

原子探针的研制

刘永昌 李士丽 陈之和 傅锐明 肖桂里
(中国科学院科学仪器厂)

[摘要] 本文叙述直线型原子探针的设计和制造技术,其质量分辨本领 $M/\Delta M \approx 300$, 探测效率约 50%。文中还讨论了提高质量分辨本领的方法。

1968 年 E. W. Müller 创造的直线型高压脉冲飞行时间原子探针(简称原子探针)^[1], 是一种非常灵敏的表面微分析仪器。我国第一台原子探针是在 1983 年研制成功的, 本文介绍其设计、制造技术以及提高质量分辨本领的主要途径。

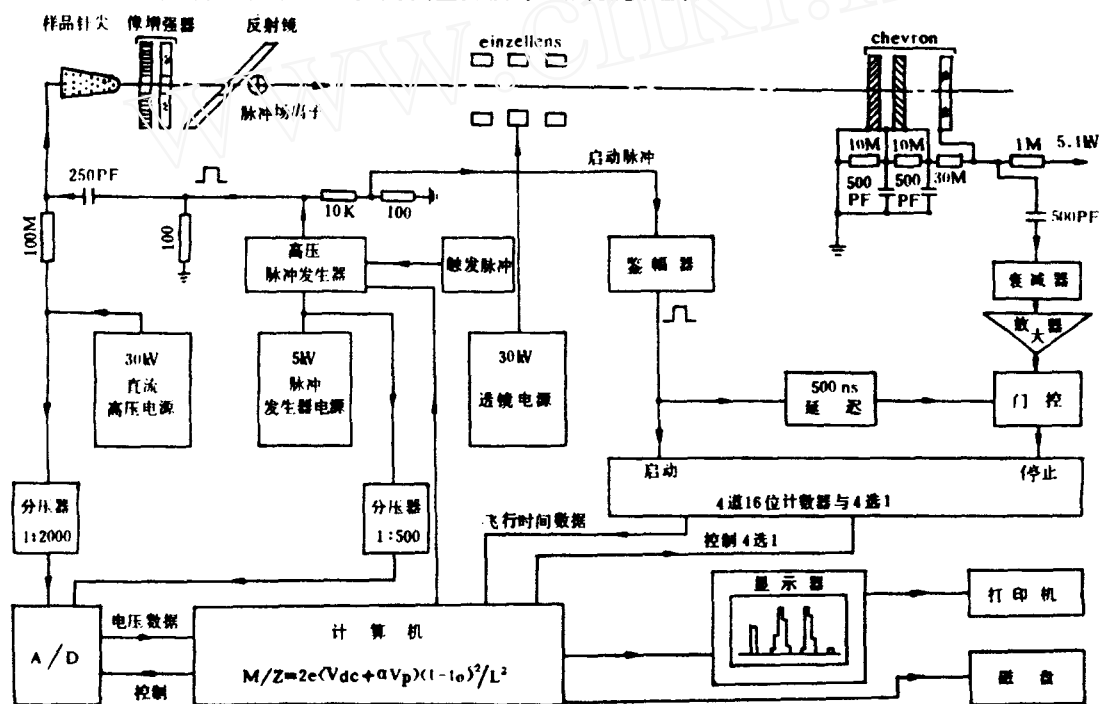


图 1 直线型高压脉冲飞行时间原子探针工作原理

1988 年 9 月 22 日收

一、基本工作原理

图 1 表示原子探针的基本工作原理。当针尖状样品表面局部场强达到每 Å 几个伏特时,表面原子以正离子形式蒸发。这些场蒸发离子在样品和探针孔之间被加速后,以一定能量经探针孔进入无场区,经过一段飞行距离抵达离子探测器。蒸发离子的质荷比为:

$$M/Z = 2eVt^2/L^2 \quad (1)$$

式中 M 为离子质量, Z 为电荷数, e 为电子电荷, V 为加速电压, t 为飞行时间, L 为飞行距离。由计时器测定的飞行时间,就可求出该离子的质荷比。

二、设计原理

1. 质量分辨本领

影响质量分辨本领的因素很多^[2],现只考虑几个主要的。从式(2)可近似求出质量分辨本领 $M/\Delta M$:

$$\frac{M}{\Delta M} \approx \sqrt{\left(\frac{L}{2\Delta L}\right)^2 + \left(\frac{t}{2\Delta t}\right)^2 + \left(\frac{V}{\Delta V}\right)^2} \quad (2)$$

式中 ΔL 为飞行距离误差, Δt 为飞行时间误差, ΔV 为离子能量误差。

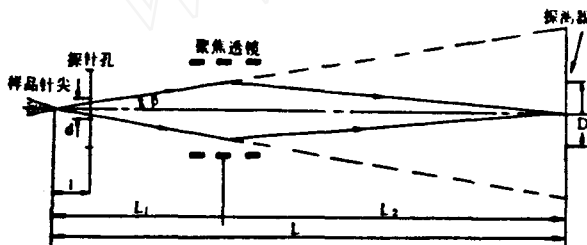


图 2 聚焦透镜、探针孔、样品与样品像的关系

如图 2 所示,将样品置距透镜 L_1 处, l 是探针孔与样品之距离, L_2 为透镜至探测器距离, d 为探针孔直径, β 为探针孔对样品的半张角。若 β 很小,则

$$\Delta L = L_1 L d^2 / 8 l^2 L^2 \quad (3)$$

Δt 的主要来源有二:一是高压脉冲宽度,二是探测记录系统的时间精度。若脉冲宽度约 10nS,计时器精度约 5nS,则

$$\Delta t = \sqrt{10^2 + 5^2} = 11.2 \text{ nS}$$

ΔV 主要来自离子能量亏损,其值一般为离子总能量的 1% 左右^[3]。现取 $\Delta V/V \geq 1 \times 10^{-2}$ ^[4]。对于 $d=2\text{mm}$, $L=1.5\text{m}$, $V=10\text{KV}$ 时,预期的分辨本领为 350。从计算可知, ΔV 是影响分辨本领最主要的因素。

图 3a 和 3b 是本仪器分析 W 样品的直方图。W 的主要同位素 ^{182}W 、 ^{184}W 、 ^{186}W 均能分开,分辨本领为 300 左右。图 4 是分析 Ni-Be 合金的质谱图,可清楚看出 Be^{++} 、 Be^+ 、 BeH^+ 、 $^{58}\text{Ni}^{++}$ 、 $^{58}\text{Ni}^+$ 、 $^{60}\text{Ni}^+$ 的质谱峰。

2. 透过率和场致蒸发电压

为提高透过率,在离子光路上设置了聚焦透镜(见图 2)。当探针孔直径为 2mm,飞行

距离为 1.5m, 没有透镜时, 像的直径为 60mm。一般探测器的有效接收面积远小于此。为此, 光路中设置了一个三园筒对称静电单透镜进行聚焦^[5]。透镜中间电极的电压约为加速电压的 85%, 两边电极接地。在探针孔与样品相距 50mm 时, 在飞行距离 1.5m 处, 可得到直径约 4~5mm 的像。另外由于探测器的探测效率约为 60~70%, 因此, 本原子探针系统的总离子探测效率为 50% 左右^[6]。

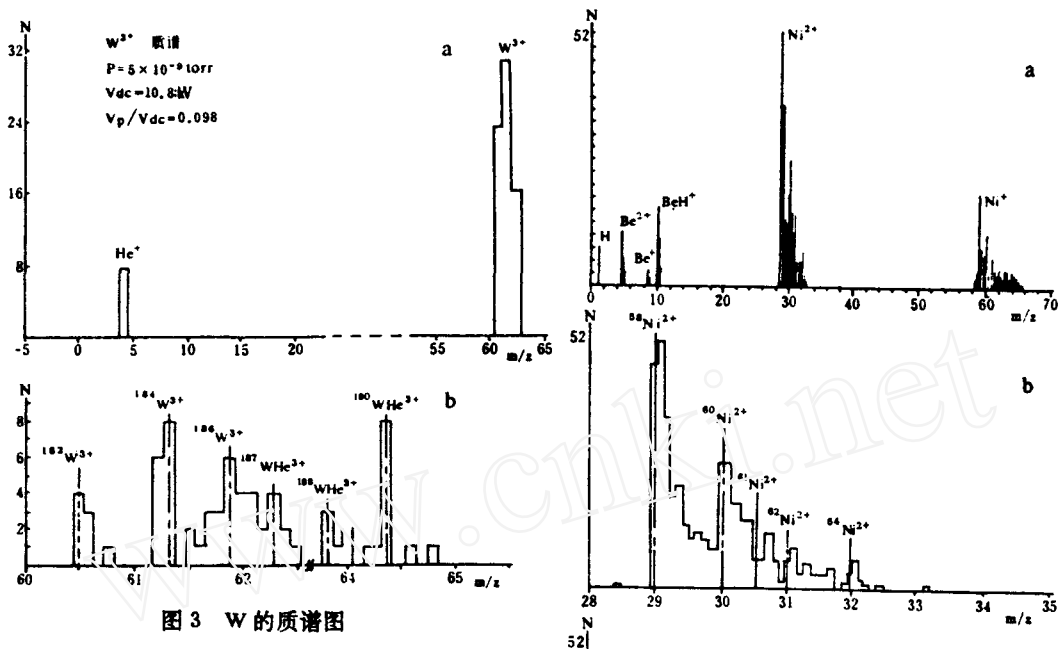


图 3 W 的质谱图

场致蒸发电压由式(4)确定:

$$F = V/Kr \quad (4)$$

式中 V 是样品电压, r 是样品针尖曲率半径, K 是场因子, 一般为 4。金属场蒸发的场强约为 400~1200 MV/cm^[7], 若 $r = 500 \text{ \AA}$, $V = 8 \sim 24 \text{ kV}$, 则 $F = 4 \sim 12 \text{ V/\AA}$ 。因此, 场蒸发电压取 0~30 kV。为保证质量分辨本领, 其稳定度要求优于 1×10^{-3} 。

3. 离子探测器

原子探针中, 需要一种能探测单个离子的探测器, 并要求增益高, 噪声低, 反应时间短。微通道板探测器能满足这些要求, 且有动态范围大, 短时暴露大气增益仍稳定的特点。

为使一个离子经探测器后产生的电脉冲有足够幅度去停止计时器^[8](计时器的停止信号约 0.8V), 需用两块通道板串接, 其总增益应为 10⁷ 左右。微通道板探测器输出再经前置放大器达到所需脉冲幅值。

探测器输出脉冲的信噪比与其工作电压有关, 当电压增到一定值后, 本底与信号逐渐

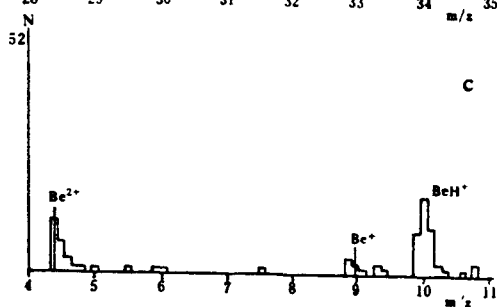


图 4 Ni-Be 合金的实测质谱图

分开,随后相互关系不再改变。原子探针采用的探测器的每块微通道板工作电压为 1KV, 荧光屏相对最后一块板电压为 3KV, 所以供电电源电压为 5KV, 其稳定性为 1×10^{-3} 。

4. 高压脉冲和质量范围

式(1)是确定场蒸发离子质荷比的理论方程式, 实际上考虑到一些具体条件, 式(1)应改写为:

$$M/Z = 2e(V_{dc} + \alpha V_p)(t - t_0)^2/L^2 \quad (5)$$

式中, V_{dc} 是样品直流成像电压, V_p 是蒸发脉冲电压, α 是脉冲反射系数, t 是计时器测得的飞行时间, t_0 是延迟时间。若 M/Z 为 amu, V_{dc} 和 V_p 为伏, t 和 t_0 为 μs , L 为 mm, 则

$$M/Z = 193.0(V_{dc} + \alpha V_p)(t - t_0)^2/L^2 \quad (6)$$

$V_p/V_{dc} = af$, 一般为 0.13~0.15, 最大 0.25。因能量亏损随 af 的减小而减小, 所以需要高分辨时, 使用 af 的最小可能值, 其最小极限为 0.02, 低于此值, 直流场蒸发速率就和脉冲场蒸发速率相近。 $af = 0.02 \sim 0.15$ 时, $V_p = 480 \sim 3600$ 伏, 根据实际情况, 取 $V_p = 500 \sim 2500$ 伏, 连续可调。

讨论分辨本领时, 我们注意到在 Δt 中, 蒸发脉冲宽度越窄越好, 由于制作难度所限, 脉宽一般为 10ns, 频率分 4 档: 100Hz、50Hz、25Hz、12Hz, 可供选择。计时器设 4 个通道, 可记录一个高压脉冲中产生的 4 个离子。 V 为一定时, M/Z 的测量范围由 t 的测量范围确定。设 $L = 1.5m$, $V = 5KV$, 测定最大质量为 500amu, 飞行时间 t 为 34.2 μs 。因此, 计时器最大记录时间定为 40 μs 。为减少本底干扰, 增设了 5 μs 、10 μs 、20 μs 三档。

三、主体结构设计

图 5 为原子探针结构示意图。样品、探针孔、反射观察镜、静电透镜在主真空室。主真空室由涡轮分子泵和离子泵排气, 充分烘烤, 真空度可达 5×10^{-9} 托。飞行管内径为

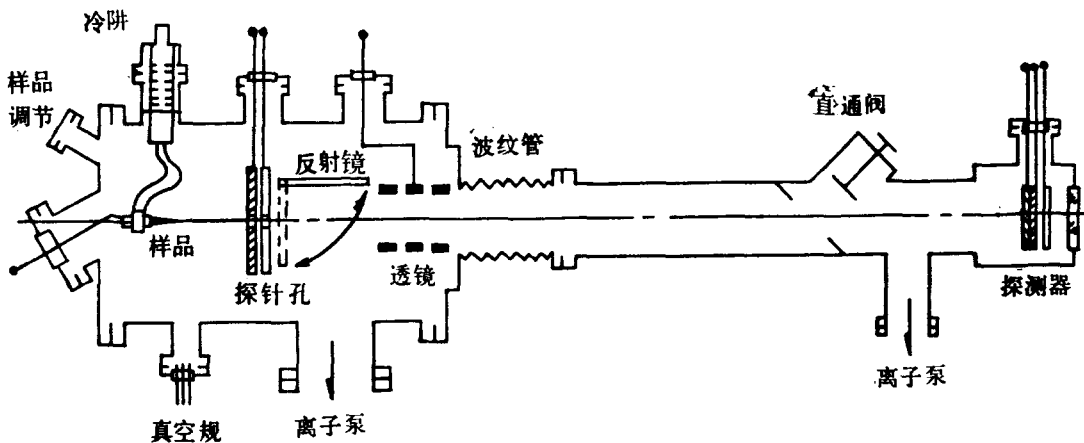


图 5 直线型飞行时间原子探针结构示意图

68~78mm,其终端装置为 Chevron 离子探测器。探测器前并联 JB-50 离子泵辅助排气,并加直通隔断阀控制与主真空室的通断。主真空室与飞行管道用波纹管连接,便于调整探测器的空间位置。整个壳体结构由无磁不锈钢制作。

样品针尖距离带有探针孔的图像增强器 20~120mm,可调,一般置于 50mm 处;距透镜约 276mm;距探测器探测表面约 1.5m。样品装在五自由度样品架上,能灵便调节样品在空间的位置,以便光学系统的准直和样品针尖上微分析区的选择。探针孔在图像增强器的光学中心,随图像增强器的轴向移动而改变离子的发射张角。探针孔直径一般为 2mm,其后是倾斜 45°的反射镜,用来观察分析区的选取和探针孔的准直。在进行原子探针实验时,反射镜可通过真空系统外的调节杆移开。

三园筒对称形静电透镜电极的内半径取 25mm,三个园筒电极皆长 12.5mm,用无磁不锈钢制作。每两个园筒电极间用高绝缘可加工陶瓷环隔开 12.5mm。透镜组装成一整体,保证其几何中心线与光轴线基本合一,安装也简单可靠。

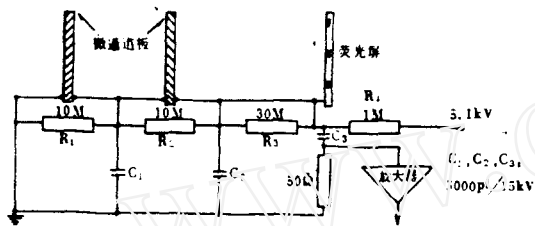


图 6 离子探测器原理示意图

离子探测器是原子探针的核心部件之一。一般采用有效探测面积直径大于 32mm 的微通道探测器。为增加增益,用两块通道板串接而成。荧光屏为校准用。其供电图如图 6 所示。信号接收输出极为荧光屏,是在光学玻璃上涂一层厚 300~500 Å 的氧化锡透明导电层做电极,其上涂敷 P₂₀ 荧光粉。两块通道板两边加上精磨的两个厚 1mm 的铜环做电极。通道板与荧光屏相距约 2.5~3.0mm。整个通道板和荧光屏装在不锈钢和可加工陶瓷构成的底座上,适合真空系统的循环烘烤。装架时注意保证电接触可靠,通道板表面保持清洁,严防擦伤,否则会造成寄生噪声。每个通道板的电压不应超过 1kV,荧光屏的电压为 5kV。

整个通道板和荧光屏装在不锈钢和可加工陶瓷构成的底座上,适合真空系统的循环烘烤。装架时注意保证电接触可靠,通道板表面保持清洁,严防擦伤,否则会造成寄生噪声。每个通道板的电压不应超过 1kV,荧光屏的电压为 5kV。

四、讨 论

由于能量亏损太大,使原子探针的分辨本领不高,解决的基本方法是在光学系统中引入 Poschenieder 的 163.2° 环形静电偏转器,实现能量聚焦,可使分辨本领提高到 1000^[9]。但设计制造非常复杂,调整也很困难。

激光脉冲引起的能量分散,约为高压脉冲的 1/500,这种激光原子探针的分辨本领可达到 3000^[4],它可用于电介质材料的分析。

参 考 文 献

- [1] Müller, E. W. , Panitz, J. A. & McLane, S. B. , Rev. Sci. Instrum. 39, 83(1968)
- [2] 肖桂里、刘永昌,原子探针总体设计和调试, (1984)
- [3] Krishnaswamy, S. V. & Müller, E. W. , Rev. Sci. Instrum. 45, 1049 (1974)
- [4] Tsong, T. T. , McLane, S. B. & Kinkus, T. J. , Rev. Sci. Instrum. , 53 1442(1982)
- [5] El-Karen, A. B. & Sturans, M. A. , J. Appl. Phys. , 42, 1870(1971)
- [6] Andsen, H. O. & Norden, H. , Scand. J. Metallurgy, 8, 147(1979)
- [7] Müller, E. W. & Tsong, T. T. , Field Ion Microscopy, Elsevier, New York(1969)
- [8] 陈之和、李士丽,原子探针电气部分设计与调试, (1984)
- [9] Müller, E. W. & Krishnaswamy, S. V. , Rev. Sci. Instrum. , 45, 1053(1974)

Development of Atom Probe

Liu Yongchang, Li Shili, Chen Zhihe,

Fu Kunming, Xiao Guili

(Scientific Instrument Factory, Academia Sinica)

Received 22, Sep. 1988

Abstract

In this paper, the development of Linear-type Time-of-Flight Atom Probe has been described. The resolution $M/\Delta M$ is about 300, and the detect efficiency is about 50%. We also discuss how the mass resolution can be further improved.