы определения  $E_i^f$  основаны на измерениях характеристик металлов, известным образом зависящих от концентрации дефектов. Количество межузельных атомов в термодинамическом равновесии даже при предплавиельных температурах мало и не проявляется в физических свойствах на фоне равновесных вакансий. В связи с этим к настоящему времени отсутствуют данные по экспериментальному измерению энергии образования собственных межузельных атомов.

В настоящей работе предложена ионно-микроскопическая методика прямого определения энергии собственного межузельного атома  $E_i^f$ . Метод измерения  $E_i^f$ , как и известный способ определения энергии связи атомов  $\Lambda$  [2, 3], основан на явлении полевого испарения, характеризуемом сильной зависимостью пороговой напряженности испаряющего поля от полной энергии поверхностных атомов. Энергия  $E_i^f$  определяется как энергия внедрения поверхностного атома внутрь кристалла и отсчитывается обычно от уровня энергии поверхностного атома, связанного с изломами поверхностных ступенек [1]. Строго говоря, энергия  $E_i^f$  будет зависеть от того, в какое из поверхностных состояний перейдет межузельный атом при выходе на поверхность: на плоскую грань или в какой-либо из изломов поверхностных ступенек. Поэтому имеется целый набор энергий  $E_i^f$ , а величина  $E_i^f$ , определяемая в термодинамических экспериментах по концентрации межузельных атомов (согласно выражению  $c \sim \exp(-E_i^f/kT)$ ) в действительности является некоторой эффективной энергией образования, отсчитанной от неопределенного уровня. В условиях ионно-микроскопического эксперимента какая-либо неопределенность в трактовке смысла  $E_i^f$  отсутствует, так как межузельные атомы выходят на плоскую грань в адсорбированное состояние и, следовательно, энергия образования  $E_i^f$  отсчитывается от дна адсорбционной ямы.

В процессе миграции межузельного атома к поверхности его избыточная энергия  $E_i^f$  уменьшается на величину работы сил изображения до уровня  $E_i$  в последнем приповерхностном междоузлии. Это работа порядка энергии миграционных барьеров  $E_i^m$  и так как  $E_i^m \ll E_i^f$ , можно принять, что  $E_i^f \approx E_i$  [4]. Теоретической основой методики определения  $E_i$  является следующее допущение (подтверждаемое экспериментом). После преодоления последнего поверхностного барьера межузельный атом окажется в приповерхностной адсорбционной яме с той же энергией  $E_i$ , что и до перехода, не успев передать этот избыток энергии решетке, то есть окажется в сильно возбужденном состоянии в адсорбционной яме. В дальнейшем через какое-то время в процессе релаксации атом перейдет в основное адсорбированное состояние. Следовательно, под действием электрического поля адсорбированные атомы могут испаряться как из основного, так и из сильно возбужденного состояния. Анализ особенностей испарения атомов, находящихся в основном состоянии, был использован ранее для измерения энергии связи поверхностных атомов металлов [2,3]. Поскольку испаряющее поле сильно зависит от полной энергии испаряемого атома, искомая величина  $E_i \approx E_i^f$  может быть определена по разности напряженностей полей в этих двух ситуациях.

Исследования проводились в двухкамерном полевом ионном микроскопе, снабженном источником ускоренных нейтральных атомов гелия [5]. Образцы охлаждались до температуры жидкого водорода. Давление остаточных газов в рабочей камере, измерявшееся по времени формирования монослоя адатомов, не превышало  $10^{-6}$  Па. Игольчатые образцы с радиусом кривизны у вершины 20–60 нм изготавливались электрохимическим травлением из вольфрамовой проволоки чистотой 99,98% и полировались испарением в электрическом поле до сформирования атомногладкой поверхности. После этого проводилось облучение *in situ* нейтральными атомами гелия с энергией 7,0 кВ потоком  $1 - 15 \cdot 10^{11}$  атом/см<sup>2</sup>·с. Облучение осуществлялось в направлении, перпендикулярном оси [110], совпадающей с осью образца. В процессе облучения и в течение 5–20 с после выключения источника регистрировался диффузионный выход межузельных атомов на необлучаемую грань (110).

На рис.1 приведены ионно-микроскопические изображения поверхности образца до (а) и после (б) облучения флюенсом  $5 \cdot 10^{12}$  атом/см<sup>2</sup> при напряженности поля  $4,2 \cdot 10^{10}$  В/м. Напряженность поля рассчитывалась по отношению рабочего напряжения к пороговому напряжению испарения вольфрама при 20 К, соответствующему напряженности поля  $5,8 \cdot 10^{10}$  В/см. Межузельные атомы, выходящие на поверхность, обнаруживались как дополнительные центры повышенного эмиссионного контраста. Как показали проведенные исследования, количество вышедших на поверхность атомов, регистрируемых после облучения, существенно зависит от напряженности поля, при которой проводилось облучение. При повышении напряженности поля от  $4,3$  до  $4,5 \cdot 10^{10}$  В/м происходило падение количества регистрируемых атомов практически до нуля. При напряженности поля ниже  $4,3 \cdot 10^{10}$  В/м поток регистрируемых межузельных атомов не зависел от напряженности поля и был приблизительно равен потоку атомов радиационного происхождения, выходящих на поверхность в отсутствие поля.

Для удаления вышедших на поверхность и адсорбировавшихся на грани (110) собственных атомов необходимы существенно большие значения напряженности электрического поля:  $E_d = (5,1 \pm 0,4) \cdot 10^{10}$  В/м. Различие напря-

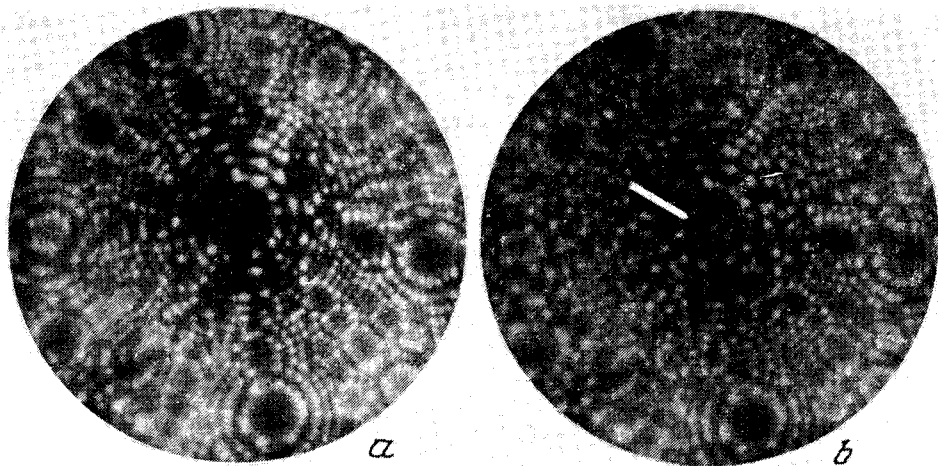


Рис.1. Ионно-микроскопические изображения вольфрамового образца до (а) и после (б) облучения атомами гелия. Стрелкой отмечен атом, вышедший на грань (110)

женностей поля десорбции свидетельствует о наличии существенного влияния выделяющейся энергии образования межузельного атома на процесс полевого испарения. Этот эффект может быть количественно описан в рамках модели сил изображения [2]. Как видно из энергетической диаграммы на рис.2, энергия приповерхностного межузельного атома превышает уровень основного состояния собственного атома на бездефектной решетке на величину  $E_i$ . Вследствие этого преодоление барьера сил изображения происходит при сравнительно низких значениях напряженности поля  $F_i$ . Из модели сил изображения непосредственно следует, что напряженность поля испарения атома, активированного выделением энергии  $E_i$ , равна

$$F_i = (ne)^{-3}(\Lambda_d - E_i + \sum_n J_n - n\varphi)^2, \quad (1)$$

где  $n$  – кратность заряда испаряемого иона;  $\Lambda_d$  – энергия десорбции,  $\sum_n J_n$  – полная энергия ионизации,  $\varphi$  – работа выхода электрона. Величины  $\Lambda_d$ ,  $E_i$  и  $\varphi$ , строго говоря, зависят от кристаллографической ориентации и кривизны исследуемого участка поверхности. В связи с этим для уменьшения погрешности  $E_i$  целесообразно определять по разности напряженности  $F_i$  и  $F_d$ , полученных в одних и тех же экспериментальных условиях:

$$E_i = (ne)^{3/2}(F_d^{1/2} - F_i^{1/2}). \quad (2)$$

Вольфрам при низких температурах испаряется в виде 3- и 4-зарядных ионов [2]. При напряженности поля  $F_i$  оба типа ионов преодолевают барьеры. В связи с этим для определения энергии, выделяемой при выходе на поверхность межузельного атома, необходимо принять  $n=4$ , соответствующим большей высоте барьера сил изображения. Подставляя в выражение (2) значения  $F_d = 5,1 \cdot 10^{10}$  В/м и  $F_i = 4,4 \cdot 10^{10}$  В/м, получим величину энергии межузельного атома  $E_i = (4,7 \pm 0,8)$  эВ.

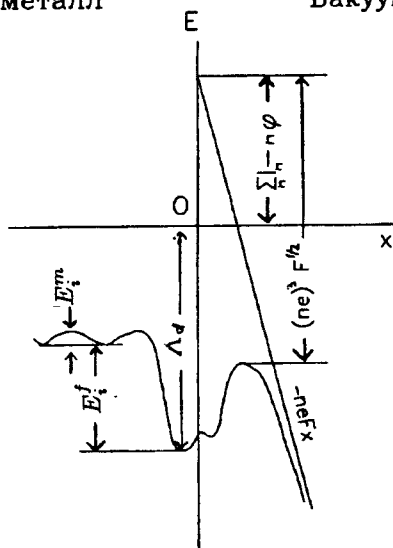


Рис.2. Энергетическая диаграмма полевого испарения выходящего на поверхность межузельного атома. Расстояние  $x$  отсчитывается от эффективной электронной поверхности

В связи с отсутствием в литературе надежных данных об энергии образования межузельных атомов нами был выполнен расчет  $E_i^f$  методом компьютерного моделирования с использованием парного потенциала Джонсона [6]. Модельный кристаллит состоял из 840 взаимодействующих атомов. Граничные условия и процедура расчета аналогичны использованным в работе [7]. Минимальное значение энергии  $E_i^f$  оказалось равным 4,9 эВ, то есть в пределах ошибки эксперимента совпадающим с полученным в работе значением  $E_i$  вольфрама. Такое совпадение  $E_i$  и  $E_i^f$  подтверждает сделанное предположение о малости работы сил изображения, совершаемой при переходе межузельного атома из объема в приповерхностную область. Кроме того, отсюда следует, что атом выходит на поверхность металла с энергией, близкой к  $E_i^f$ , то есть практически без потери энергии на возбуждение решетки. Эта избыточная энергия передается решетке в процессе перехода атома в основное адсорбированное состояние (при термализации).

Работа поддерживается Госкомитетом по вопросам науки и технологий Украины.

1. А.Н.Орлов, Ю.В.Трушин, Энергия точечных дефектов в металлах, М.: Энергоатомиздат, 1983.
2. Э.В.Мюллер, Т.Т.Цонг, Полевая ионная микроскопия, полевая ионизация и полевое испарение, М.: Наука, 1980.
3. H.J.Mamin, P.H.Guethner, and D.Rugar, Phys. Rev. Lett. **65**, 2418 (1990).
4. В.И.Герасименко, Ж.И.Дранова, И.М.Михайловский, ФТТ **25**, 2456 (1983).
5. Ж.И.Дранова, В.А.Ксенофонтов, В.Б.Кулько и др., ПТЭ, вып. 6, 166 (1980).
6. R.A.Johnson and P.J.White, Phys. Rev. B **18**, 2939 (1978).
7. В.С.Бойко, Т.И.Мазилова, ФТТ **34**, 2244 (1992).