

液相透射电子显微镜液体厚度调节中的 真空度精密控制解决方案

Solution of Precise Control of Vacuum in Liquid Thickness Adjustment of Liquid Phase Transmission Electron Microscope

摘要：为了实现液相电子显微镜的更广泛和更便捷应用，需要对微芯片中的液体样本厚度进行精密调控。本文基于透射显微镜中被检液体样本内外压差对应于液体厚度这一凸起变形膨胀的基本现象，提出了通过精确控制液体池内部真空度来实现液体厚度精密调控的解决方案。真空度的高精度控制将采用动态平衡法，可在宽区间0.1~100kPa范围内的任意真空度下实现 $\pm 1\%$ 的控制精度，最终实现液体样本厚度的高精度自动调节和控制。

1. 问题的提出

近年来，基于透射电子显微、微纳加工和薄膜制造技术的液相透射电子显微技术，为构建多种纳米级分辨率尺度下的微实验平台，发展新型纳米表征技术和众多领域的相关研究提供了有效途径。如图1所示，一个标准的液体池是由隔离材料支撑起两片电子透明氮化硅（SiN）薄膜窗口的硅微芯片，液体样品被填充在这两个窗口之间。

理论上，液体厚度可以通过微芯片之间的间隔垫片来设定，但在实际观察中需要将微芯片放置在透射电子显微镜的超高真空环境中，使得膜窗口内外的压力不同，此压差会造成膜窗口凸起变形膨胀而造成液体厚度发生改变，而这种改变往往超过了好几倍。因此，除非产生气泡，这种厚度变化将严重影响观测的分辨率。另外，可以用柱子连接顶部和底部膜窗口以最小化膨胀，但这种固定厚度的液体池无法加载不同的样本进行观测，并不具有通用性和适用性。

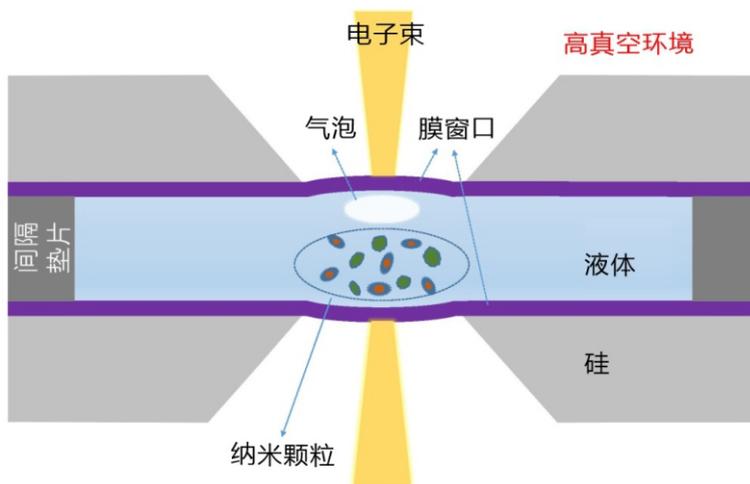


图1 液相透射电子显微镜液体腔基本结构示意图

由此可见，液体池在透射电子显微镜超高真空环境下的凸起变形膨胀，反而是一种可利用的特性，通过这种膨胀可实现不同厚度的液体样品以使得在保证高分辨率的条件下对多种液体样本进行观测，更具有通用性和适用性，但这种液体厚度可调的前提是液体厚度可精确控制。

因此，为了实现液相电子显微镜中液体样本厚度可调，就必须设法对液体池膜窗口内外的压差进行精密控制。本文将针对液体池内部的真空度控制提出相应的解决方案，真空度的高精度控制将采用动态平衡法，可在0.1~100kPa范围内的任意真空度下实现 $\pm 1\%$ 的控制精度，由此实现液体样本厚度的精密可调和恒定控制。

2. 解决方案

采用控制液体样本的真空度来调节微芯片内外压差实现液体样本厚度变化控制的方法，实际上早在文献[1,2]中进行过简单描述，如图2和图3所示。

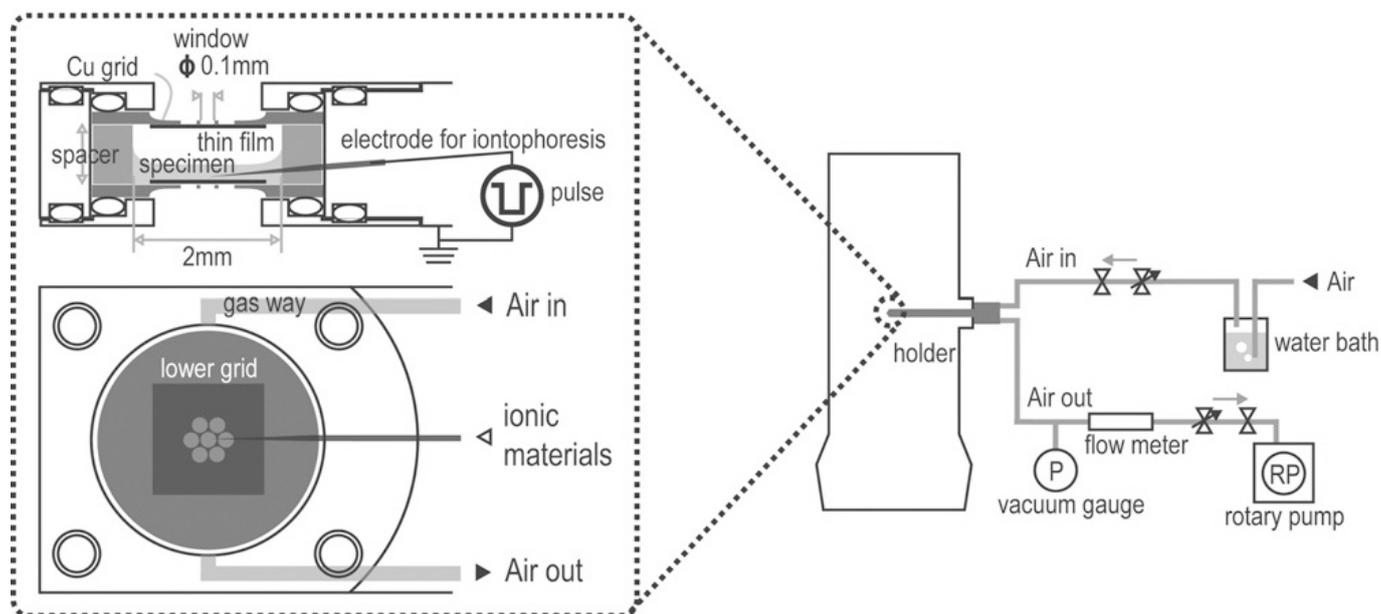


图2 文献1所述的真空压力控制系统结构示意图

文献[1]中基本给出了采用真空度控制来实现液体厚度调节的整个装置结构示意图，但并没有给出调节厚度用的真空度控制范围。文献[2]虽然仅给出了示意草图和控制值装置的照片，但对不同液体厚度的调节给出了相应的真空度范围为5~100kPa。

我们从真空度控制的基本原理分析，文献[1,2]采用的是相同的控制方法，即动态平衡法，也就是通过分别调节图2所示的进气和出气流量来实现不同设定真空度的动态平衡控制。

另外，之所以采用动态平衡法控制真空度，这主要是因为一是可以实现很高的控制精度，控制精度可以轻松达到±1%以内；二是因为这种方法非常适用于小尺寸空间内的真空度控制。

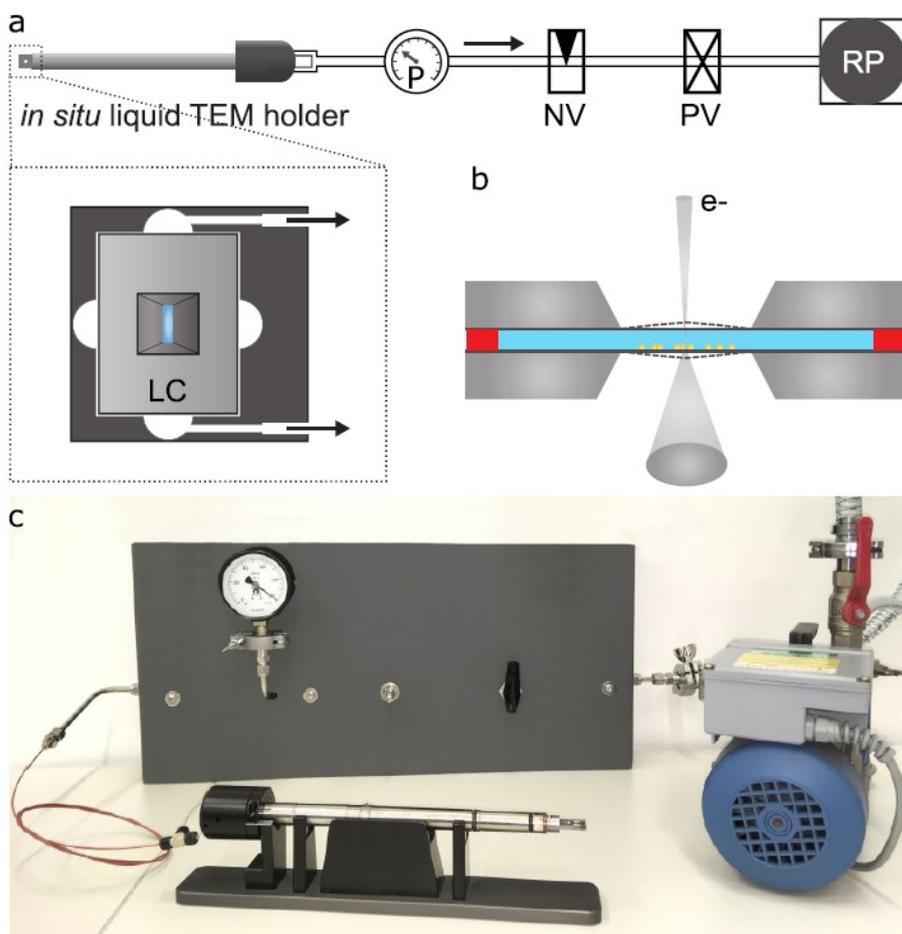


图3 文献2所述的真空压力控制系统

本文所述的解决方案也是采用上述动态平衡法进行液体样本的真空度控制，不同之处在于进行了进一步的细化，给出了工程化的具体实施方案和详细描述。

根据上述文献中所述的调节液体厚度所对应的真空度控制范围，我们首先确定出解决方案所需覆盖的真空度控制范围为0.1~100kPa，这样基本可以满足液相透射电子显微镜下液体样本所有厚度调节的需要，同时真空度控制精度要求优于 $\pm 1\%$ 。具体实施方案所述装置如图4所示。

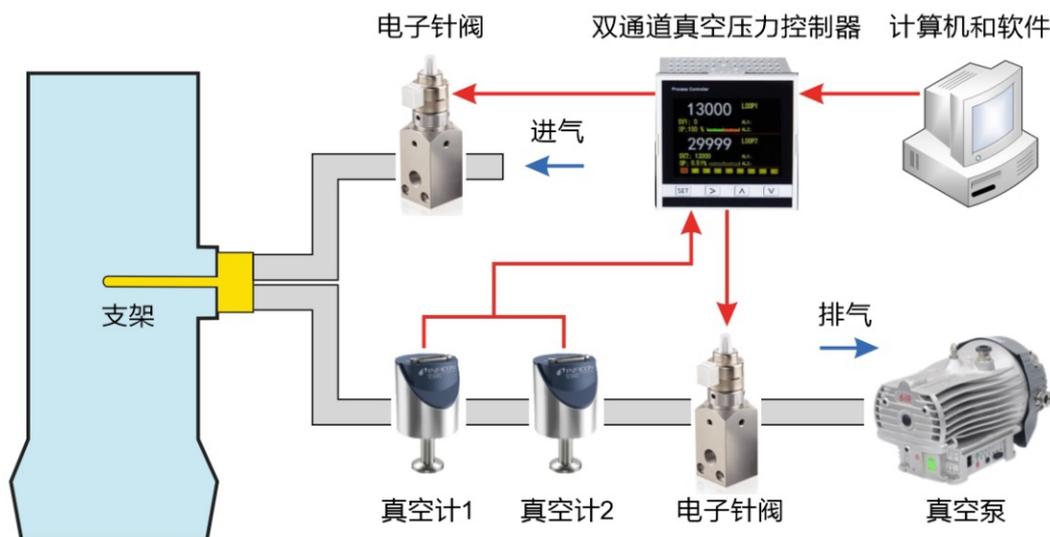


图4 用于液体样本厚度调节的真空度控制系统结构示意图

图4所示的液相电子显微镜中用于液体样本厚度调节的真空度控制系统主要包括真空计、电子针阀、真空泵、真空压力控制器和计算机及其软件，他们各自的功能和及其详细说明如下：

(1) 真空计：用于精密测量液体样本的真空度。真空计采用测量精度较高的薄膜电容真空计，为满足全量程真空度测量需要，配备了两只不同量程的真空计。

(2) 电子针阀：用于精密调节进气和排气流量。电子针阀是一种步进电机驱动的高速针型阀，通过0~10V的模拟电压信号可在小于1s的时间内精密快速的调节针型阀开度以实现高精度流量调节，非常适合小尺寸空间内的真空度控制。配备了两只NENV系列的电子针阀分别用来进行进气和排气流量的调节以最终达到真空度的高精度控制。

(3) 真空泵：用作真空源。作为真空源的真空泵，一般采用低污染的干式真空泵，并降低震动和噪音对整个透射电子显微镜的影响。

(4) 真空压力控制器：用来接收真空计测量信号，根据真空度设定值对电子针阀进行PID自动控制，使液体样品的真空度快速达到设定值并可长时间保持恒定。对于0.1~1kPa范围内的高真空度控制，控制器需采集10Torr量程的真空计1信号，同时将排气用电子针阀固定为全开状态，控制器对进气用电子针阀的开度进行自动调节。对于1~100kPa范围内的低真空度控制，控制器需采集1000Torr量程的真空计2信号，同时将进气用电子针阀固定为某个开度状态，控制器对排气用电子针阀的开度进行自动调节。为了实现这种宽量程范围内的真空度控制，配备了独立双通道的VPC2021系列高精度真空压力PID控制器，其中的两个通道分别对应两只真空计的信号采集，并组成两路独立的闭环控制回路对不同范围内的真空度进行自动控制。

(5) 计算机和软件：计算机用来与真空压力控制器进行通讯，计算机软件则可通过界面形式对真空压力控制器进行各种参数设定、运行控制以及过程参数的数字显示、图形显示、存储和调用。尽管单独使用真空压力控制器也可以进行真空度控制，但需要通过控制器上的按钮进行手动操作，操作比较繁复，而通过计算机软件进行控制器操作，则更直观和简便。

为了满足液体厚度调节控制的高精度要求，上述关键部件的主要技术指标如下：

(1) 真空计：薄膜电容真空计，量程分别为10Torr 和1000Torr，任意真空度测量值的精度为0.25%。

(2) 电动针阀：步进电机驱动，控制信号为模拟电压或电流信号，从全闭到全开的全程响应时间小于1s，重复精度优于 $\pm 0.1\%$ ，阀芯具有耐腐蚀作用。

(3) 真空压力控制器：24位AD，16位DA，0.01%最小输出百分比，PID参数具有自整定功能，RS 485通讯和标准MODBUS通讯协议，随机配备计算机操控软件。

4. 总结

液相透射电子显微镜已经成为实时监测液体中纳米材料过程的基本技术，由于液体和透射电子显微镜高真空之间存在的压力差，氮化硅膜窗口通常会发生弯曲，可通过调节液体池的内部真空压力来动态调节液体厚度，从而在用于高分辨率成像的中心窗区域中产生超薄液体层。

通过本文提出的解决方案，可搭建起独立的真空度控制装置，用于对液相透射电子显微镜的微芯片液体样本进行各种厚度的自动调节和恒定控制，而且可以达到很高的控制精度。

此外，液体池内部的高精度真空度自动控制，也为液体厚度按程序方式的动态改变提供了可能，这非常有利于克服扩散限制，达到本体溶解条件。

总之，解决方案提供了在液相透射电子显微镜实验中测量和动态调整液体厚度的基本方法，使得新的实验设计和溶液化学的更好控制成为可能。

5. 参考文献

- [1] Inayoshi Y, Minoda H, Arai Y, et al. Direct observation of biological molecules in liquid by environmental phase-plate transmission electron microscopy[J]. Micron, 2012, 43(11): 1091-1098.
- [2] Keskin S, Kunnas P, De Jonge N. Liquid-phase electron microscopy with controllable liquid thickness[J]. Nano Letters, 2019, 19(7): 4608-4613.