

НОВЫЕ ПРИБОРЫ И МЕТОДЫ ИЗМЕРЕНИЙ

537.533.35

**МЕТОД КВАЗИЦВЕТНОСТИ
В АВТОИОННОЙ МИКРОСКОПИИ****А. Л. Суворов**

Реальное автоионное изображение поверхности металлического образца — автоэммиттера среднего радиуса кривизны $\sim 500 \text{ \AA}$ — насчитывает порядка 10^5 точек, каждая из которых соответствует спроектированному на флуоресцирующий экран автоионного микроскопа отображению единичного атома¹. Поэтому во многих случаях практически невыполнимой задачей является визуальное (без использования какой-либо дополнительной техники) определение несоответствия атомных деталей двух и более автоионных изображений, отражающих, например, различные стадии изучаемого процесса. Важное значение при сравнении и расшифровке серий автоионных изображений претерпевающей изменения поверхности автоэммиттера имеет применение квазицветности — метода искусственного окрашивания изображений с помощью цветных фильтров *). Главная цель использования указанного метода — выделение изучаемых эффектов из общего спектра явлений, обусловивших появление того или иного контраста черно-белых автоионных изображений. Развивается он в двух направлениях:

1) наложение двух или более черно-белых микрофотографий автоионных изображений (в работах зарубежных авторов, как правило, использовались негативы), спроектированных на общий экран через различные фильтры;

2) получение одноцветных, но цветных микрофотографий через фильтры разных цветов непосредственно с экрана автоионного микроскопа, покрытого цветным люминофором. При втором способе фотографируются разные стадии процесса; он также предполагает последующее наложение одноцветных микрофотографий и получение квазицветных автоионных изображений — в трех или более цветах.

Первое направление было впервые предложено создателем автоионного микроскопа Мкллером^{3, 4} и реализовано позднее в ряде работ по исследованию радиационных дефектов в металлах⁵ (особое значение имеет использование этого метода в случае регистрации одной и той же поверхности автоэммиттера во время облучения непосредственно в автоионном микроскопе^{6, 7}), самодиффузии⁸, адсорбции, десорбции и поверхностной миграции газовых молекул в сильном электрическом поле⁹⁻¹¹, при изучении сплавов¹. Второе стало применяться сравнительно недавно в работах Ван-Оострома¹² и Шуберта¹³ (в последней с использованием различных изображающих газов исследовалось образование пленок на

*) Используемая здесь терминология заимствована из работы².

поверхности автоэммитера); описанию ее применения посвящена и работа Брэндона и Мелмеда¹⁴ по анализу структуры ядра дислокации в вольфраме.

Авторы¹⁴, анализируя возможности и основные затруднения метода квазицветности, выделяют еще одно направление, отличающееся от первого лишь предварительной кинематографической регистрацией автоионных изображений; процесс их наложения не использует двойного проектора, а производится последовательно. Среди методических элементов, на которые обращено внимание в указанной работе, отмечены:

- а) механическая стабильность аппаратуры, используемой для наложения автоионных изображений;
- б) усушка пленки и ее искажение как после фотообработки, так и при возможном нагреве в проекторе;
- в) установление общей для двух автоионных изображений системы координат;
- г) изменение локального увеличения для атомов при изменении их окружения;
- д) смещение атомов во время их испарения полем.

Первые три пункта ясны; они могут быть если не полностью учтены в эксперименте, то, во всяком случае, достаточно точно оценены. Последние два явления интересны не только с методической точки зрения, хотя их учет во многих автоионномикроскопических исследованиях крайне необходим (например, при изучении распределения частиц различных компонентов по их размерам¹⁵). Можно ожидать, что анализ изменения размеров отображения отдельных атомов (или комплексов) в зависимости от их положения (атомного окружения) на поверхности автоэммитера не только увеличит надежность интерпретации реальных автоионных изображений и выявит некоторые новые возможности в этом направлении, но и поможет лучше понять сам процесс формирования изображения в автоионном микроскопе. Для проведения указанного анализа нами наряду с фотометрированием черно-белых автоионных изображений применялся метод квазицветности (рис. 1). Его использование в данном случае, хотя и не дает очевидных преимуществ, однако позволяет получить весьма наглядные картины и оценить возможный вклад указанного эффекта в наблюдаемое искажение цветного контраста (появление у точек «ореолов» другого цвета) квазицветных автоионных изображений. Рис. 1 получен наложением двух автоионных изображений участка поверхности бугра на вольфрамовом автоэммитере, зафиксированных в процессе непрерывного испарения полем¹⁶. Съемка, как и в большинстве рассмотренных ниже случаев, велась кинокамерой РФК-5. Для усиления яркости использовался трехкамерный электронно-оптический преобразователь типа УМ-92¹⁷. Время экспозиции t_0 и потенциал образца U_0 указаны на рисунке; примерное увеличение во всех случаях составляло $\sim 5 \cdot 10^6$. Изображающим газом служил гелий, температура автоэммитера во время анализа составляла 78 °К. Зеленое пятно на рис. 1 соответствует изображению некоторого атома a в случае, когда другой атом, b , не отображается (пятно, указанное стрелкой 2 на первом автоионном изображении, отсутствует). Переход атома b в отображаемое положение (в процессе непрерывного испарения полем поверхностных атомов автоэммитера) приводит к резкому уменьшению размеров изображения атома a (черное пятно на зеленом фоне — указано стрелкой 1). Заметим, что помимо изменения размеров отображения атома a изменяется и местоположение его (отображения) «центра тяжести».

Использование методики квазицветности для определения относительной адсорбционной способности a' различных кристаллографических

граней иллюстрирует рис. 2. Исходные автоионные изображения соответствовали очищенной электрическим полем поверхности (первое) и той же поверхности, покрытой атомами и молекулами остаточных газов (второе). Адсорбция осуществлялась путем кратковременного снижения потенциала образца U_0 на некоторую величину ΔU_c . Варьирование времени выдержки Δt автоэммиттера при $U = U_0 - \Delta U_c$ позволяло менять в широком диапазоне количество адсорбированных частиц, а варьирование величины ΔU_c — ограничивать их тип. Способ вычисления a' описан в работе ¹⁰. Метод квазицветности позволяет в данном случае однозначно отделить изображения адсорбированных частиц от атомов матрицы, что приводит к заметному повышению точности искомых величин a' , а также существенному облегчению самой процедуры обработки автоионных изображений.

Другим, весьма эффективным, на наш взгляд, применением метода квазицветности является анализ типа поверхностных частиц ¹⁸. Как известно ¹⁹, одна из важнейших проблем в автоионной микроскопии — определение типа частицы, ответственной за появление на автоионном изображении того или иного яркого пятна или группы пятен. Чрезвычайно эффективный и достаточно точный способ зондового анализа ^{19, 20}, требующий помимо прочего весьма сложного и дорогостоящего оборудования, не позволяет определить одновременно природу нескольких пятен (например, всех пятен повышенной яркости) в различных местах анализируемой поверхности автоэммиттера. Это вызвано тем, что испаряющий импульс приводит к удалению не только «зондируемого» (выведенного к зондирующему отверстию) атома или комплекса. В то же время в ряде случаев наличие такой информации об одной и той же поверхности бывает крайне необходимо. Сущность предложенного авторами ¹⁸ метода анализа состоит в том, что потенциал автоэммиттера испытывает кратковременные пульсации со все возрастающей амплитудой $n \cdot \Delta U_b$ (n — порядковый номер импульса) — от значения U_0 , соответствующего условиям наилучшего отображения поверхности, а кинематографическая регистрация автоионных изображений осуществляется в промежутки между импульсами. По полученной серии $N = [(U_{\text{исп}} - U_0)/\Delta U_b] + 2$ черно-белых автоионных изображений методом квазицветности изготавливаются $(N - 1)$ квазицветных автоионных изображений (слайдов), причем парами для каждого квазицветного автоионного изображения служат соседние по экспозиции кадры (рис. 3). Затем производится обмер слайдов на полуавтоматическом измерительном устройстве ¹¹, при котором координаты точек определенного цвета (для рис. 3 — зеленого) набиваются на перфокарты. Способ требует проведения эталонных экспериментов (их число определяется задачами предпринимаемого исследования и может быть незначительным), в которых указанная информация набирается для многих известных адсорбированных (напыленных) на поверхности веществ. Окончательные расчеты проводятся на ЭВМ по специальной программе.

Мы еще хотим обратить внимание также на качество приведенных на рис. 2 и 3 квазицветных автоионных изображений с точки зрения их обработки (обмера на измерительном устройстве, визуального анализа). Квазицветное автоионное изображение на рис. 2 получено при наложении с негативов, в то время как в случае рис. 3 использовались предварительно изготовленные позитивы. По-видимому, второй способ дает более удовлетворительные результаты. В случае рис. 3 соответствующим подбором фильтров удалось к тому же значительно ослабить контраст от матрицы, в результате чего окончательный контраст позволяет идентифицировать кристаллографические грани, но не мешает обработке.

Описанные выше области применения метода квазицветности (за исключением случая, соответствующего рис. 1) имеют одну общую особенность: анализируемые в них исходные автоионные изображения (как черно-белые, так и одноцветные) получены в стационарном режиме — при $U = U_0$. Все манипуляции по изменению поверхности (исключение составляет облучение автоэммиттера во время его автоионномикроскопического анализа) проводятся в промежутки между экспозициями. В настоящей работе сообщается об использовании этой методики при изучении кинетики процесса испарения полем в непрерывном режиме. Как было показано в работах ^{16, 21}, такие исследования позволяют не только определить некоторые важные параметры самого процесса, но и установить относительные энергии связи атомов с различной координацией на поверхности автоэммиттера. Исходной информацией при этом служат временные зависимости диаметров d (точнее, размеров в двух взаимно перпендикулярных направлениях) отображаемых краев определенных кристаллографических плоскостей. Помимо затруднений, связанных с проведением самого эксперимента, тут приходится сталкиваться еще с одной трудностью — при обмере автоионных изображений и анализе результатов. Дело в том, что в процессе кинематографической регистрации автоионного изображения на кадры могут «попадать» изображения атомов, смещенных из своих мест в решетке, но еще не удаленных полностью. При этом на автоионном изображении им могут соответствовать не только смещенные относительно исходных яркие пятна, но и пятна размазанные. Именно этому эффекту и соответствует значительная часть (доля зависит от отношения скорости процесса испарения полем и скорости регистрации автоионных изображений) точек наклонных участков экспериментальных зависимостей $d = f(t)$, где t — время ¹⁶. Учесть указанный эффект, а также провести более точные измерения значений разности Δd для двух (не обязательно соседних по номеру кадров) автоионных изображений и позволяет метод квазицветности. Примеры двух квазицветных автоионных изображений, полученных для трех соседних по экспозиции черно-белых автоионных изображений, приведены на рис. 4. Изучалась кинетика непрерывного испарения полем чистого вольфрама. Печать производилась с позитивов автоионных изображений через различные (для рис. 4, а и б) фильтры. «Одиночные» цвета соответствуют на рисунках атомам, испарившимся в промежутках между экспозициями, и атомам, оказавшимся в результате этого в отображаемых положениях. Цвет «сложения» указывает на смещения атомов в процессе испарения полем. Не вдаваясь в подробности, заметим, что при анализе таких квазицветных автоионных изображений (рис. 4) учитывалось и возможное влияние послесвечения люминофора автоионного микроскопа и электронно-оптического преобразователя, а также возможное наложение изображений атомов соседних параллельных плоскостей.

Можно отметить еще одно интересное, на наш взгляд, направление использования метода квазицветности — изучение начальной стадии формирования автоионного изображения (рис. 5). Имеется в виду, что потенциал образца «мгновенно» поднимается от нуля до U_0 (определенного для данного автоэммиттера заранее) и остается постоянным, а съемка ведется непрерывно кинокамерой. В зависимости от степени загрязнения поверхности адсорбированными частицами остаточных и изображающих газов (т. е. в зависимости от степени предварительного разряднения и промежутка времени, прошедшего после снятия с образца напряжения U_0 на предшествующем этапе эксперимента) на экране автоионного микроскопа постепенно формируется тот или иной контраст. Если загрязнение незначительно, то сквозь характерные «мигания» картины на экране автои-

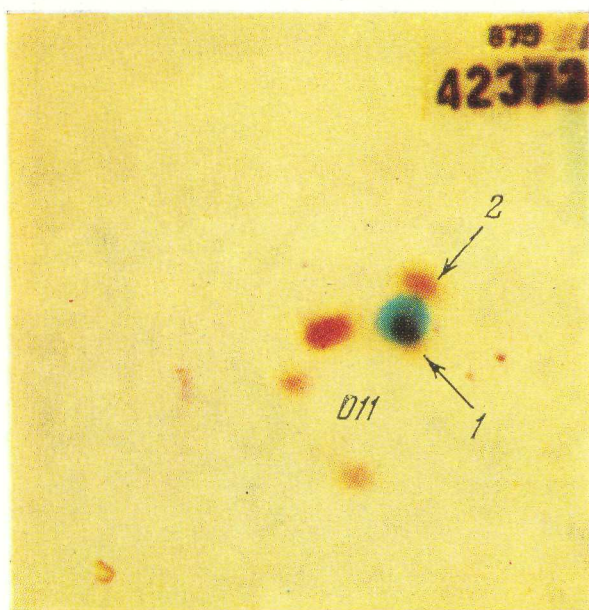


Рис. 1. Изменение размеров отображения единичных атомов поверхности с изменением атомного окружения ($t_0 = 1/33$ сек, $U_0 = 9,9$ кэ).

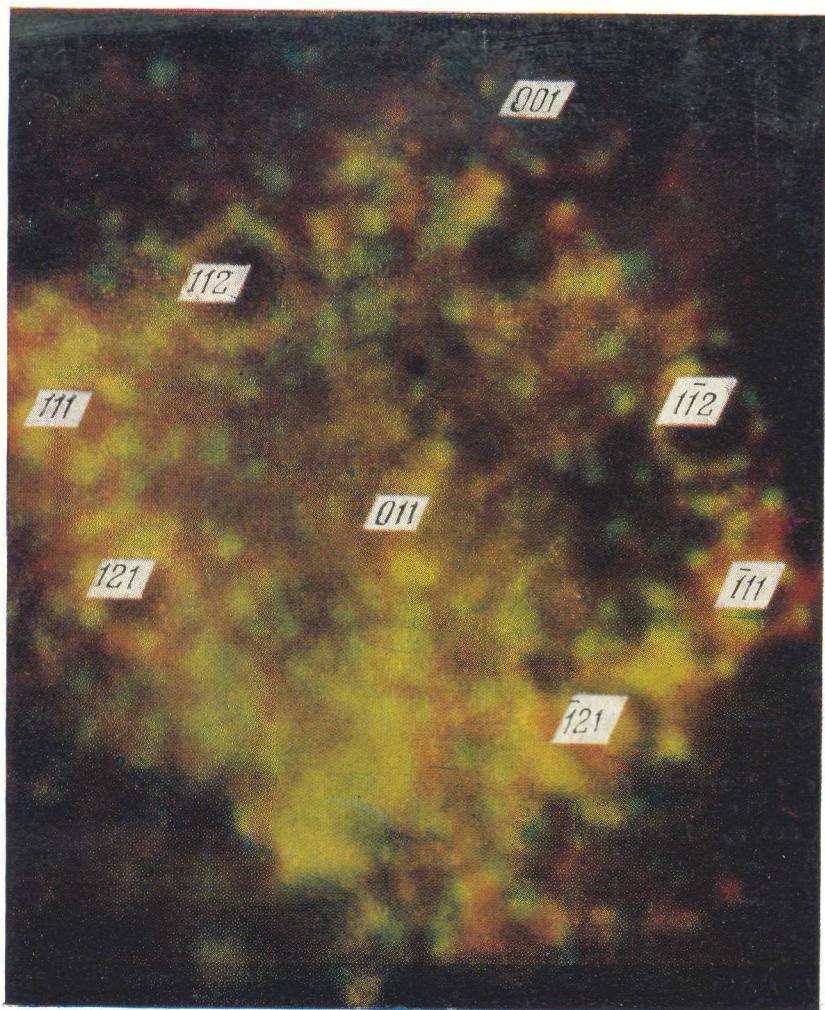


Рис. 2. Автономное изображение поверхности вольфрамового образца, покрытой адсорбированными атомами остаточных газов (зеленые точки) ($t_a = 1,0$ сек, $U_0 = 9,4$ кэ).

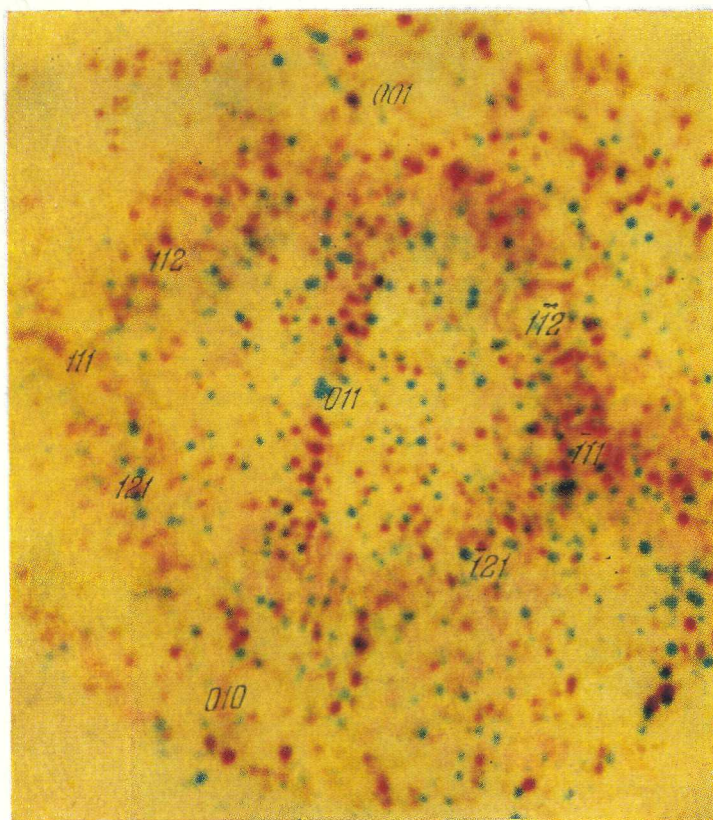


Рис. 3. Изменение поверхности в результате импульсного подъема потенциала образца.

Зеленые точки соответствуют удаленным чужеродным атомам, красные—оставшимся ($U_0 = 11,5$ кэ).

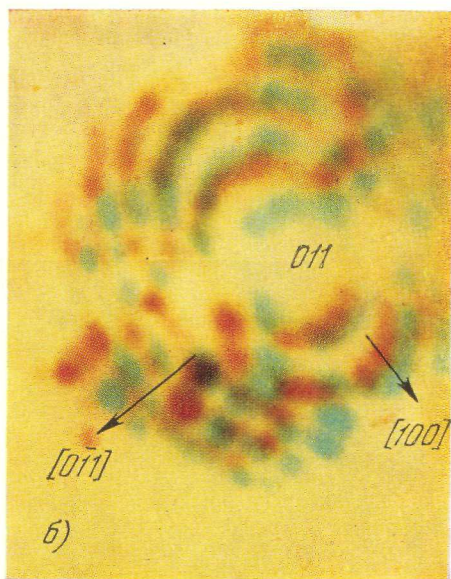
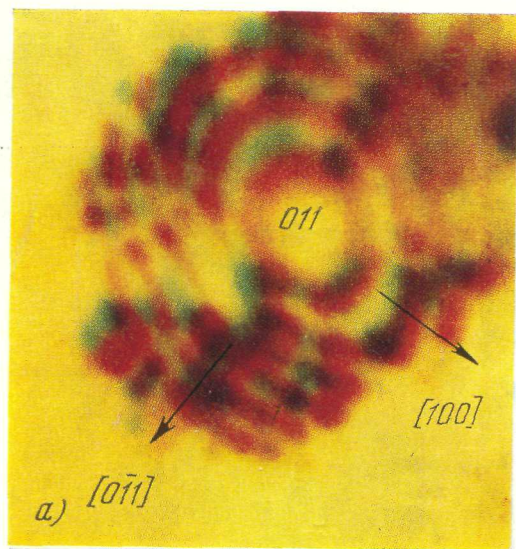


Рис. 4. Кинетика непрерывного испарения полем центральной грани (011) вольфрамового образца ($t_0 = 0,5$ сек, $U_0 = 9,9$ кВ). Совмещение соседних по экспозиции кадров № 1—№ 2 (а) и № 2—№ 3 (б) через разные фильтры

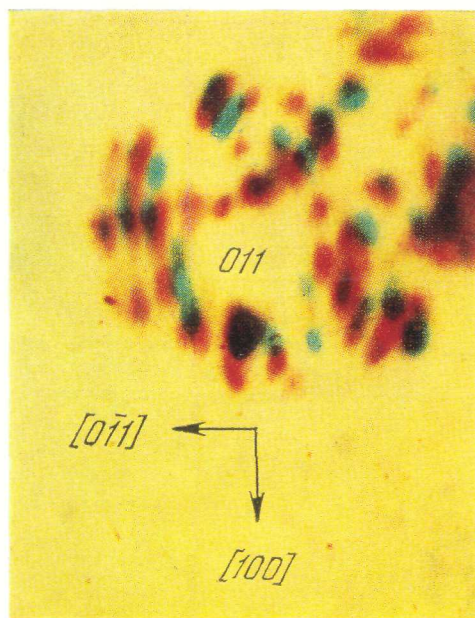


Рис. 5. Начальная стадия формирования автоионного изображения вольфрамового образца ($t_0 = 0,5$ сек, $U_0 = 14,0$ кВ).

онного микроскопа начинает «проглядывать» кристаллическая структура образца; анализ кинетики ее развития помогает лучше понять некоторые существенные детали процесса формирования автоионного изображения.

Автор благодарен Г. М. Кукавадзе, А. Ф. Бобкову, Б. Я. Кузнецову и В. А. Кузнецову, совместно с которыми были выполнены упомянутые здесь работы.

Институт теоретической и экспериментальной физики,
Москва

ЦИТИРОВАННАЯ ЛИТЕРАТУРА

1. Э. Мюллер, Т. Цонь, Автоионная микроскопия, М., «Металлургия», 1972.
2. Г. В. Спивак, Г. В. Сапарин, М. К. Антошин, УФН **113**, 695 (1974).
3. E. W. Mueller, J. Appl. Phys. **28**, 1 (1957).
4. Э. В. Мюллер, УФН **77**, 481 (1961).
5. E. W. Müller, Umschau **57**, 579 (1957).
6. А. Л. Суворов, УФН **101**, 21 (1970).
7. R. M. Scanlan, D. L. Styris, D. N. Seidman, Phil. Mag. **23**, 1439 (1971).
8. G. Erlich, F. Hudda, J. Chem. Phys. **44**, 1039 (1966).
9. Г. Эрлих, Взаимодействие газов с поверхностями, М., «Мир», 1965, стр. 47.
10. А. Л. Суворов, Г. М. Кукавадзе, ФММ **30**, 116 (1970).
11. М. М. Бутслов, А. Ф. Бобков, Н. Д. Гришин, Г. М. Кукавадзе, Б. Я. Кузнецов, Т. Л. Разинкова, А. Л. Суворов, ПТЭ, № 6, 212 (1972).
12. A. van Oostrom, Ned. Tijdschr. Vacuumtechniek **9**, 13 (1972).
13. C. C. Schubert, J. Microscopy **95**, 467 (1972).
14. D. G. Brandon, A. J. Melmed, ibid. **100**, 75 (1974).
15. A. Youle, D. M. Davies, B. L. Dury, D. M. Schwartz, D. M. Taylor, B. Ralph, ibid. **95**, 39 (1972).
16. А. Л. Суворов, Т. Л. Разинкова, Г. М. Кукавадзе, А. Ф. Бобков, Б. Я. Кузнецов, В. А. Кузнецов, ЖЭТФ **68**, 1460 (1975).
17. М. М. Бутслов, А. Ф. Бобков, М. К. Власов, Н. Д. Гришин, Г. М. Кукавадзе, Б. Я. Кузнецов, А. Л. Суворов, Ю. В. Терехов, ПТЭ, № 6, 137 (1971).
18. А. Л. Суворов, А. Ф. Бобков, Б. Я. Кузнецов, Авторское свидетельство № 448512 (заявка № 1900579/26-25 с решением от 1.2.1974 г.), Открытия, изобретения, промышленные образцы и товарные знаки, № 40, 110 (1974).
19. А. Л. Суворов, В. В. Требуховский, УФН **107**, 657 (1972).
20. E. W. Müller, Adv. Mass. Spectrometry **5**, 427 (1971).
21. А. Л. Суворов, Г. М. Кукавадзе, Д. М. Скоров, А. Ф. Бобков, Б. Я. Кузнецов, Б. А. Калинин, В. Б. Волков, С. В. Зайцев, АЭ **38**, 72 (1975).