

# 角分辨光电子能谱仪在f电子特性研究中的应用

张云 谭世勇 陈秋云<sup>†</sup>

(表面物理与化学重点实验室 绵阳 621907)

2020-07-04收到

<sup>†</sup> email: sheqiyun@126.com

DOI: 10.7693/wl20200906

## Application of angle-resolved photoemission spectroscopy in the study of f-electron characteristics

ZHANG Yun TAN Shi-Yong CHEN Qiu-Yun<sup>†</sup>

(Science and Technology on Surface Physics and Chemistry Laboratory, Mianyang 621907, China)

**摘要** 重费米子体系是凝聚态物理研究中的热点和难点,其低的能量尺度和奇异物理特性吸引着研究者的注意力。文章首先简要介绍了重费米子体系的基本概念,随后着重介绍了角分辨光电子能谱技术(ARPES)在重费米子体系中的应用。主要包括以下几个方面内容: f电子与传导电子的杂化特征、f电子的杂化与磁性、f电子杂化与量子临界、超导的关系以及掺杂对杂化的影响等。最后介绍了目前ARPES技术在重费米子体系应用中存在的几个问题,并提出相应解决办法。

**关键词** 重费米子, f电子, 角分辨光电子能谱, 杂化

**Abstract** Heavy fermion systems are a new but difficult research field in condensed matter physics, their low energy scale and novel physical properties being of particular interest. This paper first briefly introduces some of their basic concepts, then describes the application of angle-resolved photoemission spectroscopy (ARPES) to heavy fermion systems, which includes the characterization of the hybridization between f-electrons and conduction electrons, the hybridization and magnetism of f-electrons, the relationships between f-electron hybridization and quantum critical transitions and superconductivity, and the effect of doping on hybridization. Finally, some unsolved problems in the use of ARPES in heavy fermion systems are addressed, and some solutions suggested.

**Keywords** heavy fermion, f electrons, ARPES, hybridization

## 1 什么是重费米子体系?

自由电子的质量是 $9.10953 \times 10^{-28}$  g,但是在固体材料中,电子往往会受到来自于其他电子、晶格、磁性等的影响,从而变得“不自由”,其有效质量也可能随之改变。重费米子(heavy fermion)体系就是这样一类电子有效质量被改变了的体系,

其电子有效质量可能成百甚至上千倍的高于自由电子<sup>[1]</sup>。除了重费米子体系中电子质量高于自由电子外,其他体系比如存在电子—声子耦合、电子—磁子耦合的体系也可能存在电子有效质量增加的情况<sup>[2-4]</sup>。当体系中电子有效质量增加时,能否判断该体系是重费米子体系,则取决于引起体系中电子有效质量增大的物理本质。原子核外存

在外层电子，比如s、p、d、f电子等，最外层的s和p电子较为“自由”，d电子受到原子核的束缚逐渐增强，开始变得“不自由”，而f电子则变得相当“不自由”，难以在晶格中运动，只能够被束缚在具有特定能量的特殊位置附近。在重费米子体系中，“不自由”的f电子与其他较为“自由”的电子(s, p, d)能够通过近藤效应(Kondo effect)产生杂化，f电子能够变得部分“自由”，开始在晶格中自由移动，同时也使得电子的有效质量大幅度增加，这就是重费米子体系的特征，而其中f电子与其他电子杂化后形成的“准粒子”也被称为重费米子<sup>[1, 5-9]</sup>。

## 2 角分辨光电子能谱技术在重费米子体系中的应用

### 2.1 角分辨光电子能谱仪的基本原理

角分辨光电子能谱仪(angle resolved photoemission spectroscopy, ARPES)是研究固体内部电子结构非常有效的实验技术，其原理基于光电效应。当光子照射到某些物质表面时，固体内部电子受到激发跃迁到真空中形成光电子，光电子在通过超高真空环境之后，顺利到达光电子探测器而被探测。固体内部的电子吸收光子能量 $h\nu$ ，被激发到真空环境中形成光电子；被激发出的光电子的能量 $E$ 和角度 $\theta$ 能够通过角分辨光电子能谱仪进行测量。根据光电子出射过程中的能量守恒和平行于样品表面的动量守恒关系，可以获得固体内部电子的能量和动量信息。光电子平行于样品表面的动量可以表示为

$$k_{\parallel} = k \sin \theta = \sqrt{2mE} \sin \theta / \hbar \quad (1)$$

其中 $E = h\nu - E_{\text{B}} - \Phi$ ， $E_{\text{B}}$ 为电子在固体内部的结合能， $\Phi$ 为固体的功函数。在垂直于样品表面方向，由于动量不守恒，无法简单地判断垂直方向的动量，需要通过不同能量光子的角分辨光电子能谱实验来确定具体的 $k_{\perp}$ ：

$$k_{\perp} = \sqrt{2m(E_{\text{kin}} \cos^2 \theta + V_0)} / \hbar \quad (2)$$

其中 $V_0$ 为内势能，可以通过标定三维费米面沿着

$k_z$ 方向的周期性而获得<sup>[10]</sup>。

### 2.2 ARPES在重费米子体系中的研究现状

根据周期安德森模型<sup>[11]</sup>，当f电子与传导电子之间没有相互耦合时，二者的能带不会出现杂化现象。而当f电子开始与传导电子耦合时，二者的能带会出现明显重整化，当耦合强度达到一定程度时，体系还会在费米面附近打开杂化能隙。重整化之后的f电子与传导电子的能带信息如(3)式所示：

$$\varepsilon^{\pm} = \frac{\varepsilon_f + \varepsilon_k \pm \sqrt{(\varepsilon_f - \varepsilon_k)^2 + 4|V_k|^2}}{2} \quad (3)$$

其中 $\varepsilon_f$ 和 $\varepsilon_k$ 分别代表未重整化的f电子能带和传导电子能带。 $\varepsilon^{\pm}$ 代表了重整化之后的能带， $V_k$ 代表了局域的f电子与巡游的传导电子之间的杂化强度。

ARPES技术的优势在于能够直观获得材料的费米面拓扑结构以及能带结构，其与第一性原理计算相互印证能够阐明材料的本征属性，在重费米子的研究中有着不可取代的作用，特别是对于f电子的局域/巡游特性的研究。早先，研究者们通常先利用ARPES获得材料的能带结构特征；随后利用第一性原理方法分别计算f电子是完全局域以及f电子是完全巡游状态的能带结构，再将实验数据与理论计算结果进行对比，观察实验结果与哪一种计算结果对应的更好，以此来判断其中f电子的局域或者巡游的特性<sup>[12-16]</sup>。然而重费米子体系中f电子通常既具有巡游特性也同时具有局域特性，因此该方法很难精细判断出f电子的局域巡游状态。也有研究者研究了f电子材料能带结构随温度的变化规律，发现f电子谱重有随着温度的升高而逐渐减弱的特征，这一行为符合f电子随着温度变化发生的局域—巡游转变特征，然而由于分辨率等原因，无法获得f电子与传导电子之间的杂化强度信息<sup>[17]</sup>。

近年来，随着仪器能量分辨率、动量分辨率的提高，研究者们可以利用高分辨率、极低温ARPES技术观察重费米子中的f电子信息，这对

于理解f电子的行为具有重要意义。利用ARPES技术在YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>体系中发现,低温下该体系存在明显的f电子与传导电子的杂化行为。然而当温度升高至90 K时(远高于该体系的近藤温度),体系能带结构与低温下并无明显差别,该现象也对周期安德森模型提出了质疑<sup>[18]</sup>。

### 3 f电子信息在ARPES图谱中的特征

依照周期安德森模型,当f电子与传导电子之间没有相互耦合时,二者的能带不会出现重整化现象。而当f电子开始与传导电子耦合时,二者的能带会出现明显重整化。要验证上述模型是否正确,需要获得重费米子材料高质量的ARPES数据,尤其是费米面附近的精细能带结构。下面以几种典型的重费米子材料为例来介绍f电子行为在ARPES数据中的表现。

#### 3.1 f电子与传导电子之间的杂化

为了研究f电子与传导电子的杂化过程,验证周期安德森模型是否正确。我们对铈基材料Ce-115体系、CeIn<sub>3</sub>、CePdIn<sub>3</sub>以及铀基材料URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>、USb<sub>2</sub>等一系列f电子材料进行了ARPES测量,也获得了较为普适的规律。

首先以Ce-115及类似体系为例,在常压低温下,CeCoIn<sub>3</sub>与CeIrIn<sub>3</sub>均是超导体,而CeRhIn<sub>3</sub>具有反铁磁性。在CeCoIn<sub>3</sub>/CeIrIn<sub>3</sub>体系中,通过掺杂Rh元素替换Co/Ir可以实现超导基态到反铁磁基态的转变;同样在CeRhIn<sub>3</sub>体系中,通过掺杂

Co/Ir原子进行元素替换可以实现反铁磁基态到超导基态的转变。因此,这类材料是研究超导特性与磁性相互关系的理想体系<sup>[5]</sup>。

在CeCoIn<sub>3</sub>中,如图1(a)所示<sup>[19]</sup>,我们发现在高温下穿越费米能级的有三条费米速度较大的能带,分别为 $\alpha$ 、 $\beta$ 和 $\gamma$ 。随着温度的降低(低于145 K),在费米能级附近出现了明显的弱色散电子谱重,在 $\Gamma$ 点附近尤其明显,并且随着温度的降低,该谱重的强度不断增强。对于重费米子体系而言,高温下f电子处于局域的状态,随着温度的降低,f电子逐渐变得巡游并开始参与费米面的构建。值得一提的是,我们在ARPES结果中发现,CeCoIn<sub>3</sub>的f电子谱重出现的温度要远高于该体系的近藤温度或者相干温度,如图1(b),(c)所示。通常而言,近藤温度是单杂质模型下,局域磁矩与传导电子之间近藤散射开始起作用的温度标度;而相干温度主要起源于宏观测量手段,比如电阻率等,用于标定该体系进入重费米子态的温度。而ARPES测量中观测到的f电子谱重开始出现的温度背后对应的物理图像,仍然需要进一步的确认。

为了更进一步了解f电子是如何与传导电子发生杂化,并且验证周期安德森模型,主要关注费米能附近f电子谱重如何随着温度进行演化,如图2所示。发现无论在17 K还是60 K,杂化后的 $\alpha$ 能带(图2(a),(b)) and  $\gamma$ 能带(图2(c),(d))均能够用周期安德森模型((3)式)进行拟合。并且可以获得f电子与传导电子之间的杂化强度为 $V_k=15\pm 5$  meV,这表明由于杂化,f电子与传导电子能带之间打开了大约30 meV的直接能隙。

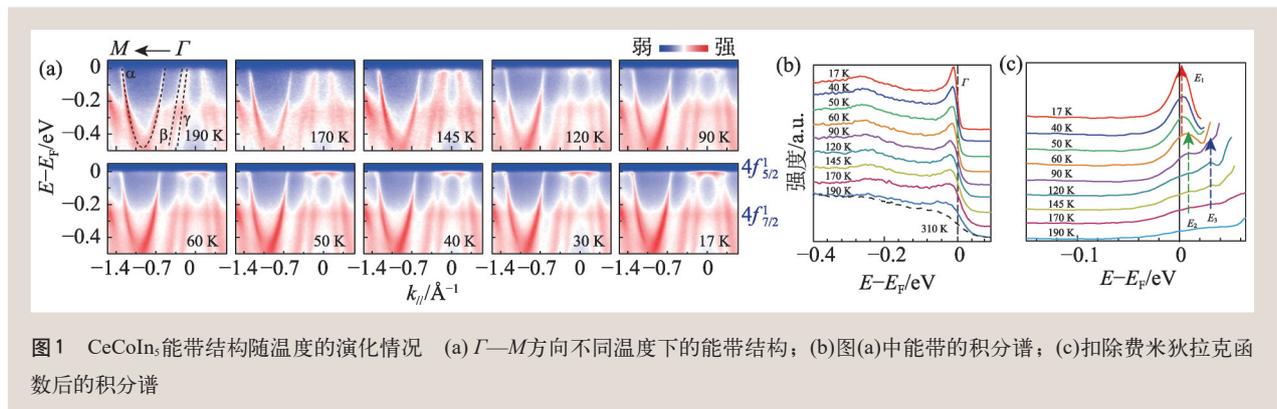


图1 CeCoIn<sub>3</sub>能带结构随温度的演化情况 (a)  $\Gamma$ -M方向不同温度下的能带结构;(b)图(a)中能带的积分谱;(c)扣除费米狄拉克函数后的积分谱

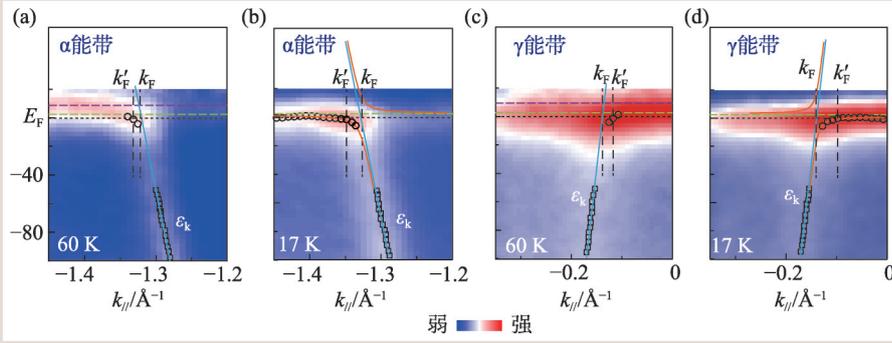


图2 利用周期安德森模型拟合不同温度下的CeCoIn<sub>5</sub>中的 $\alpha$ 和 $\gamma$ 能带

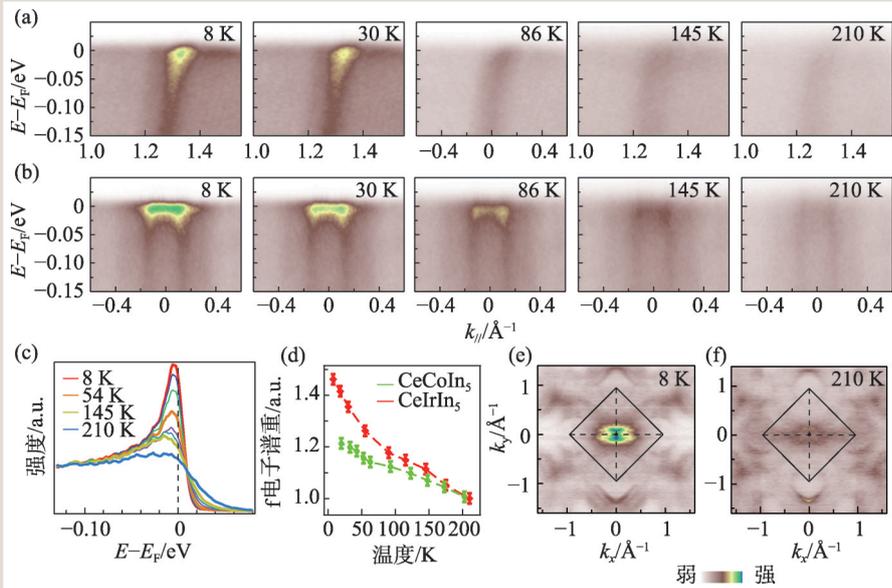


图3 CeIrIn<sub>5</sub>能带结构随温度的演化情况 (a, b)  $\Gamma$ 点和M点附近能带随着温度的演化情况; (c) 能带积分谱; (d) CeCoIn<sub>5</sub>和CeIrIn<sub>5</sub>中f电子谱重随着温度的演化对比; (e, f)不同温度下, CeIrIn<sub>5</sub>费米面的对比

周期安德森模型表明,在弱杂化情况下,f电子不参与费米面贡献,此时的费米面对应于“小费米面”;而当f电子与传导电子之间的杂化增强时,f电子开始参与费米面的构建,此时的费米面对应于“大费米面”。随着温度的变化,CeCoIn<sub>5</sub>的费米面是否会发生变化?这需要对体系的能带结构进行更精细的研究。我们发现,在17 K,空穴型 $\gamma$ 能带的费米穿越位置为 $0.090 \text{ \AA}^{-1}$ ,当温度升高至145 K时,此时 $\gamma$ 能带的费米穿越位置为 $0.132 \text{ \AA}^{-1}$ ,这表明随着温度的升高, $\gamma$ 能带对应的费米面体积有所增大。同样,对于电子型 $\alpha$ 能带而言,其费米面体积随着温度的升高有所减小<sup>[19]</sup>。这一实验结果表明,在高温下f电子处于局域状态时的费米

面形态与低温下f电子开始参与费米面构建时的费米面形态存在差异,主要体现在随着温度降低,电子型口袋体积增大,而空穴型口袋减小。这与f电子局域—巡游转变对应的“大小”费米面的变化是一致的。因此,实验结果验证了周期安德森模型的可靠性。此前研究者在YbRh<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>体系中发现随着温度变化,其费米面并无变化<sup>[18]</sup>,可能是其测量的“高温”不够高,还没有达到f电子谱重完全消失的状态。

为了验证上述现象是否在其他体系中也适用,我们系统研究了CeIrIn<sub>5</sub>、CeRhIn<sub>5</sub>的变温电子结构,如图3和图4所示<sup>[20–23]</sup>。发现在CeIrIn<sub>5</sub>中,随着温度的升高,费米能级附近f电子谱重逐渐减弱,直至消失,

如图3(a), (b)所示,并且其消失的温度都远高于系统的近藤温度或相干温度,这也表明在CeCoIn<sub>5</sub>体系中观察到的现象具有一定的普适性。f电子谱重开始出现的温度可能对应于f电子开始与传导电子发生杂化的温度;而相干温度则代表杂化已经发展到一定程度,不同格点之间的杂化行为也已经开始相互耦合,如图3(c), (d)所示。f电子参与费米面杂化后的贡献主要在费米面的中心处,如图3(e), (f)所示。CeRhIn<sub>5</sub>中也存在类似的现象,如图4(a)—(c)所示,不仅如此,我们还观察到在CeRhIn<sub>5</sub>体系中杂化的能带依赖性,更三维的 $\beta$ 、 $\gamma$ 能带与f带的杂化强度更强,而较为二维的 $\alpha$ 能带与f带之间的杂化强度较弱,如图4(b)所示。

值得一提的是，CeCoIn<sub>5</sub>和CeIrIn<sub>5</sub>在常压下的基态是超导态，而CeRhIn<sub>5</sub>的基态是反铁磁态。根据二流体模型，重费米子体系中基态性质决定于f电子与传导电子之间的耦合强度：当耦合强度较弱时，体系呈现出反铁磁性；当耦合程度增强时，体系可能呈现出超导态；当耦合程度继续增强时，体系则会进入费米液体态。根据该理论，CeRhIn<sub>5</sub>中f电子与传导电子之间的耦合强度在Ce-115体系中应该最弱，CeIrIn<sub>5</sub>和CeCoIn<sub>5</sub>则较强。我们通过ARPES实验，对比了三种材料f电子谱重随温度演化的情况，如图3(d), 4(c)所示，发现CeIrIn<sub>5</sub>中f电子与传导电子之间的耦合强度最强，CeCoIn<sub>5</sub>次之，CeRhIn<sub>5</sub>的最弱，实验结果符合二流体模型，并且也得到了第一性原理计算的支持。CeIn<sub>3</sub>在低温下也具有反铁磁性，因此其杂化强度也比CeCoIn<sub>5</sub>和CeIrIn<sub>5</sub>弱<sup>[23]</sup>。

上述实验结果都是铈基4f电子相关材料，这类现象是否在5f电子体系中同样适用呢？我们在铀基材料URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>和USb<sub>2</sub>体系中也开展了相关变温ARPES实验，如图5(a)和6(a)所示<sup>[24, 25]</sup>。其f电子谱重均随着温度的升高而逐渐减弱甚至消失，如图5(c), (d)和6(d), (e)所示。在高温下能带呈现明显的线性色散，如图6(b)所示，而低温下，在费米能级附近的电子结构能够很好

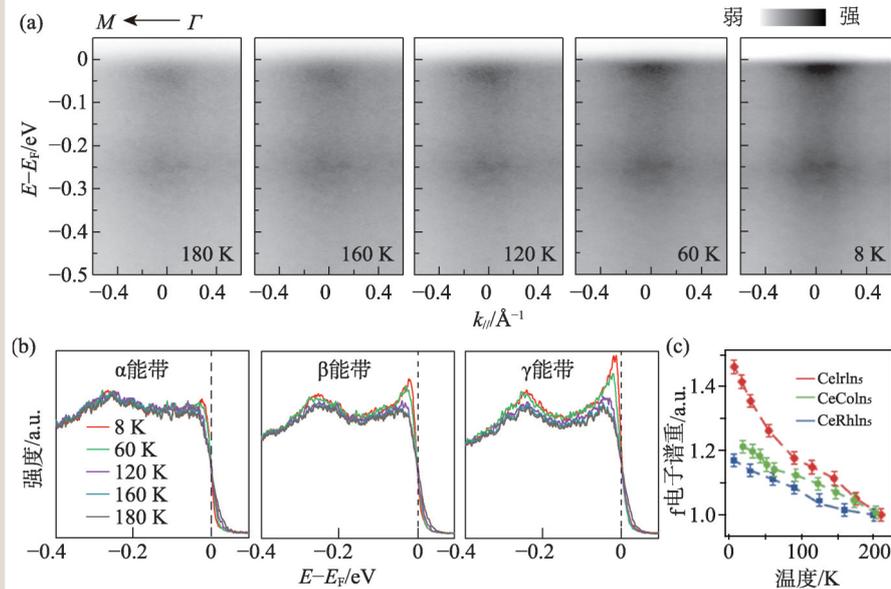


图4 CeRhIn<sub>5</sub>能带结构随温度的演化情况 (a)  $\Gamma$ -M方向能带随着温度的演化情况；(b) 三条能带积分谱；(c) CeCoIn<sub>5</sub>、CeRhIn<sub>5</sub>和CeIrIn<sub>5</sub>中f电子谱重随着温度的演化对比

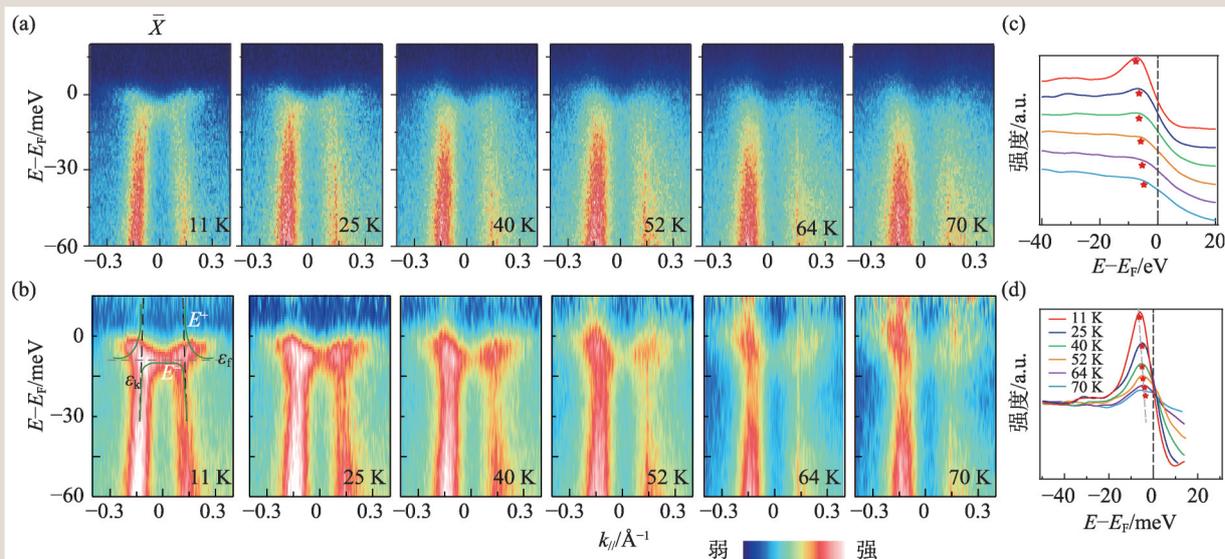


图5 URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>能带结构随温度的演化情况 (a) X点附近能带随着温度的演化情况；(b) 能带扣除费米狄拉克函数后的图谱；(c) URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>中f电子谱重随着温度的演化；(d) URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>中f电子谱重扣除费米狄拉克函数后随着温度的演化

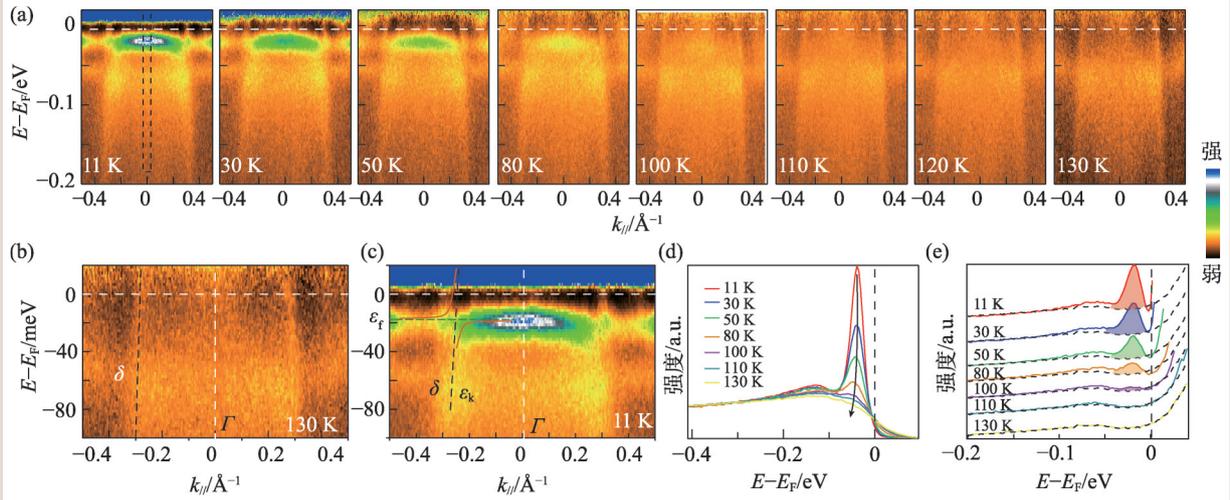


图6 USb<sub>2</sub>能带结构随温度的演化情况 (a)  $\Gamma$ 点附近能带随着温度的演化情况; (b, c)不同温度下费米能附近电子结构演化; (d, e)USb<sub>2</sub>中f电子谱重随着温度的演化

地用周期安德森模型进行拟合,如图6(c)所示。这也表明4f电子材料和5f电子材料在局域巡游特性方面具有相似性。不仅如此,与4f电子材料类似,URu<sub>2</sub>Si<sub>2</sub>和USb<sub>2</sub>体系中f电子谱重在费米能级附近开始出现的温度也要高于体系本身的相干温度。

### 3.2 f电子如何同时实现杂化与磁性

在重费米子体系中,很多材料的基态都具有磁性。例如CeRhIn<sub>5</sub>,其低温下具有3.8 K的反铁磁转变温度。如果对CeRhIn<sub>5</sub>进行加压,其反铁磁转变温度会逐渐被抑制,继而出现超导态,这类材料往往是研究磁性与超导关系的理想体系。由于重费米子超导体的超导转变温度往往很低,目前ARPES技术还难以探测这类材料的超导能隙。但是却能够研究重费米子体系中杂化与磁性的相互关系,例如二者能否共存?二者是如何共存于同一体系中?我们选取了层状材料USb<sub>2</sub>作为研究对象。USb<sub>2</sub>具有203 K的反铁磁转变温度,其电阻率曲线在低温下表现出明显重费米子行为。

图6(a)为USb<sub>2</sub>的能带结构随温度的变化,在 $\Gamma$ 点附近 $\eta$ 能带存在明显的f电子与传导电子杂化行为。在高温下,只有费米速度较大的传导电子能带穿越了费米面;随着温度的降低,费米能附近

出现明显弱色散电子谱重,并且该电子谱重与传导电子发生明显杂化现象,此时费米能附近的能带结构能够很好地用周期安德森模型拟合。并且,在M点附近也发现了弱色散的能带 $\gamma$ ,该能带随温度的演化规律与 $\Gamma$ 点附近的 $\eta$ 能带完全不一样,如图7所示。在低温下,能带 $\gamma$ 位于费米能之下;而随着温度的升高,其不断向费米能级移动;当温度升高至反铁磁转变温度时,该能带刚好位于费米能级上,如图7(a),(b)所示。该行为表明当USb<sub>2</sub>材料进入反铁磁态后,能带 $\gamma$ 就在费米能级附近打开能隙,并且能带 $\gamma$ 与材料的反铁磁转变密切相关。

为了更进一步挖掘 $\eta$ 能带与 $\gamma$ 能带的起源,我们进行了不同偏振光下USb<sub>2</sub>样品的ARPES实验,如图8所示。在水平(LH)和垂直(LV)偏振光下, $\gamma$ 能带的强度无明显变化;而对于 $\eta$ 能带,在LH偏振光下,其强度较强(图8(a)),而在LV偏振光下,其强度大幅度减弱(图8(b))。这表明 $\eta$ 能带与 $\gamma$ 能带具有不同的轨道对称性。结合图6与图7,这两条能带随着温度变化的演化规律不一致,因此可以判断 $\eta$ 能带与 $\gamma$ 能带的起源不一样。 $\gamma$ 能带与材料的反铁磁转变相关,而 $\eta$ 能带与体系中f电子与传导电子的杂化行为相关。这就为此前提出的问题给出了答案:杂化与磁性是能够在重费米子体系中共存的,二者的共存主

要依赖于体系中不同的f电子轨道。

### 3.3 f 电子的杂化与量子临界行为

当重费米子材料处于零温下，在外界非温度参量的调节下，会呈现出磁有序基态向无磁性基态转变的二阶量子临界相变。而描述临界相变主要有两种理论：一种是传统的自旋密度波(SDW)理论，该理论认为在磁有序区域内，随着外界条件的变化，大小费米面的转化就已经发生；另外一种理论是局域的量子临界理论，其认为体系大小费米面的转变刚好在临界点处发生。ARPES技术是否能够判断体系中量子临界转变的类型？这值得我们思考和研究。在ARPES测量中，压力、磁场等技术难以加载，因此掺杂是实现体系量子临界转变的有效途径之一。

在 $\text{CeRu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ 体系中，当 $x < 0.07$ 时，体系基态为顺磁态；当 $x = 0.07 - 0.57$ 时，基态为反铁磁态；当 $x = 0.57 - 1$ 时，基态为铁磁性。并且当 $x = 0.07$ 时，体系刚好经过量子临界点。因此，有研究者利用ARPES技术对比了 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ 、 $\text{CeRu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$ 以及 $\text{LaRu}_2\text{Si}_2$ 的电子结构，发现在 $\text{CeRu}_2\text{Si}_2$ 和 $\text{CeRu}_2(\text{Si}_{0.82}\text{Ge}_{0.18})_2$ 中均能发现巡游的f电子特征，这表明该体系在反铁磁态区域已经发生了大小费米面的转变，因此判断 $\text{CeRu}_2(\text{Si}_{1-x}\text{Ge}_x)_2$ 体系的量子临界转变属于自旋密度波型<sup>[16]</sup>。

然而事实是否确实如此？我们寻找到另外一个体系进行了比较，即 $\text{YbRh}_2\text{Si}_2$ 体系，该体系在常压零场下具有70 mK的反铁磁转变温度，在磁场的作用下，其反铁磁转变温度逐渐降低，直至消失，并且该材料在磁场诱导下的量子临界转变属于局域量子临界相变。然而我们仍然能够在零场下观察到明显的f电子与传导电子之间的杂化行

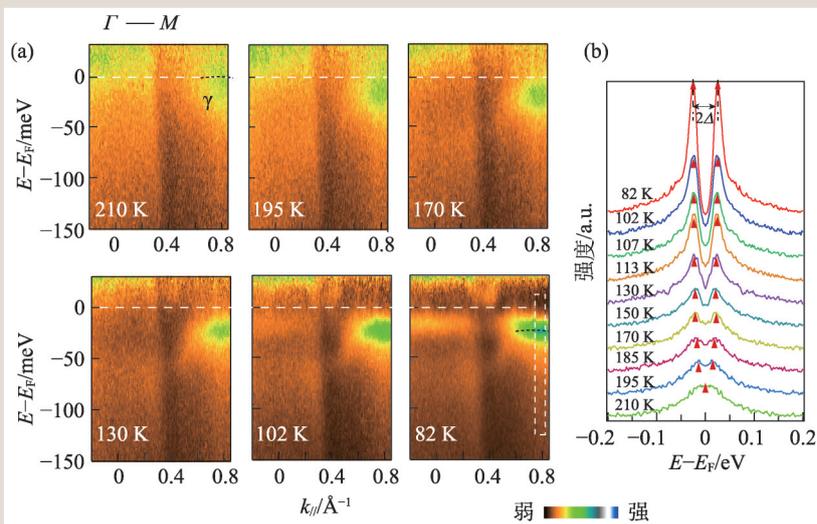


图7 (a)不同温度下 $\text{USB}_2$ 的能带结构图；(b)对称化后的能量色散曲线

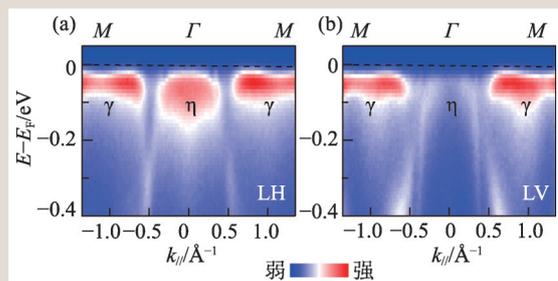


图8 (a)水平偏振(LH)偏振光下， $\text{USB}_2$ 中 $\Gamma-M$ 方向的能带结构；(b)垂直偏振(LV)偏振光下， $\text{USB}_2$ 中 $\Gamma-M$ 方向的能带结构

为。这似乎意味着在反铁磁区域已经完成了大小费米面的转变，该体系在磁场下的量子临界转变应当属于自旋密度波型。然而这与其他实验结果不符<sup>[18, 26]</sup>。

再以 $\text{CeRhIn}_5$ 为例，传统认为在常压下其费米面属于“小费米面”，当对其加压至2.3 GPa时，体系的费米面变为“大费米面”<sup>[27]</sup>。然而，我们的实验结果表明，即使在常压下也能够发现明显的f电子与传导电子的杂化现象，如图4所示。对于 $\text{CeIn}_3$ 体系，也存在类似的情形<sup>[23]</sup>。

因此，这就引发大家思考，ARPES手段究竟能否用于表征体系的量子临界转变类型？是否只要在ARPES实验中观察到f电子与传导电子的杂化行为，就能够断定该体系的费米面是“大费米面”？这需要进一步的研究。

### 3.4 f 电子杂化与超导行为

重费米子超导体属于非常规超导体，其超导特性与铜基、铁基超导材料存在很多类似的现象，因此对重费米子超导特性的研究也是解决非常规超导机理的有效途径之一。ARPES 技术能够直接探测材料的精细电子结构，能够判断电子结构对称性，是研究材料超导机理的有力工具。然

而由于重费米子超导材料的超导转变温度都较低 (mK—几 K)，对于 ARPES 的测量有一定难度，需要超低温、超高能量分辨率的仪器。有研究者利用超高能量分辨率 (520  $\mu\text{eV}$ ) 的激光 ARPES 设备对  $\text{CeRu}_2$  的电子结构进行了探测<sup>[28]</sup>。 $\text{CeRu}_2$  具有 6.2 K 的超导转变温度，在探测其超导能隙时，就需要探测温度远低于 6.2 K。在对其电子结构探测过程中，研究者发现了在超导态内，费米能附近的电子态打开了明显的能隙，并且判断出其能隙的各向异性。

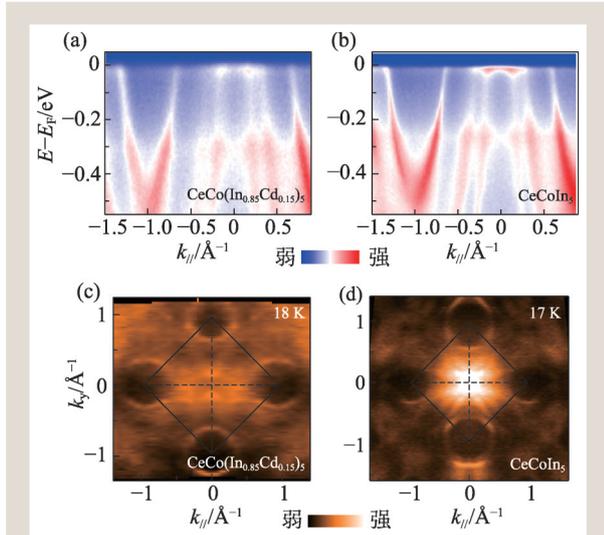


图9 (a)18 K 时  $\text{CeCo}(\text{In}_{0.85}\text{Cd}_{0.15})_5$  的能带结构图；(b)17 K 时  $\text{CeCoIn}_5$  的能带结构；(c)18 K 时  $\text{CeCo}(\text{In}_{0.85}\text{Cd}_{0.15})_5$  的费米面拓扑结构图；(d)17 K 时  $\text{CeCoIn}_5$  的费米面拓扑结构图

### 3.5 掺杂对 ARPES 中 f 电子杂化的影响

掺杂是调节重费米子体系基态性质的有效手段之一。以  $\text{CeCoIn}_5$  为例，未掺杂时，体系基态为超导态；当 Cd 的掺杂量小于 0.5% 时，其超导转变温度几乎不变；当 Cd 掺杂量为 0.5%—1.25% 之间时，超导态与反铁磁态共存；而当 Cd 掺杂量大于 1.25% 时，体系基态变为反铁磁态。我们对比了  $\text{CeCoIn}_5$  和  $\text{CeCo}(\text{In}_{0.85}\text{Cd}_{0.15})_5$  的电子结构，如图 9 所示。二者的传导电子能带差别不大，如图 9 (a), (b) 所示，但是  $\text{CeCo}(\text{In}_{0.85}\text{Cd}_{0.15})_5$  费米面附近的 f 能带的态密度强度显著降低，如图 9(c), (d) 所示。这表明通过掺杂，f 电子与传导电子之间的耦合强度显著降低。但即使掺杂后，体系处于反铁磁态，f 电子仍然参与了费米面的构建<sup>[29]</sup>。

而利用 Yb 对  $\text{CeCoIn}_5$  进行掺杂能获得不同的结果。我们对比了  $\text{CeCoIn}_5$  和  $\text{Ce}_{0.85}\text{Yb}_{0.15}\text{CoIn}_5$  能带结构，如图 10(a), (b) 所示。二者的基本电子结构类似，并且费米能附近的 f 能带的电子态密度强度也类似，这表明二者的 f 电子的杂化强度类似，如图 10(c) 所示，但是在掺杂样品中出现了额外的传导电子能带，这应该来自于 Yb 元素<sup>[30]</sup>。

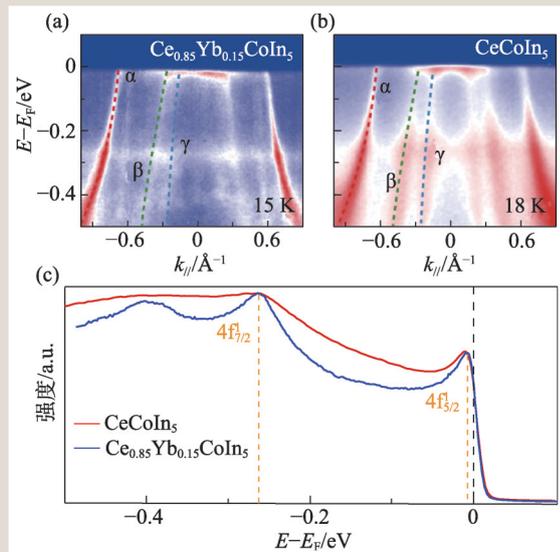


图10 (a)15 K 时  $\text{Ce}_{0.85}\text{Yb}_{0.15}\text{CoIn}_5$  的能带结构图；(b)18 K 时  $\text{CeCoIn}_5$  的能带结构图；(c)  $\text{Ce}_{0.85}\text{Yb}_{0.15}\text{CoIn}_5$  和  $\text{CeCoIn}_5$  能量色散曲线对比图

## 4 总结与展望

在利用 ARPES 技术研究部分重费米子材料时，我们发现了与 f 电子杂化相关的一些实验特征，主要归纳为以下几点：

(1) 高温下，费米能附近没有 f 电子谱重，随

着温度降低, 费米能附近开始出现 f 电子谱重, 并且 f 能带与传导电子能带杂化; f 电子谱重出现的温度往往高于体系的近藤温度或者相干温度;

(2) 当 f 电子开始与传导电子杂化时, 体系费米面拓扑结构会发生变化。往往是空穴型口袋体积变小, 而电子型口袋体积变大;

(3) 传导电子能带与 f 电子产生杂化时, 杂化强度往往体现出能带依赖性。对于 Ce-115 体系而言, 三维的能带杂化强度较强, 而二维的能带杂化强度较弱;

(4) f 电子杂化与磁性可以共存于同一体系中, 它们的形成可以依赖于不同的 f 电子能带;

(5) 能否根据 ARPES 观测到的 f 电子谱重判断体系的费米面是“大/小费米面”仍然需要进一步研究;

(6) 对重费米子超导机理的研究需要进一步降低 ARPES 技术的测量温度、提升仪器的能量分辨率。

ARPES 技术能够分辨出重费米子体系中清晰的能带结构, 是研究 f 电子特征的有力工具。然而, 目前 ARPES 在重费米子研究中存在的一些固有缺陷也需要被正视。例如表面效应, 目前研究

者一般利用几十到几百电子伏特的光子去激发光电子, 对于几十到一两百电子伏特的光子而言, 其光电子仅仅来自于材料的表面几层原子, 实验探测到的是材料的固有属性还是表面属性? 需要进一步研究。如果利用几百电子伏特的光子去激发光电子, 此时仪器的能量分辨率可能达到 100 meV, 而重费米子材料的特征能量仅仅约为 10 meV 左右, 此时也就无法获得体系准确的能带信息。能够解决这一问题的可能方法是利用激光光源去激发光电子, 如果利用 6—7 eV 的激光光源, 一方面能够极大扩展材料探测深度, 另一方面仪器的能量分辨率也会大幅度提升。因此, 利用激光光源进行重费米子体系的 ARPES 实验研究是今后重点研究的方向之一。截止面对材料的电子结构影响也较大, 解理样品中往往会出现不同的截止面, 不同截止面的电子结构可能千差万别。如果采用光斑较大的光源对材料进行探测, 获得的可能是多个截止面电子结构的复合信息, 这也对材料的本征电子结构的探测造成了影响。利用微区 ARPES 技术分别探测不同截止面的信息, 也是今后的研究方向之一。

## 参考文献

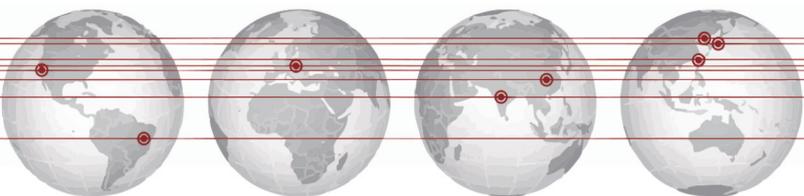
- [1] Stewart G R. *Rev. Mod. Phys.*, 1984, 56: 755
- [2] Gromko A D *et al.* *Phys. Rev. B*, 2003, 68: 174520
- [3] Aiura Y *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2004, 93(11): 117005
- [4] Shai D E *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2013, 110(8): 087004
- [5] Christian P. *Rev. Mod. Phys.*, 2009, 81(4): 1551
- [6] Yang Y F *et al.* *P. Natl. Acad. Sci. USA*, 2012, 109(45): 109
- [7] Jiao L *et al.* *P. Natl. Acad. Sci. USA*, 2015, 112(3): 673
- [8] Zhao H C *et al.* *Nat. Phys.*, 2019, 15: 1261
- [9] Zhang G M *et al.* *Phys. Rev. B*, 2000, 62: 76
- [10] Damascelli A, Hussain Z, Shen Z X. *Rev. Mod. Phys.*, 2003, 75: 473
- [11] Hewson A C. *The Kondo Problem to Heavy Fermions*. Cambridge: Cambridge University Press, 1993
- [12] Koitzsch A *et al.* *Phys. Rev. B*, 2009, 79: 075104
- [13] Kimura M Y *et al.* *Journal of Physics: Conference Series*, 2015, 592: 012003
- [14] Fujimori S I *et al.* *Phys. Rev. B*, 2006, 73: 224517
- [15] Yano M *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2007, 98(3): 036405
- [16] Okane T *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2009, 102(21): 216401
- [17] Koitzsch A *et al.* *Phys. Rev. B*, 2013, 88: 035124
- [18] Kummer K *et al.* *Phys. Rev. X*, 2015, 5(1): 011028
- [19] Chen Q Y *et al.* *Phys. Rev. B*, 2017, 96(4): 045107
- [20] Chen Q Y *et al.* *Phys. Rev. B*, 2018, 97(7): 075149
- [21] Chen Q Y *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2018, 120(6): 066403
- [22] Yao Q *et al.* *Phys. Rev. B*, 2019, 99(8): 081107
- [23] Zhang Y *et al.* *Phys. Rev. B*, 2018, 97(4): 045128
- [24] Zhang W *et al.* *Phys. Rev. B*, 2018, 98: 115121
- [25] Chen Q Y *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2019, 123: 106402
- [26] Paschen S *et al.* *Nature*, 2004, 432: 881
- [27] Gegenwart P *et al.* *Nature. Phys.*, 2008, 4: 186
- [28] Kiss T *et al.* *Phys. Rev. Lett.*, 2005, 94(5): 057001
- [29] Chen Q Y *et al.* *Phys. Rev. B*, 2019, 100: 235148
- [30] Chen Q Y *et al.* *Phys. Rev. B*, 2019, 101: 045105



Quantum Design中国子公司-北京  
北京市朝阳区酒仙桥路10号  
恒通商务园B22座5层501室 100015  
电话: (8610) 85120278

Quantum Design中国子公司-上海  
中国上海市静安区威海路511号  
上海国际集团大厦1405室200041  
电话: (8621) 52280980

Quantum Design中国子公司-广州  
中国广州市番禺区汉溪大道东290号  
保利大都汇A3栋1509室 511495  
电话: (8620) 8920 2739

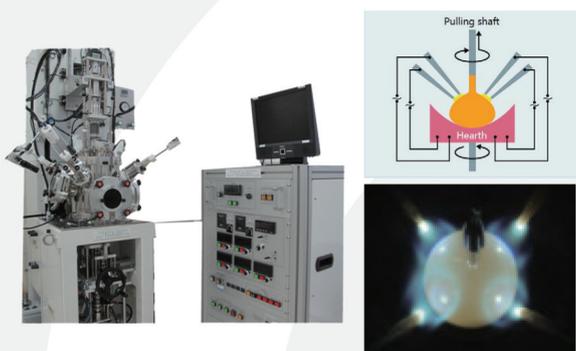


美国Quantum Design公司中国子公司利用遍布世界的专业营销以及强大的售后团队, 与其他世界顶尖设备制造商合作, 致力于打造一个全新的代理分销网络, 为国内科研用户提供专业的产品销售和售后服务网络。即刻扫描右侧微信二维码关注我们获得更多科研及产品资讯!



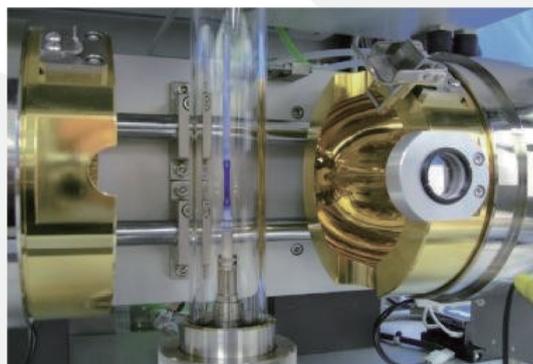
## 四电弧法及多种浮区法单晶生长设备 助力重费米子体系金属间化合物材料晶体生长!

### 四电弧法单晶炉



四电弧高温单晶生长炉适合生长化学性质活跃但熔点极高(一般在 3000°C 左右)的金属间化合物, 包括含有稀土元素(或者金属铀)的二元及四元金属间化合物。

### 卤素灯光学浮区法单晶炉



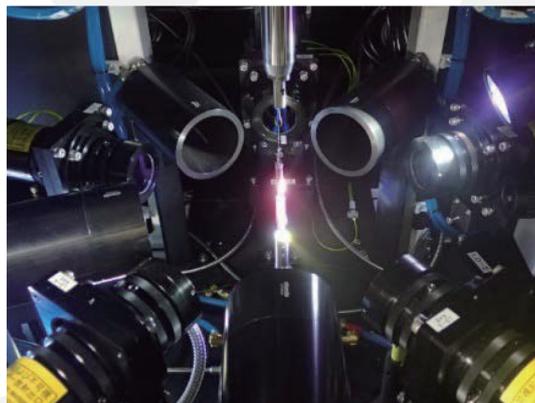
卤素灯光学浮区炉, 可实现 2150°C 高温, 压力可达 10bar, 可生长超导体、介电和磁性材料、金属间化合物、半导体、光学晶体和宝石等单晶。

### 高温高压光学浮区法单晶炉



高温高压光学浮区法单晶炉采用氙灯光源, 能够提供 2200-3000°C 甚至更高的晶体生长温度, 多种压力规格 10bar、50bar、100bar、150bar、300bar 等可选, 可实现 10<sup>-5</sup> mbar 的高真空。

### 高功率激光浮区法单晶炉



新一代高功率激光浮区法单晶炉采用了独特的温度梯度优化方案, 有助于晶体开裂问题的解决; 同时采用了独特的实时温度集成控制系统, 可实现温度设定和功率反馈控制。