

NSRL 表面物理线站的性能测试及 角分辨光电子能谱实验

邹崇文 孙 柏 王国栋 张文华 徐彭寿 徐法强 潘海斌

(中国科学技术大学国家同步辐射实验室 合肥 230029)

摘要 介绍了中国科技大学国家同步辐射实验室(NSRL)表面物理站的调试及获得的初步结果。利用光电二极管进行了光束线光通量的测试,分别得到了3块光栅的光通量响应曲线。利用纯金样品的二次谐波和费米边分别对高能和低能部分的入射光子能量进行了标定,并给出了系统的能量分辨率。最后用同步辐射零级光和激光束对实验站的电子能量分析器进行准直,用Cu单晶样品的角分辨光电子能谱实验测试了整个系统的性能,结果表明,NSRL表面站能够满足用户开展角分辨光电子能谱实验的要求。

关键词 光束线,同步辐射,光通量,二次谐波,能带色散

中图分类号 O434.12

在“NSRL二期工程”期间,新建了一个表面物理光束线实验站。实验站主要由一台进口的VG公司的角分辨光电子能谱仪ARUPS 10和与之相连的超高真空样品室组成。它的主要目的是为用户提供同步辐射角分辨的光电子能谱实验平台。表面物理光束线调试结束后利用同步光进行了测试,测量了光束线的光通量,标定了光子能量,并进行了Cu单晶的角分辨光电子能谱实验,为用户提供了实验站运行的一些参数,为以后的实验提供参考。

1 光通量和光栅响应曲线测试

光束线采用变包含角球面光栅单色器(Variable angle spheric grating monochromator)^[1],能量范围10—250 eV,由3块不同的球面光栅(200(线)/mm、600(线)/mm和1200(线)/mm光栅)来实现。光束线的光路结构及具体参数见文献[2]。在表面物理光束线调试过程中,已经用气体电离室对光束线的光强、光子能量和分辨率进行了测试。但是隔开气体电离室和超高真空光束线的窗口材料会在一定程度上影响光通量的测量结果,而且在低能区域没有合适的窗口材料,在此范围内的光通量,光子能量和分辨率没法标定,因而有必要进行重新测量。为此,我们选择了光电二极管(IRD AXUV-100)在超高真空中来进行。光电二极管安装在光束线和实验站的连接处,可以上下移动,测试的时候光电二极管放下来接受单色光照射可以取出信号,测试完毕后二极

管提起来可进行其他实验。光电流测量用 Keithley 6517 微电流计,其最小分辨为 10^{-16} A,测试过程中的本底电流为 20 pA 左右。测量时光束线的狭缝大约为 80 μ m,储存环的束流强度为 150 mA。图 1 为测得的光电二极管的光电流,200(线)/mm 的低能量光栅测得的光电流较弱,但也都在 30 nA 以上,比本底信号高出 10^3 倍。由于光电二极管自身对不同能量的光子的量子效率(Quantum efficiency)和光电器件响应(Response)不同,因而在计算绝对光通量的时候要对这些因素加以校正。光电二极管(IRD AXUV-100)作为标准的光电器件其量子效率和能量响应曲线可以从该公司网页上查到^[3]。校正光电二极管的量子效率和能量响应,然后将曲线归

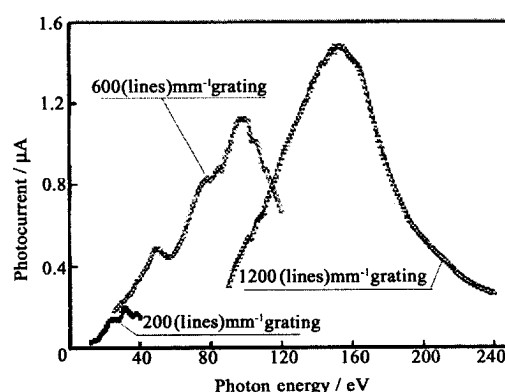


图1 用 Keithley 6517 微电流计测得 3 块光栅的光电流
Fig.1 The photocurrent recorded by Keithley 6517 micro-amperemeter for three gratings

一化为 100 mA 束流强度,最后得到光束线三块光栅的光通量曲线见图 2。从图 2 可以看出在 10—190 eV 的能量范围内光通量都可以达到 2×10^{11} (photons) $s^{-1} \cdot (100mA)^{-1}$ 以上,其中 600(线)/mm 光栅提供的最大光通量可达 6×10^{11} (photons) $s^{-1} \cdot (100mA)^{-1}$ 。在光子能量高于 190 eV 时的光通量下降很快,在 240eV 光子能量的时候只能达到 5×10^{10} (photons) $s^{-1} \cdot (100mA)^{-1}$,但已经达到光束线的设计指标。

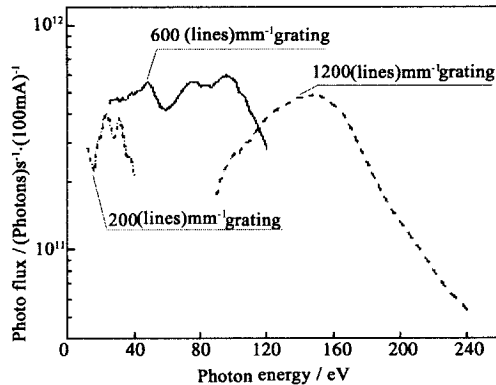


图 2 三块光栅对应的光通量随能量变化曲线,狭缝宽度 80 μm

Fig. 2 The photon flux of beamline as a function of photon energy. The slit width during the measurement is about 80 μm

2 光子能量标定和分辨率

在光束线和实验站没有对接前,光束线能量可以用气体电离室中稀薄气体光离化谱峰来测定^[4]。在连接实验站后我们可以用二次谐波(Harmonic wave)的方法来标定。根据光电发射原理^[5],光电发射的基本方程为 $h\nu = E_B + E_{kin} + \phi$, 其中 $h\nu$ 为入射光子能量, E_B 为结合能, E_{kin} 为出射光电子的动能, ϕ 为仪器功函数。而二次谐波光发射可以用同样的关系式来描述: $2h\nu = E_B + E'_{kin} + \phi$, 这两个方程相减可得 $h\nu = E'_{kin} - E_{kin}$, 也就是说入射的光子能量为一次和二次谐波测得的光电子动能的差。在标定过程中,我们选用高纯度的 Au 片作为标准样品。由于光束线的能量范围从 10—250 eV,二次谐波的方法仅仅对高能(能够激发 Au4f 芯能级)的光子能量进行标定,对于低能部分,我们利用 Au 的费米边进行测试。图 3 为 Au4f 芯能级的光电子能谱图,入射光子能量的预设能量值为 180 eV。图中的两个小插图是经球面光栅单色器后的一次波和二次谐波激发的 Au4f 电子的谱峰。由图 3 可以看出一次波激发的 Au4f_{7/2} 峰位为 90.62 eV(光电子动能),二次

谐波激发谱峰位置为 270.94 eV, 因此入射光子的真实能量为 180.32 eV。根据确定的光子能量,以及可以查得的 Au4f_{7/2} 束缚能为 83.9eV^[6], 根据上述光电发射的基本方程,可得到仪器功函数 ϕ 为 5.8 eV。另一方面由于 VG 能谱仪上配有标准的 Mg 靶 X-ray 枪,我们也可以通过 X 射线源测量 Au 的 4f 能级的 XPS。由于 X 射线源的光子能量是已知的, Au 的束缚能一定,这样我们也可以得到仪器的功函数,其结果与用二次谐波方法得到的结果一致。

对于光子能量小于 Au4f_{7/2} 束缚能不能激发此芯能级,我们利用 Au 的费米边来确定入射的光子能量。图 4 为入射光子预设能量值为 32 eV 的 Au

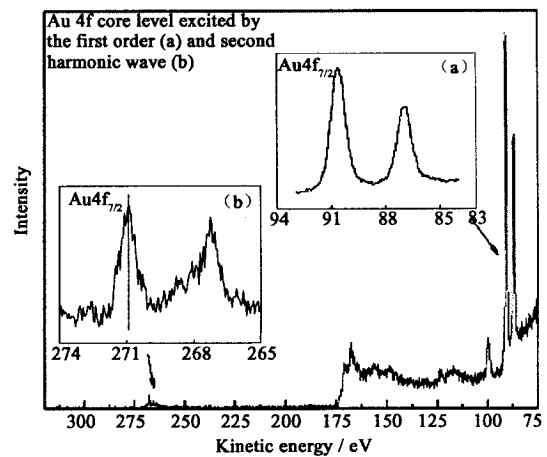


图 3 光子能量 180eV 激发的 Au4f 芯能级。两个插图为一次 (a) 和二次 (b) 谐波激发的 Au4f

Fig. 3 Au 4f core level excited by photon energy of about 180 eV. Two insets show the spectra excited by the first and second harmonic wave

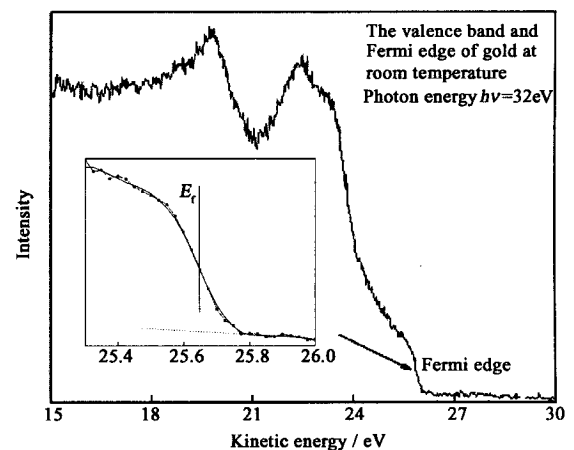


图 4 能量 32eV 光子激发的 Au 价带和 Fermi 边。小插图为 Fermi 边。功函数包括在谱图中

Fig. 4 The valence band and the Fermi edge of Au excited by 32 eV radiation. The inset is the clear picture of the Fermi edge. The work function is not wiped off in the spectra

的价带和费米边的谱图。从图 4 中可以清楚地看到 Au 的价带峰, 插入小图为费米边, 可以看出费米边的位置在 25.65 eV 处。由于仪器功函数已经由二次谐波的方法得到, 这样入射的光子能量为 31.45 eV, 这就是实际光子能量的标定值。通过上述方法我们对整个能量范围的光子能量都进行了标定。这些结果与用气体电离室测量的光子能量是基本吻合的。

用上述方法测得了一系列光子的真实能量的数据后, 我们将这些数据用变包含角单色器的优化程序进行拟合, 得到优化过的光栅和平面镜参数。利用优化后的参数计算出的光束线光子能量就是标定后的光子能量, 这样在以后的实验中预设的光子能量即为真实的光子能量值。事实上经过参数优化后预设光子能量值与真实值相差在 0.2 eV 以下。

在光束线调试阶段, 通过测量气体离子化谱峰的半高宽已经测试了光束线的能量分辨率, 由 Ar 气测得在能量为 244 eV 的分辨率 ($E/\Delta E$) 为 1400, Kr 气测得的在 92 eV 的分辨率为大约 1500。从我们的测试中同样可以对分辨率进行估算。从图 3 的插入图可得在通过能量为 10 eV 的时候 Au4f_{7/2} 谱峰的半高宽(FWHM)为 0.56 eV, 系统的分辨率可以通过 Fermi 边来进行估算。由于常温下的 Dirac-Fermi 分布函数的 Fermi 边的本征展宽为 114 meV, 由图 4 的插入图可以得到 Au 片标样的费米边宽 150 meV, 这表明整个系统的分辨率达到了很高的水平。

3 能量分析器准直和 Cu 的角分辨光电子能谱实验

同步辐射光电子能谱分析室配有 VG 公司的电子能量分析器 ARUPS 10。分析器能够沿着双轴转动, 可进行 0 至 360° 的极角和 +5° 至 -95° 的方位角旋转, 在 He 灯激发下能量分辨率可达 75 meV, 角度分辨率为 0.4°。为了进行角分辨光电子能谱的实验, 需要对能谱仪进行校准, 确定分析器半球的极角和方位角零点, 同时保持探测器在沿极角方向旋转时保持方位角不变, 此外还需要使得样品在旋转过程中聚焦在样品上的光斑点不会移动。在实验站和光束线对接后, 引入同步辐射零级光 (白光), 对分析器进行准直, 让白光从分析器半球背面的一个小孔穿进, 从分析器的透镜系统穿出, 最后到达对面观察窗的中心, 这样就确定了分析器的极角和方位角的零点, 而且由此表明能量分析器在沿着光束线方向已经校准。在另一个方向使用了一个 He-Ne 激光器, 让激光穿过分析室真空腔的一个观察窗的中心, 然后沿极角方向旋转分析器半球到合适位置, 让激光束也能够从分析器半球背面的一个

小孔穿进, 从分析器的透镜系统穿出, 最后到达对面观察窗的中心, 这样由同步光和激光在两个方向校准了能量分析器。然后通过调节样品架, 使得激光束和同步光零级光斑在样品旋转时都能够处于样品上的同一点。完成以上调整工作之后, 实验站分析器的准直工作就基本完成。

为了测试整个系统, 我们进行了 Cu 样品的同步辐射角分辨光电子能谱实验。单晶 Cu (110) 面经过化学抛光后传入超高真空室。反复的氩刻退火处理后得到清洁的表面, 可以看到清晰的 LEED 图。通过 LEED 图来定向, 确定 K 空间的光电发射平面 Γ KLUX, 如图 5 右图所示。选择入射同步光子能量为 18 eV, 入射角度相对于表面法线方向为 50°, 改变极角 θ , 测得从正出射到 75° 出射的光电子谱图, 角度间隔为 5°, 所得结果经过归一化后如图 6

(a) 所示。可以看到 5 条比较清楚的能带色散, 分别标志为①、②、③、④、⑤。谱峰的能量位置和能量色散情况与文献报道^[7-9]非常一致。为了得到 Cu 的体态能带, 我们做了变能量垂直出射的光电子能谱实验。能量范围从 16—35 eV。光子入射角度仍然保持与平面法线角度为 50°。能量分析器在垂直平面方向上探测光电子。归一化后的谱图如图 6 (b) 所示。从图 6 (b) 中可以看到四条比较明显的能带色散。由于探测样品表面垂直出射光电子,

$$K_{\parallel}=0, K_{\perp}=\frac{1}{\hbar}\sqrt{2m(\hbar\nu-E_{\text{B}}-\phi+V_{\text{o}})}, \text{ 其中, } \hbar\nu$$

为入射光子能量, E_{B} 为结合能, ϕ 为仪器功函数, V_{o} 为 Cu 的内势^[10]。根据上述公式可以得到 $E(K)$ 能带色散。另外我们还利用基于密度泛函理论的全势线性缀加平面波 (FPLAPW) 方法^[11, 12]在理论上计算了 Cu 的体态能带, 选取 Cu 原子的 Muffin-tin 半径为 2.0, 设置参数 $R_{\text{MT}}K_{\text{max}}=8$ 来调节收敛矩阵的大小, 其中 K_{max} 为平面波基矢的截止值。在原

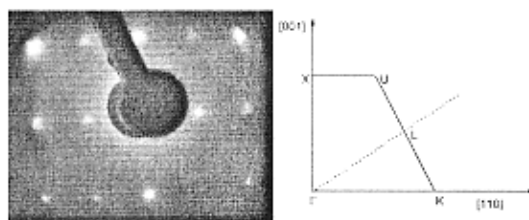


图 5 左图为清洁 Cu(110)面的 LEED 斑点。低能电子能量为 120eV; 右图为角分辨实验中的光电发射平面

Fig. 5 The left image shows the LEED pattern of cleaned Cu(110) with 120eV electron energy; and the right picture shows the emission plane of Cu(110) in the ARPES experiment

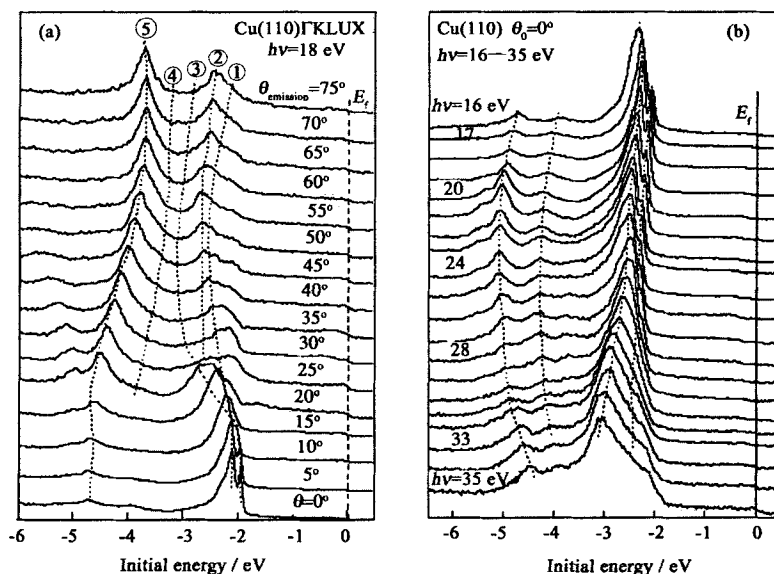


图 6 单晶 Cu(110)面的角分辨光电子能谱：(a)固定光子能量，变出射角；(b)垂直出射，变光子能

Fig. 6 The ARPES of Cu(110) surface:

(a)Spectra for fixed energy with variable emission angle;(b)Spectra for changeable photon energy with the normal emission

子球区基矢的球谐函数的角动量量子数 $l \leq 10$ ，非球谐函数量子数 $l' \leq 4$ 。当系统总能在相邻两次迭代计算的变化小于 10^{-3} mRy 时认为自洽计算已经收敛。

我们将角分辨光电子能谱实验得到的数据点和理论计算的色散曲线都在图 7 中表示出来。结果表明角分辨光电子能谱实验得到的 Cu 单晶的体态能带和理论计算结果非常吻合。

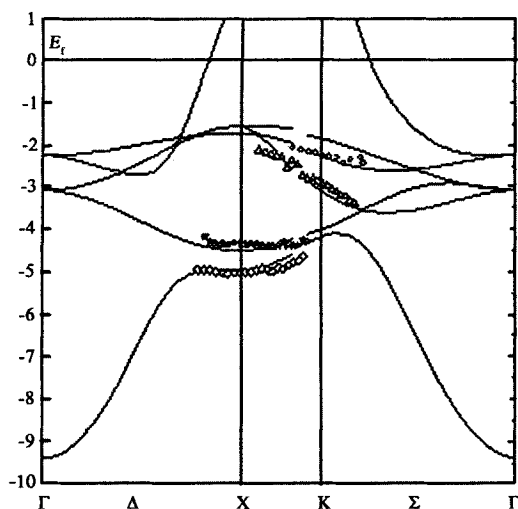


图 7 Cu 单晶的能带图。图中点为角分辨同步辐射光电子能谱的实验结果，曲线为利用基于密度泛函理论的线性级加平面波方法计算的结果

Fig. 7 The band structure of the Cu crystal. The points are the data from the ARPES and the lines indicate the theoretical results calculated by LAPW method

4 结论

利用光电二极管测试了光束线的光通量，得到了光束线单色器三块不同光栅的通量和光栅响应曲线。利用二次谐波标定了光束线高能部分的光子能量，利用 Au 的 Fermi 边标定其低能部分，并估算了分辨率，其结果与在光束线调试阶段用气体电离室标定的结果一致。最后对实验站能量分析器进行准直并且用 Cu 单晶样品进行了同步辐射角分辨光电子能谱实验。角分辨实验结果与理论计算和其他文献报道的结果吻合，表明整个系统基本达到设计指标，能够满足用户在表面站开展同步辐射角分辨光电子能谱的实验需要。

参考文献

- 1 Melpignano P, Fonzo S, Di Bianco A, *et al.* Rev Sci Instrum, 1995, **66**(2): 2125—2132
- 2 YU X J, Wang Q P, LU L J, *et al.* Nucl Instr Meth A, 2001, **467-468**: 597—601
- 3 <http://www.ird-inc.com/axuvope.html>
- 4 Saitoh Y, Kimura H, Suzuki Y, *et al.* Nucl Instr Meth A, 2001, **467-468**: 553—560
- 5 Hufner S. Photoelectron spectroscopy principles and applications, Second Edition, Springer 1996. 20—45
- 6 <http://www.webelements.com/webelements/elements/text/Au/bind.html>
- 7 Coutyhs R. Solid State Commun, 1981, **40**: 529—535
- 8 Dietz E, Eastman D E. Phys Rev Lett, 1978, **41**:

- 1674—1677 Physics Publishing Division, 1984.106—107
- 9 Thiry P, Chandesris D, Le Cante J, *et al.* Phys Rev Lett, 1979, **43**: 82—85 11 Singh D, Plane waves, pseudopotentials and the LAPW method. New York: Kluwer, 1994. 35—50
- 10 Courths R, Hufner S. Photoemission experiments on copper. Holland: Elsevier Science, B.V. North-Holland 12 Blaha P, Schwarz K, Luitz J. Comput Phys Commun, 1990, **59**: 399—406

Commissioning of beamline and ARPES experiment for the surface physics station at NSRL

ZOU Chongwen SUN Bai WANG Guodong ZHANG Wenhua
XU Pengshou XU Faqiang PAN Haibin

(National Synchrotron Radiation Laboratory, University of Science and Technology of China, Hefei 230029, China)

Abstract The determination of flux, the calibration of photon energy and the angle-resolved photoemission experiment were reported in this paper. During the process of commissioning of the station the photon flux was measured by photo-electronic diode (IRD AXUV-100) and the response curves for three different gratings were obtained. Photon energies of the whole range were calibrated using the second harmonic for high energies and the fermi edge of gold for low energies. And the resolution of the system was also calculated. At last the alignment of the electron detector was performed by the synchrotron radiation and laser beam and the ARPES for copper crystal was obtained to test the whole system. The results show that the surface station in the NSRL can satisfy the users for their ARPES experiments.

Key words Beamline, Synchrotron radiation, Photon flux, Second harmonic, Energy dispersion

CLC O434.12