

文章编号: 1007-4627(2009)02-0140-06

# SPEES针尖参数对样品表面电子出射影响的模拟研究<sup>\*</sup>

李继伟, 徐春凯<sup>#</sup>, 刘文杰, 方可, 陈向军, 徐克尊

(合肥微尺度物质科学国家实验室, 中国科学技术大学近代物理系, 安徽 合肥 230026)

**摘要:** 报道了对扫描探针电子能谱仪(SPEES)中俄歇电子出射的理论模拟研究。通过对俄歇电子在针尖电场作用下运动轨迹的模拟以及综合考虑从针尖场发射电子到俄歇电子出射全过程中各种因素的影响, 系统研究了针尖形状、针尖偏压和针尖-样品距离对俄歇电子出射效率的影响, 以及出射俄歇电子束流密度在针尖电场区边缘处的分布。研究结果为提高SPEES的收集效率、空间分辨以及能量分辨提供了重要的参考数据。

**关键词:** 扫描探针电子能谱仪; 电子光学模拟; 场发射; 俄歇电子

**中图分类号:** O463<sup>+</sup>.1; O485; O582

**文献标识码:** A

## 1 引言

自从扫描隧道显微镜(STM)发明以来<sup>[1]</sup>, 虽然在单原子分子测控上的研究已取得巨大进展<sup>[2-7]</sup>, 但是作为单原子分子测控中的重要环节——单原子识别, 至今在纳米级实空间仍未能实现。单原子分子测控意义上的原子识别要求原子级的空间分辨、单原子元素分析及无损探测。在现有的表面研究手段中, 扫描探针技术能独立地对原子分子进行实空间的成像和测控, 是目前唯一有可能实现对固体表面单原子测控的手段。将STM对表面实空间单原子级的成像能力与原子物理中经常使用的能谱测量技术结合起来, 通过能谱分析的方法来识别原子种类, 有可能发展成为一种新的真正意义上的微区原子识别装置<sup>[8-24]</sup>。在这方面已进行了一些初步研究, 如结合STM和电子能量损失谱仪(EELS)的扫描探针能损谱仪(SPELS)<sup>[8-13]</sup>, 结合STM和俄歇谱仪(AES)的扫描探针俄歇谱仪(SPAES)<sup>[14-20]</sup>, 以及本实验组正在进行的扫描探针电子能谱仪(SPEES)的相关研究<sup>[21-23]</sup>。在这些实验中, 都是利用STM的针尖作为场发射电子源, 由于针尖与样品间距很近, 针尖电场对样品表面出射的次级电子有抑制作用, 因此研究不同条件(如针尖形状、针尖电压和针尖样品距离)对电子出射的影响是一个重

要课题。Palmer等<sup>[10]</sup>模拟了针尖场发射电子在针尖样品区的轨迹, 进而得到了样品表面相应的电流密度分布, 而Mizuno等<sup>[24]</sup>则模拟了30 V偏压下二次电子的逸出。文献<sup>[23]</sup>全面考虑了针尖与样品区的各种作用因素, 包括针尖的场发射、样品表面的电离、俄歇电子产生与出射等, 在132 V偏压下模拟了针尖样品区的俄歇电子发射特性。

在本工作中进一步研究了针尖形状、针尖电压及针尖-样品距离对俄歇电子逸出影响。模拟中系统考虑了从针尖场发射电子到俄歇电子逸出针尖电场区的全过程中各种因素的影响, 最终得到不同条件下逸出针尖电场区的俄歇电子的相对束流强度分布, 这将为改进扫描探针电子能谱实验及进一步的SPEES电子光学性能研究提供重要的参考数据。

## 2 理论模拟

理论模拟利用SIMION8.0软件进行, 模拟方法与文献<sup>[23]</sup>中的相同, 不再赘述。模拟中一共使用了6种针尖, 按针尖类型分为两组: 圆珠笔式(A型)和顶锥式(B型)。A型针尖为纯圆锥体, 屏蔽筒内径420  $\mu\text{m}$ , 针尖顶部伸出屏蔽筒50  $\mu\text{m}$ , 半锥角分别为5°, 10°和15°, 标记为A5, A10和A15。图1(a)为A10针尖的SIMION8.0模型和具体参数。

\* 收稿日期: 2008-10-31; 修改日期: 2008-12-30

\* 基金项目: 国家自然科学基金资助项目(10404026); 国家基础科学人才培养基金资助项目(J0630319)

作者简介: 李继伟(1982-), 男(汉族), 河南扶沟人, 硕士研究生, 从事表面电子谱学研究; E-mail: ljw1116@mail.ustc.edu.cn

# 通讯联系人: 徐春凯, E-mail: xuck@ustc.edu.cn

B型针尖在形状上模拟了电化学腐蚀针尖<sup>[11, 23]</sup>, 由顶部的锥体和底部的圆柱体构成。顶部的锥体分为3个部分: 尖端是长10 μm的抛物线旋转体, 抛物线的曲率半径为50 nm; 中部是长213 μm的圆锥体, 半锥角分别为5°, 10°和15°; 尾部也是抛物线旋转体, 长97 μm, 对应于中部不同半锥角, 曲率半径分别为1.3, 5.7和13.2 μm。底部圆柱体的直径为0.42 mm, 此外屏蔽筒内径0.62 mm, 针尖顶部伸出屏蔽筒50 μm。B型针尖根据半锥角的不同标记为B5, B10和B15。图1(b)为B10针尖的SIMION8.0模型和具体参数。

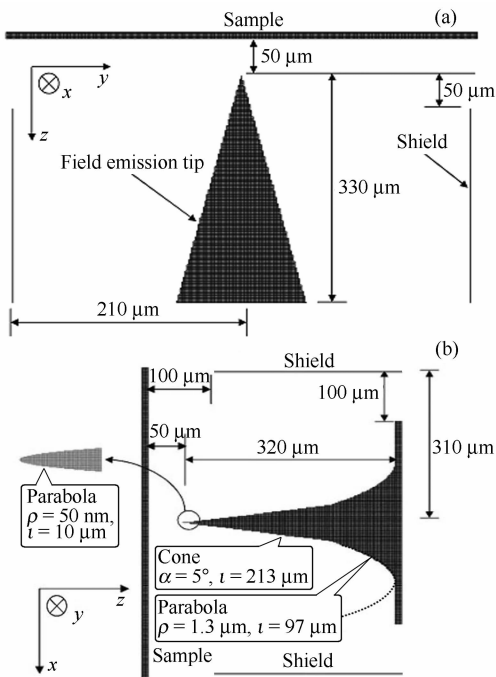


图1 A10型(a)与B10型(b)针尖的模型和具体参数

模型为轴对称, 由SIMION8.0软件创建, 图中显示的是过对称轴的剖面。

根据文献[23], 出射俄歇电子的相对束流强度 $J_A$ 可以表达为

$$J_A \propto J_S P_i P_A P_{el} P_S, \quad (1)$$

其中,  $J_S$ 为针尖场发射电流密度在样品表面的分布,  $P_i$ 为样品原子内壳层的电离概率,  $P_A$ 为样品原子内壳层电离后退激发时发射俄歇电子的概率,  $P_{el}$ 为俄歇电子从固体内部出射到样品表面的过程中不发生非弹性碰撞的概率,  $P_S$ 为俄歇电子从样品表面出射后逸出针尖电场区的概率。 $J_S$ 的计算通过结合Fowler-Nordheim方程<sup>[25]</sup>与模拟场发射电子从针

尖到样品的轨迹得到;  $P_S$ 的计算通过模拟电子从样品表面出射后在针尖电场区飞行轨迹得到; 而 $P_A$ 和 $P_{el}$ 近似为常数<sup>[23]</sup>。样品原子的电离概率正比于相应轨道的电离截面 $Q_w$ , 用经验公式计算<sup>[26]</sup>:

$$Q_w = \frac{6.51 \times 10^{-14} b_w}{E_w^2} \left( \frac{1}{U} \right) \left( \frac{U-1}{U+1} \right)^{3/2} \times \left[ 1 + \frac{2}{3} \left( 1 - \frac{1}{2U} \right) \ln(2.7 + \sqrt{U-1}) \right], \quad (2)$$

其中:  $U = E_p / E_w$ ,  $E_p$ 为入射电子能量,  $E_w$ 为相应轨道的电离能;  $b_w$ 是被电离轨道主壳层的满壳层电子数。因此最终的出射俄歇电子相对束流强度 $J_A$ 可表示为

$$J_A = J_S Q_w P_S. \quad (3)$$

### 3 结果及讨论

#### 3.1 针尖形状对出射俄歇电子相对束流强度 $J_A$ 的影响

为了研究针尖形状对出射俄歇电子束流强度的影响, 模拟时保持针尖电压(-132 V)和针尖-样品间距(50 μm)不变, 研究6种形状针尖的俄歇电子出射轨迹。在这种条件下, 电离截面 $Q_w$ 为常数, 因此 $J_A$ 只与 $J_S$ 和 $P_S$ 有关。6种针尖的场发射电流密度在样品表面的分布 $J_S$ 如图2所示, 其中横坐标 $r_0$

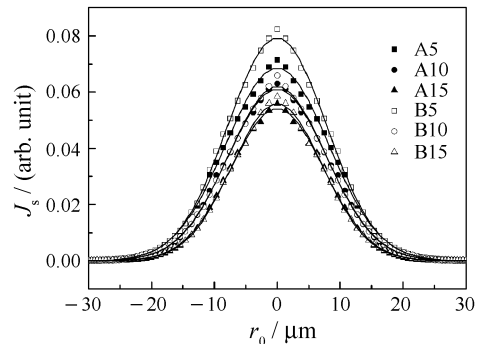


图2 6种针尖场发射电子在样品表面的电流密度分布 $J_s$

图中数据点为模拟数据, 实线为用Guass函数对数据进行的拟合。对应于A5, A10, A15, B5, B10和B15 6种针尖的 $J_s$ 分布半高宽分别为16.3, 15.7, 14.7, 15.7, 15.5和14.3 μm。

为样品上一点到中心的距离。从束流强度看, 半锥角越小, 束流强度越大, 同时B型针尖束流强度大于A型针尖。从束流分布看, 针尖形状对 $J_s$ 分布的影响不大。相对而言, 半锥角越大, 束流分布越集中; 此外B型针尖的 $J_s$ 分布宽度要小于A型针尖。

图3给出了 $J'_A$ 随 $r_0$ 的分布 $J'_A(r_0)$ 。由图可见,对于同类针尖,半锥角越小, $J'_A$ 越大;对于半锥角相同的针尖,A型针尖的出射俄歇电子束流强度大于B型针尖。另外,半锥角越小,电子出射的位置越靠内,对于大部分针尖,正下方( $r_0=0$ )的电子无法逸出,样品上能够逸出电子的区域是个圆环,只有A5型针尖的逸出区域是个圆。

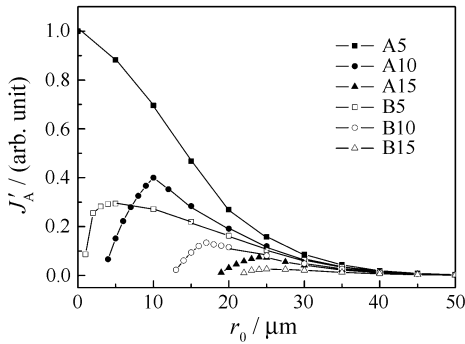


图3 6种针尖在偏压-132 V和针尖-样品间距50 μm的条件下, $J'_A$ 随出射位置 $r_0$ 的分布

表1列出了各种针尖下的电子相对出射概率和样品出射区域的参数,其中“ $r_{0peak}$ ”为峰值位置,代表圆环半径;“FWHM”为半高宽度,代表圆环宽度。这些结果说明:(1)针尖半锥角越大,对出射电子的抑制越大;(2)顶锥式针尖对出射电子的抑制作用大于圆珠笔式针尖;(3)针尖对出射电子的抑制越大,出射区圆环就越窄,这有可能提高空间分辨,因此需要在计数率和空间分辨之间作综合考虑;(4)从出射束流强度的分布上看,A10型针尖与B5型针尖对电子的抑制作用大致相当,但A10的出射区圆环较窄,半径大,而B5的出射区圆环较宽,半径小。

表1 6种针尖的电子相对出射概率和出射区域参数

针尖类型	相对出射概率(%)	$r_{0peak}/\mu\text{m}$	FWHM/ $\mu\text{m}$
A5	21.4	0	29.2
A10	5.7	11.2	13.1
A15	1.3	23.8	10.2
B5	5.2	6.0	20.8
B10	2.0	17.0	13.5
B15	0.6	25.5	12.7

### 3.2 针尖电压对出射俄歇电子相对束流强度 $J'_A$ 的影响

模拟时选用B5型针尖,针尖-样品间距为50 μm,在4个不同的针尖电压下(-110, -132, -154和-176 V)研究了出射俄歇电子的相对束流强度 $J'_A$ 。首先针尖偏压的变化会使针尖场发射电流强度变化,同时也会改变场发射电流在样品表面的分布。图4显示了不同针尖电压下样品表面的场发射

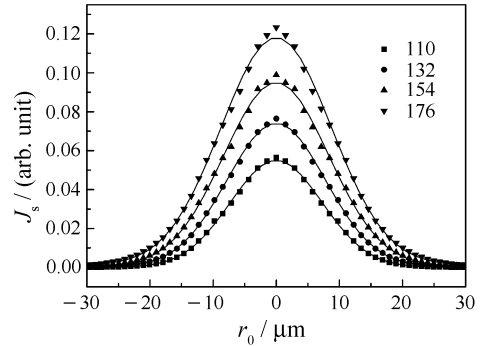


图4 不同偏压下B5型针尖在样品表面场发射电流分布

图中数据点为模拟数据,实线为用Guass函数对数据进行的拟合。针尖偏压为-110, -132, -154和-176 V时 $J_s$ 分布的半高宽分别为:14.5, 15.7, 16.6和17.4 μm。

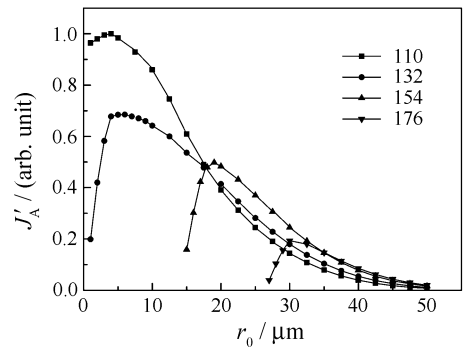


图5 B5型针尖在不同电压下 $J'_A$ 随出射位置 $r_0$ 的分布

电流密度 $J_s$ 分布。可以看出,偏压越高,束流强度越大,但 $J_s$ 分布越宽。其次,针尖电压的变化会导致入射电子能量改变,从而造成电离截面 $Q_w$ 的变化。由于我们研究的是出射俄歇电子的相对束流强度,因此为了方便比较,取-176 V时的 $Q_w$ 为1,则根据公式(2),-154, -132和-110 V偏压下的 $Q_w$ 分别为0.823, 0.583和0.279。考虑了 $J_s$ 与 $Q_w$ 的影响后, $J'_A$ 随出射位置 $r_0$ 的分布显示于图5。由图可见,针尖偏压越低, $J'_A$ 就越大,电子出射位置也越靠内。表2中列出了各偏压下的电子相对出射概率

及样品出射区域的参数。结果表明,随着针尖偏压的增大,针尖对出射电子的抑制作用越明显,同时出射区域的圆环半径增大,而宽度变窄。

表2 B5型针尖在不同偏压下的电子相对出射概率和出射区域的参数

针尖-样品 电压/V	相对出射 概率(%)	$r_{0peak}/\mu\text{m}$	$FWHM/\mu\text{m}$
-110	14.6	4.0	32.8
-132	5.2	5.9	20.8
-154	1.7	19.2	14.5
-176	0.5	30.4	12.1

### 3.3 针尖-样品距离对出射俄歇电子相对束流强度 $J'_A$ 的影响

模拟时选用B10型针尖,针尖样品电压为-132 V,分别在针尖样品距离为30, 40和50  $\mu\text{m}$ 时计算俄歇电子的出射概率。在这种条件下,  $Q_w$  仍然是常数,只需考虑  $J_s$  和  $P_s$  对出射束流强度  $J'_A$  的影响。图6显示了不同针尖样品距离时样品表面的  $J_s$  分布。

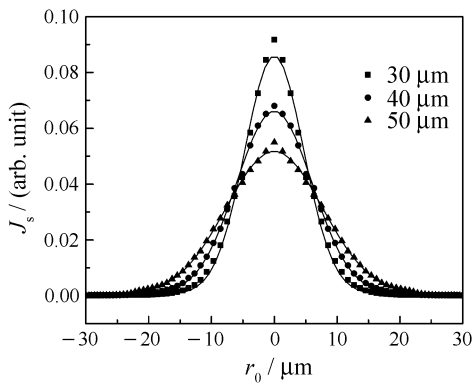


图6 不同针尖样品距离下B10型针尖在样品表面的  $J_s$  分布  
图中数据点为模拟数据,实线为用Guass函数对数据进行的拟合。针尖样品距离为30, 40和50  $\mu\text{m}$ 时  $J_s$  分布的半高宽分别为: 10.0, 12.6和15.5  $\mu\text{m}$ 。

表3 B10型针尖在不同针尖样品距离下的电子相对出射概率和出射区域的参数

针尖-样品 距离/ $\mu\text{m}$	相对出射 概率(%)	$r_{0peak}/\mu\text{m}$	$FWHM/\mu\text{m}$
30	0.06	27.8	6.7
40	0.3	22.5	9.2
50	2.0	17.0	13.5

可以看出,随着针尖-样品距离的增加,束流强度稍稍减弱,而束流分布变宽。图7显示了  $J'_A(r_0)$  的分布。由图可见,针尖样品距离越小,对电子的抑制

作用越大,电子出射的位置越靠外。出射概率和样品出射区域的参数列在表3中。结果表明,针尖样品距离对电子的出射影响非常大,针尖样品距离的减小会大大抑制次级电子的逸出,同时,出射圆环的半径增加,宽度变窄。

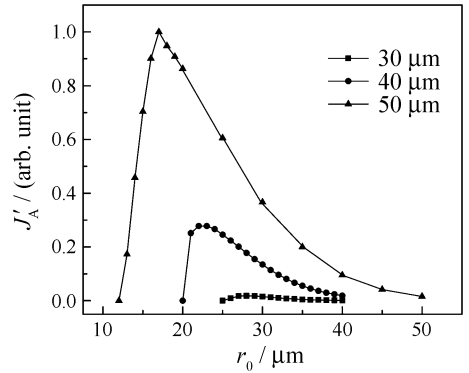


图7 B10针尖在不同针尖样品距离下  $J'_A$  随  $r_0$  的分布

### 3.4 俄歇电子在针尖电场区边缘处的分布

俄歇电子从针尖电场区逸出后,进入到无场区,它在无场区的飞行轨迹决定于它在针尖电场区

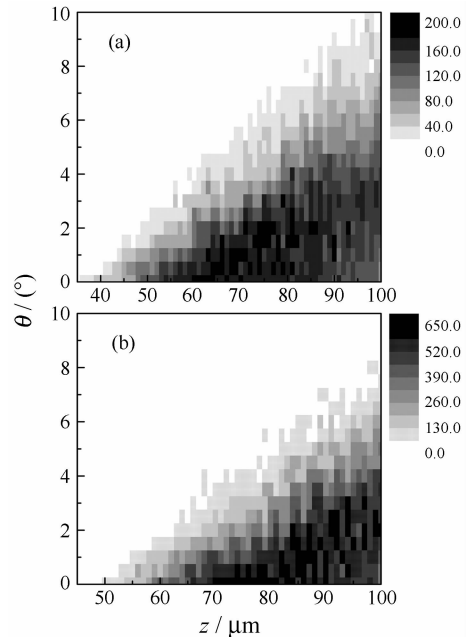


图8 出射俄歇电子束流强度在针尖电场边缘处随出射高度和出射极角的二维分布  $J'_A(z, \theta)$   
针尖偏压-132 V,针尖样品距离50  $\mu\text{m}$ 。其中,(a)A10针尖,(b)B5针尖。

边缘处的出射高度  $z$  和出射极角  $\theta$ 。为了下一步对谱仪收集效率和能量分辨的研究,我们计算了在6

种(A5, A10, A15, B5, B10和B15)针尖的情况下出射俄歇电子相对束流强度 $J'_A$ 在针尖电场区边缘处随出射高度和出射极角的分布 $J'_A(z, \theta)$ 。模拟时针尖样品间距 $50\ \mu\text{m}$ ，针尖偏压 $-132\ \text{V}$ 。图8给出了A10针尖(a)和B5针尖(b)的出射俄歇电子束流强度在针尖电场边缘处随出射高度和出射极角的二维分布 $J'_A(z, \theta)$ 。图中表明，俄歇电子出射的高度分布较大，而出射极角分布较窄，大部分都 $<10^\circ$ ，这说明俄歇电子基本上是平行于样品表面出射。相对而言，出射位置越高，出射极角的发散越大。

将 $J'_A(z, \theta)$ 分别对 $z$ 和 $\theta$ 积分，能够得到出射俄歇电子束流强度随出射极角的分布 $J'_A(\theta)$ 和随出射高度的分布 $J'_A(z)$ 。图9(a)是6种针尖下的 $J'_A(\theta)$ 分布。可看出，平行于样品出射( $\theta=0^\circ$ )的俄歇电子最多，而出射极角越大的出射俄歇电子数越少。

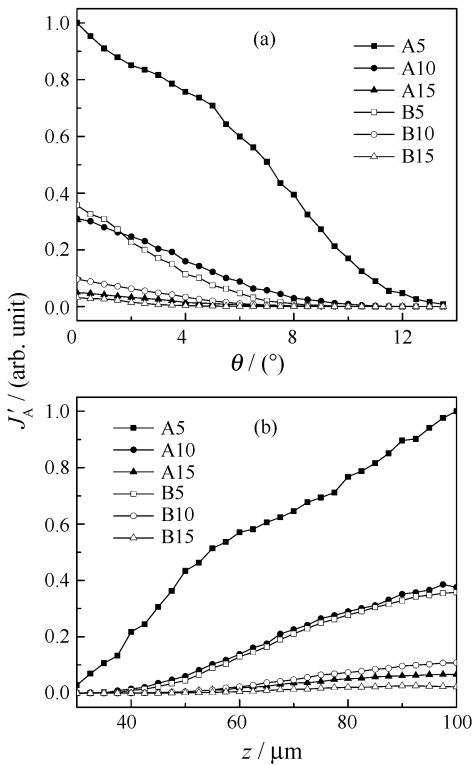


图9 (a) 6种针尖下俄歇电子束流密度在针尖电场边缘处随出射极角的 $J'_A(\theta)$ 分布和(b)俄歇电子束密度随出射高度的 $J'_A(z)$ 分布

对于不同针尖来说，对俄歇电子出射抑制越大，俄歇电子的出射极角分布就越小，即俄歇电子出射的平行性越好。图9(b)是种针尖的 $J'_A(z)$ 分布曲线。6条曲线都随着出射高度的增加而单调增大，说明俄歇电子大部分是从靠近屏蔽筒下缘的位置出射。

同时对不同针尖曲线的比较可以看出，针尖对俄歇电子的抑制越大，俄歇电子的出射位置就越高，分布也越集中。此外，由表1可以看出，A10型针尖和B5型针尖对俄歇电子的抑制作用大致相当，因此可以通过对比这两种针尖的 $J'_A(\theta)$ 和 $J'_A(z)$ 分布来比较它们对俄歇电子出射平行性及高度的影响。从 $J'_A(\theta)$ 分布上来看，B5型针尖的出射极角分布明显小于A10型的，说明对于俄歇电子出射的平行性，B型针尖要好于A型针尖；而对于 $J'_A(z)$ 分布，A10型针尖和B5型针尖的两条曲线基本重合，说明A和B型针尖对俄歇电子出射高度的影响不大。

通过对出射俄歇电子束流强度在针尖电场区边缘处分布的研究，得到以下结论：(1)受针尖电场的抑制作用，俄歇电子基本上是平行于样品表面出射，有利于提高俄歇电子收集效率；(2)电子能量分析器的放置应使探测方向与样品表面平行；(3)针尖对俄歇电子的抑制作用越明显，其出射的极角分布和高度分布就越集中；(4)俄歇电子出射的极角分布和高度分布会影响谱仪的能量分辨，但对固体样品来说，俄歇峰很宽，对谱仪能量分辨的要求不高，因此要在保证空间分辨和收集效率的前提下再考虑能量分辨。

## 4 总结

综上所述，通过对俄歇电子在针尖电场作用下运动轨迹的模拟以及综合考虑从针尖场发射电子到俄歇电子出射全过程中各种因素的影响，系统研究了针尖形状、针尖偏压和针尖样品距离对出射俄歇电子束流强度的影响，以及俄歇电子束流强度在针尖电场区边缘处的分布。研究表明，顶锥式针尖(B型)对俄歇电子的抑制作用大于圆珠笔式针尖(A型)，同时针尖半锥角越大、针尖偏压越高、针尖-样品距离越近，对俄歇电子抑制就越大。另外，针尖电场对俄歇电子的抑制使得样品表面能出射俄歇电子的区域为圆环(A5型除外)，抑制作用越大，圆环半径越大，但环宽度越窄，这为提高谱仪空间分辨提供了可能。对俄歇电子在针尖电场区边缘处分布的研究表明，俄歇电子大部分是平行于样品表面出射，针尖抑制作用越明显，出射的平行性越好，并且出射高度也越小，这有利于俄歇电子的收集。此外，俄歇电子在针尖电场区边缘处的分布数据为今后大范围模拟俄歇电子在无场区运动到被

探测器收集的全过程提供了初始数据。

## 参考文献 (References):

- [1] Binning G, Rohrer H, Gerber Ch, *et al.* Phys Rev Lett, 1982, 49: 57.
- [2] Eigler D M, Schweizer E K. Nature, 1990, 344: 524.
- [3] Zeppenfeld P, Lutz C P, Eigler D M. Ultramicroscopy, 1992, 42: 128.
- [4] Crommie M F, Lutz C P, Eigler D M. Science, 1993, 262: 218.
- [5] Barth J V, Costantini G, Kern K. Nature, 2005, 437: 671.
- [6] Lorente N, Rurai R, Tang H. Journal of Physics-Condensed Matter, 2005, 17: S1049.
- [7] Stroscio J A, Celotta R J. Science, 2004, 306: 242.
- [8] Eves B J, Festy F, Svensson K, *et al.* Appl Phys Lett, 2000, 77: 4223.
- [9] Festy F, Svensson K, Laitenberger P, *et al.* Journal of Physics D-Applied Physics, 2001, 34: 1849.
- [10] Palmer R E, Eves B J, Festy F, *et al.* Surface Science, 2002, 502: 224.
- [11] Eves B J. Scanning Probe Energy Loss Spectroscopy, Ph. D. thesis, Birmingham, UK, University of Birmingham, 2002.
- [12] Festy F, Palmer R E. Appl Phys Lett, 2004, 85: 5034.
- [13] Yin J L, Pulisciano A, Palmer R E. Small, 2006, 2: 744.
- [14] Tomitori M, Terai H, Arai T. Appl Surf Sci, 1999, 145: 123.
- [15] Tomitori M, Hirade M, Sukanuma Y, *et al.* Surface Science, 2001, 493: 49.
- [16] Miyatake Y, Nagamura T, Hattori K, *et al.* Jpn J Appl Phys-Part I, 2002, 41: 4943.
- [17] Miyatake Y, Nagamura T, Hattori K, *et al.* Jpn J Appl Phys-Part I, 2003, 42: 4848.
- [18] Hirade M, Arai T, Tomitori M. Jpn J Appl Phys-Part I, 2003, 42: 4837.
- [19] Hirade M, Arai T, Tomitori M. Jpn J Appl Phys-Part I, 2006, 45: 2278.
- [20] Reihl B, Gimzewski J. Surface Science, 1987, 189: 36.
- [21] Wei Z, Xu C K, Chen X J, *et al.* Appl Surf Sci, 2004, 228: 158.
- [22] Xu C K, Wei Z, Chen X J, *et al.* Chin Phys Lett, 2004, 21: 524.
- [23] Liu Wenjie, Xu Chunkai, Li Jiwei, *et al.* The Simulation Study of the Emission Features of the Auger Electrons in the Tip-sample Region of the Scanning Probe Electron Energy Spectrometer Nucl Instr and Meth, A (submitted).
- [24] Mizuno S, Fukuda J, Tochihara H. Surface Science, 2002, 514: 291.
- [25] Fowle R H, Nordheim L W. Electron Emission in Intense Field. Pro, R. Soc. London A, 1928, 119. 173.
- [26] Gryzinski M, Phys Rev, 1965, A138: A336.

# Simulation of Tip Parameters Influence on Electron Emission in SPEES\*

LI Ji-wei, XU Chun-kai<sup>#</sup>, LIU Wen-jie, FANG Ke, CHEN Xiang-jun, XU Ke-zun

(Hefei National Laboratory for Physical Science at Microscale, Department of Modern Physics, University of Science and Technology of China, Hefei 230026, China)

**Abstract:** The simulation of the Auger electron emissions in scanning probe electron energy spectrometer (SPEES) is reported. By simulating the trajectory of Auger electrons, we systematically investigate the dependence of the emission efficiency of Auger electrons on the shape of tip, the biasing voltage, and the distance between the tip and sample surface, as well as the intensity distributions of Auger electrons at the edge of tip-sample region. The results will be the significant reference for improving the sensitivity, spatial and energy resolutions of SPEES.

**Key words:** scanning probe electron energy spectrometer; electro-optical simulation; field emission; Auger electron

\* Received date: 31 Oct. 2008; Revised date: 30 Dec. 2008

\* Foundation item: National Natural Science Foundation of China (10404026); National Science Fund for Fostering Talents in Basic Science (J0630319)

# Corresponding author: Xu Chun-kai, E-mail: xuck@ustc.edu.cn