

基于飞行时间角分辨光电子能谱的电子结构研究

殷超辉^{1,2}, 赵林^{1,2,4}, 周兴江^{1,2,3,4}

(1.中国科学院物理研究所, 北京 100190; 2.中国科学院大学物理科学学院, 北京 100049;

3. 北京量子信息科学研究院, 北京 100193; 4. 松山湖材料实验室, 东莞 523808)

摘要: 飞行时间角分辨光电子能谱是探测材料中电子结构的最新型的角分辨光电子能谱仪设备。本文首先介绍该仪器的基本原理, 之后对比传统设备体现出其探测优势和技术指标, 最后通过两个样品展示其在材料的电子结构研究上的应用。

关键词: 角分辨光电子能谱仪; 电子结构

Study of Electronic Structure by Angle-Resolved Time-of Flight Photoemission Spectroscopy

Yin Chaohui^{1,2}, Zhao Lin^{1,2,4}, Zhou Xingjiang^{1,2,3,4}

(1. Beijing National Laboratory for Condensed Matter Physics, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China; 2. School of Physical Sciences, University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China; 3. Beijing Academy of Quantum Information Sciences, Beijing 100193, China; 4. Songshan Lake Materials Laboratory, Dongguan 523808, China)

Abstract: Angle-Resolved Time-of-Flight Photoemission Spectroscopy is the latest type of angle-resolved photoemission spectroscopy for detecting electronic structure in materials. We first introduce the basic principle of the instrument, and then show its detection advantages and technical indicator by comparing the traditional equipment, and finally present two examples of its application in the study of electronic structure of materials.

Keywords: angle-resolved photoemission spectroscopy; electronic structure

1 研究背景

凝聚态材料的微观电子结构决定了其诸多物理性质, 比如超导、比热、拓扑物理等。角分辨光电子能谱技术(ARPES)是一种直接观测到材料电子结构的有效手段, 在凝聚态物理领域中具有广泛的应用。角分辨光电子能谱仪原理是使用光电效应, 利用高能光子将材料中的电子轰击出来, 再由光电子探测器对光电子进行能量和动量的探测和统计从而还原出电子在材料中实际的运动状态^[1]。

近几十年来, 角分辨光电子能谱技术经历了几个方面的升级: 在探测器方面, 早期的半球型 ARPES 系

统的探测器一次探测只能探测晶体布里渊区的一个动量点范围(如图 1(a)所示)内的单粒子谱函数,改进后的半球型探测器工作范围扩大成了一条动量线(如图 1(b)所示);在激发电子的光源方面,早期的角分辨光电子能谱仪使用同步辐射和稀有气体灯提供高能光子,随后发展的激光光源大大提高了能量分辨率和光通量,将能量分辨率为 30meV 降到了 1meV 以下;除此之外,样品台的测试环境也经过不断发展,例如样品测试温度最低到 0.8K,大大扩展了角分辨光电子谱仪的研究范围^[2]。

本文介绍的飞行时间角分辨光电子能谱系统(ARToF),使用的飞行时间探测器可以同时材料动量空间中二维范围的电子结构进行探测(如图 1(c)所示),避免了旧式的半球型分析器在变化探测位置需要转动样品从而因为样品的不均匀引起的实验误差;另一方面,由于飞行时间探测器的工作方式是直接针对光电子直接探测(如图 2(a)所示),从而避免了半球型分析器通过 CCD 相机拍摄光电子触发荧光屏的光强度来探测其分布强度的工作方式引起的非线性效应。

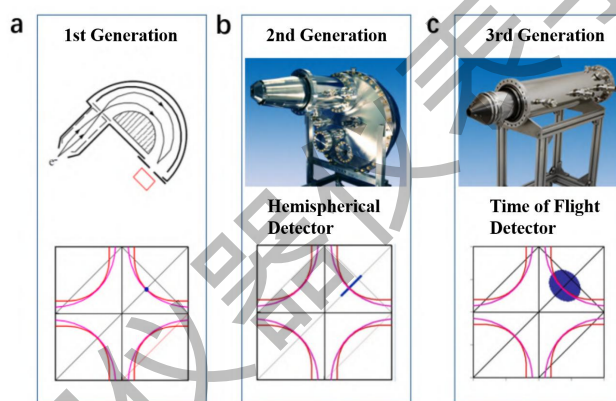


图 1 ARPES 分析器发展历程和探测器的探测区域。

Fig. 1 The development of ARPES Detectors and their detection regions.

2 研究内容

飞行时间角分辨光电子能谱系统由探测器,激光光源和样品实验台三个部分组成(如图 2(b)所示)。在探测器方面,飞行时间探测器采取的是与之前半球型探测器截然不同的圆柱形结构设计,其工作原理如图 2(a)所示,光电子被一个脉冲激光从样品中激发出来之后,该光电子从探测器前部进入电子透镜最后飞到探测器尾部触发出电信号,再通过探测触发的电信号经过网格接收器的时间信息就能得到光电子到达探测器尾部的位置和时间信息从而就能反推出光电子初始的动量和能量信息。由于在该过程中,探测器对光电子分布强度的探测方式是通过对每个激光脉冲期间的单个光电子进行直接计数来实现的,从而避免了类似第二代半球型分析器因光电转换引发的非线性效应,因而数据质量有了质的提升。

光源方面,该系统集成了 6.994eV 和 10.894eV 两种脉冲激光光源,这两种光源都具有改变激光强度和变换激光偏振方向的能力。其中 6.994eV 激光的能量分辨率更高,整体最佳能量分辨率达到了 0.8meV,达

到世界一流水平；而 10.894eV 激光的探测空间比 6.994eV 更大，在对 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 等材料进行实验可以一次性覆盖其能带的最小重复单元的全部动量空间区域(如图 2(d)所示)。

样品实验台方面，该系统设计了两种样品实验台：六轴实验台有六个样品自由度，包含三个空间自由度和三个角度自由度，可以对样品的探测角度进行全角度空间调节，但相对样品降温效果不佳，使用液氮冷却实现的最低实验温度为 9.5K；与六轴实验台对应的四轴实验台，包含三个空间自由度和一个角度自由度，通过牺牲两个角度调节的自由度，使得其最低实验温度能够达到 1.6K。由于四轴样品台卓越的低温实验优势，为此四轴样品台也被称为极低温样品台。

综上所述，飞行时间角分辨光电子能谱系统在电子结构研究方面具有巨大优势，在研究一些关键科研难题上发挥重要作用。凝聚态物理领域内，高温超导物理机制历经几十年的发展至今没有定论。其中的一个困难点在于高温超导体中的超导电性往往是各向异性的，因此在研究该问题上，具有动量分辨的角分辨光电子能谱是必不可少的；同时超导信号相对整个材料的能带来说通常是一个微小的信号，对于实验探测设备的分辨率要求极高。

以铁基和铜氧化物高温超导体两种经典的高温超导体研究为例，对于铁基高温超导体中一个代表性材料 FeSe，尽管其具有复杂的能带结构和较低的超导转变温度，通过极低温样品台将材料在实验温度降到了 1.6K，成功探测出该材料中 3meV 量级的各向异性的超导能隙信号^[3]；另外在进一步的研究中利用飞行时间探测器可以直接二维空间探测的特点首次系统性探测到了 FeSe 能带的精细结构(如图 2(c)所示在 Γ 点附近的费米面存在两个空穴型“口袋”)，这样的实验结果否定了之前实验研究中普遍认为只存在一个费米面的结果，更进一步研究得到了其中存在时间/空间反演对称性破缺，为理论模型重建提供了更精细的数据^[4]。

在铜氧化物高温超导体研究中，利用 10.894eV 激光系统的探测空间大的优势，使用飞行时间角分辨光电子能谱系统一次性覆盖 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 材料双层铜氧面劈裂形成的两个能带(成键和反成键能带)所在的最小重复动量区间，清晰的展示了这两个能带在动量空间中的分布，并在超导转变温度以下研究其超导能隙从节点到反节点随角度的演化(如图 2(d)所示)，揭示了该材料中劈裂形成的成键和反成键能带对超导的响应^[5]，为研究铜氧化物高温超导体中的超导电性提供了数据支持。

除了铁基和铜氧化物高温超导体之外，飞行时间角分辨光电子能谱系统也在拓扑物理研究中具有极大的应用前景。拓扑材料的电子能带结构具有拓扑性，通过角分辨光电子能谱探测其电子结构及在外加电场、温度变化等因素影响下的拓扑结构的演化对于理解拓扑材料的特性和未来的器件开发至关重要。由于飞行时间探测器直接探测材料二维空间动量，因此可以更直观地探测拓扑材料能带结构的演化，例如载流子浓度变化引起的电子结构的改变^[6]。

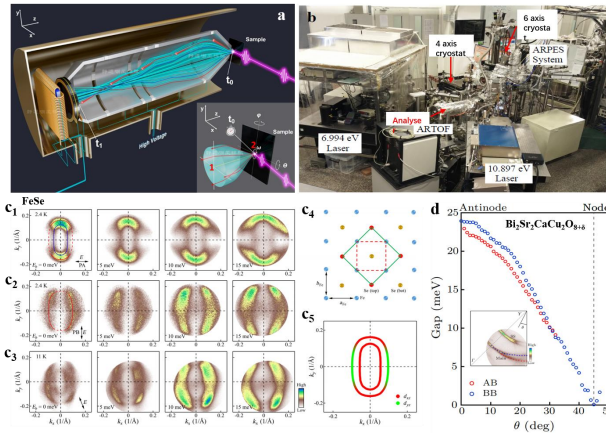


图2 ARToF 探测器的工作原理图和实地照片，以及在样品 FeSe 和 $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ 研究中的应用。

Fig. 2 The schematic diagram and photograph of ARToF system, and the application in the study of sample FeSe and $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$.

3 结论

本文所介绍的飞行时间角分辨光电子能谱系统，是一种高效且功能强大的探测材料中电子结构的实验设备。其采取的新型圆柱型探测器的二维探测效率超过采用传统的半球型设计的设备，同时避免了光电信号转换引起的非线性效应，提高了数据可信度；激光光源和样品实验台都采用了两套设计以针对不同实验要求。在针对具有各向异性超导性质的高温超导物理研究，以及拓扑材料的特殊电子拓扑结构表征等科学领域扮演着不可或缺的角色。

飞行时间角分辨光电子能谱系统在研究中取得重大成功，其性能还可以通过改进不断提升，具体发展方向有：

(1)探测器方面：发展实空间探测样品的技术，使得设备不光可以对样品的电子结构进行动量空间分布探测，还可以原位对材料的表面形貌进行表征。

(2)光源方面：a. 进一步提高光子能量提高探测空间；b. 提高光通量，提高统计效率；c. 降低激光脉冲激发时间，提高探测分辨率；d. 降低光源线宽，提高探测能量分辨率；e. 发展可调谐激光器，拓展设备动量三维空间的探测能力，同时可以一定程度上解决实验矩阵元效应的问题；f. 缩小光斑大小，发展微区乃至纳区光斑光源，避免材料空间不均匀性造成的实验误差，提高数据可信度。

(3)样品实验环境方面：a. 提高测试系统的真空度，得到更加精确的数据；b. 减小样品和光源之间的相对振动，提高实验精度；c. 降低样品测试的极限温度，提高仪器应用范围。

(4)与其它技术结合：将分子束外延生长(MBE)和扫描隧道显微镜(STM)等技术合并进系统，实现 MBE 原位生长，STM 的实空间探测和 ARToF 的动量空间探测相结合。此外发展原位样品蒸镀、退火处理等直接调控样品载流子浓度的技术，原位应力，电磁场调控等技术可以大大拓展飞行时间角分辨光电子能谱系统

的研究领域。数据处理方面，可以和近年来发展的机器学习方法结合起来，对数据进行去噪声处理，提高数据质量，以分析电子结构的细节信息。

凝聚态物理研究中积累了许多“老、大、难”的科学问题，高温超导物理只是其中之一。研究这些问题具有极其重大的科研和现实意义，需要科研工作者去挑战甚至突破现有的科研条件。飞行时间角分辨光电子能谱系统虽然是目前最先进的科研设备之一，但仍有许多研究和应用上的局限性，需要结合全体科研工作者的共同智慧进行不断改进，只有这样它才有能力去挑战那些科学难题，揭露其背后真相。

参考文献

- [1] Sobota J A, He Y, Shen Z-X. Angle-resolved photoemission studies of quantum materials [J]. *Rev. Mod. Phys.*, 2021, 93(2) : 025006.
- [2] Zhou X J, Shaolong H, Guodong L, et al. New developments in laser-based photoemission spectroscopy and its scientific applications: a key issues review [J]. *Rep. Prog. Phys.*, 2018, 81(6) : 062101.
- [3] Liu D, Li C, Huang J, et al. Orbital Origin of Extremely Anisotropic Superconducting Gap in Nematic Phase of FeSe Superconductor [J]. *Phys. Rev. X*, 2018, 8(3) : 031033.
- [4] Li C, Wu X, Wang L, et al. Spectroscopic evidence for an additional symmetry breaking in the nematic state of FeSe superconductor [J]. *Phys. Rev. X*, 2020, 10(3) : 031033.
- [5] Ai P, Gao Q, Liu J, et al. Distinct superconducting gap on two bilayer-split Fermi surface sheets in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ superconductor [J]. *Chin. Phys. Lett.*, 2019, 36(6) : 067402.
- [6] Wang Y, Li C, Miao T, et al. Giant and reversible electronic structure evolution in a magnetic topological material EuCd_2As_2 [J]. *Phys. Rev. B*, 2022, 106(8) : 085134.