

仪器与测量

基于干式制冷的低温扫描探针显微镜研究进展*

黄远志¹⁾ 杨传浩²⁾ 何颂平¹⁾ 马瑞松^{1)†} 郇庆^{1)‡}

1) (中国科学院物理研究所, 纳米物理与器件实验室, 北京 100190)

2) (中科艾科米(北京)科技有限公司, 北京 101407)

(2024 年 9 月 28 日收到; 2024 年 10 月 19 日收到修改稿)

21 世纪以来, 扫描探针显微镜 (scanning probe microscope, SPM) 在微纳尺度形貌表征、物性测量及微纳加工等领域发挥着越来越重要的作用. 为了使扫描探针显微镜获得更稳定的运行环境、更高的能量分辨率, 人们研发了具备超高真空 (ultra high vacuum, UHV) 和低温 (low temperature, LT) 环境的 SPM 系统 (UHV-LT-SPM). 目前, 大多数的 UHV-LT-SPM 系统通过向连续流式低温恒温器或低温杜瓦中输送液态氦-4 (^4He), 使 SPM 的温度达到约 4.2 K. 然而由于 ^4He 元素在自然界中含量低且因需求日益增长, 导致液氦价格急剧飙升, 严重影响到了 ^4He 相关低温设备的正常运行. 为应对上述问题, 干式制冷技术成为新一代低温技术的发展方向. 在此背景下, 将干式制冷技术与扫描探针显微镜相结合, 搭建干式低温扫描探针显微镜, 成为了目前扫描探针仪器领域的研究重点之一. 本文主要从扫描探针显微镜系统设计、降温设计、减振方法以及其设备性能等方面, 介绍目前已经报道的几种干式 LT-SPM 系统. 最后总结了干式 LT-SPM 系统目前所遇见的问题和挑战, 探讨了该技术未来的发展方向.

关键词: 干式制冷, 低温, 扫描探针显微镜, 振动**PACS:** 87.61.Ff, 07.20.Mc, 07.79.-v, 07.10.Fq**DOI:** 10.7498/aps.73.20241367**CSTR:** 32037.14.aps.73.20241367

1 引言

扫描探针显微镜 (scanning probe microscope, SPM) 是在扫描隧道显微镜 (scanning tunneling microscope, STM) 的基础上发展起来的一类新型探针显微镜的总称, 涵盖原子力显微镜、静电力显微镜、磁力显微镜等多种显微设备. 这些显微镜以探针为探测器, 通过精确控制探针的位置, 在样品表面进行逐点扫描, 获取表面的局域信号用于显微成像^[1], 例如隧道电流、原子力等, 并可分析样品表面的局域物性^[2].

与其他表面分析技术相比, SPM 具有诸多优势, 不仅可以进行表面物理量的测量, 从而得到高分辨率的样品表面成像, 还能作为一种新型的纳米操作工具, 实现纳米尺度上的物质改性、重组、再造^[2]. 为了进一步扩展 SPM 的功能以便获得更丰富的信息, 可以将光场、磁场、射频场等与 SPM 进行耦合, 用来研究针尖增强拉曼光谱^[3]、电致荧光^[4]、电子自旋共振、材料的磁性调控等^[5,6].

相较于室温的 SPM 系统, 工作在低温环境下的 SPM 系统更有优势^[7]. 低温环境能够提高 SPM 的能量分辨率、减少热漂移、降低噪声、减弱压电滞后/蠕变效应^[8]. 目前, 主流的低温 SPM 系统采

* 国家自然科学基金 (批准号: T2125014, 11927808, 12004417) 和中国科学院关键技术研发团队项目 (批准号: GJJSTD20200005) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: mars@iphy.ac.cn

‡ 通信作者. E-mail: huanq@iphy.ac.cn

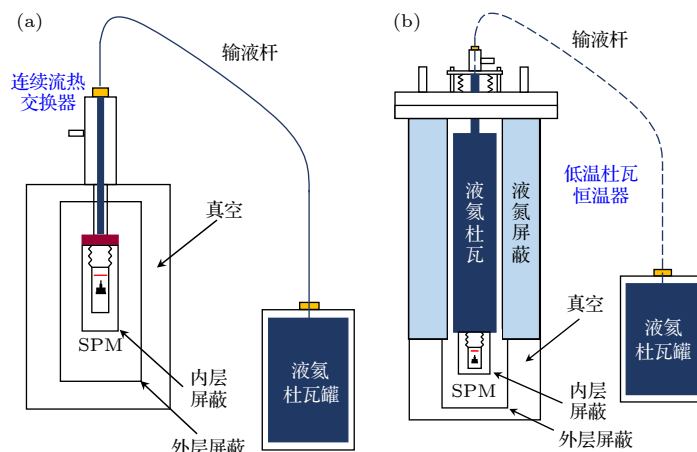


图 1 主流低温 SPM 设备所采用的降温方式 (a) 基于连续流式低温恒温器的 SPM 设备; (b) 基于低温杜瓦恒温器的 SPM 设备
Fig. 1. Cooling methods used in mainstream low temperature SPM equipment: (a) SPM system based on a continuous flow heat exchanger; (b) SPM system based on a low-temperature Dewar cryostat.

用连续流恒温器^[9,10]或低温杜瓦恒温器^[11–13]进行制冷, 利用液氮- ^4He 作为制冷工质, 可以达到约 4 K 的基础温度, 如图 1 所示. 连续流恒温器在降温 and 维持低温的过程中, 需要利用输液杆向连续流恒温器中不断输送液氮. 而常见的低温杜瓦通常包括一个内桶和外桶, 通过向内桶注入液氮, 即可维持 4 K 低温环境. 外桶的作用除保护内桶体外, 还与内桶形成真空夹层从而隔热. 在此基础上, 内外桶之间增加额外的低温层 (通常灌入液氮) 可有效延长低温杜瓦的保温时间. 与低温杜瓦方案相比, 前者体积较小、降温速度快、安装的位置选择多, 但比低温杜瓦的方式消耗更多液氮. 因此, 大多数低温扫描探针显微镜 (low temperature SPM, LT-SPM) 系统采用低温杜瓦降温的方法. 实现更低基础温度则需要在液氮预冷的前提下, 利用液氮- ^3He (^4He 的同位素) 制冷^[14]或 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 稀释制冷方案^[15,16], 使 SPM 系统的温度降至亚 K 以及 mK 区间.

上述低温仪器在维持低温或降温过程中严重依赖液氮, 而 ^4He 在地壳中含量较低, 且因需求量增大且不可再生导致氮的价格急剧升高, 影响到了 ^4He 低温设备的使用. 为应对 ^4He 资源短缺、价格高等问题, 干式制冷技术成为新一代低温技术的发展方向. 干式 (dry) 制冷是一种不依赖液态冷却剂 (如液氮) 的制冷技术. 其工作原理是通过特殊的制冷闭循环 (closed-cycle) 方式, 将气体 (如氦气) 压缩并膨胀, 从而实现热量的去除和温度的降低. 干式制冷系统的另一种叫法是 “cryogen-free” 系统,

国内将其翻译成 “无液氮”, 其并不意味着在操作过程中不需要使用液态氮作为冷却介质, 而指的是无需额外添加液氮. 相比传统液氮系统, 其维护成本较低且更便捷. 基于干式制冷技术的商业化 SPM 系统常采用 GM (Gifford-McMahon) 制冷机^[17,18]或脉冲管 (pulse tube, PT) 制冷机^[14], 将系统冷却至约 4 K 或更低的温度^[15]. 然而, SPM 系统通常需要将隧道结处的振动控制在 pm 量级, 干式制冷机产生的振动 (μm 级别) 会严重影响 SPM 系统的分辨率^[14,17,18]. 所以如何在尽可能多的利用制冷机所产生冷量的前提下, 降低制冷机振动对 SPM 系统所产生的影响, 成为了当前干式 SPM 仪器研制主要的方向.

本文着重介绍了基于 ^4He 制冷的干式低温 SPM (Dry-LT-SPM) 系统的研究进展, 主要从 SPM 系统设计、降温设计、减振方法以及其设备性能等方面介绍目前已经报道的几种 Dry-LT-SPM. 总结了 Dry-LT-SPM 系统研发至今所遇见的问题和挑战以及该技术未来的发展方向.

2 ^4He 制冷的干式扫描探针显微镜

2.1 第 1 台干式低温扫描探针显微镜

2014 年, Hackley 等^[17]研制了世界上第 1 套 Dry-LT-STM 系统. 该设备分为干式制冷部分和 LT-STM 系统部分. 干式制冷系统主要由 GM 制冷机、橡胶波纹管和水冷压缩机组成, 如图 2 所示. GM 制冷机安装在刚性支架上, 并通过橡胶波纹

管和减振接口与 LT-STM 系统相连; 刚性支架与 LT-STM 系统并排支撑在地上, 两者并不产生刚性接触. ^4He 气瓶通过橡胶波纹管上的氦气接口与橡胶波纹管相连, 在橡胶波纹管内充满氦气, 并通过控制减压阀来保持波纹管内气压稳定.

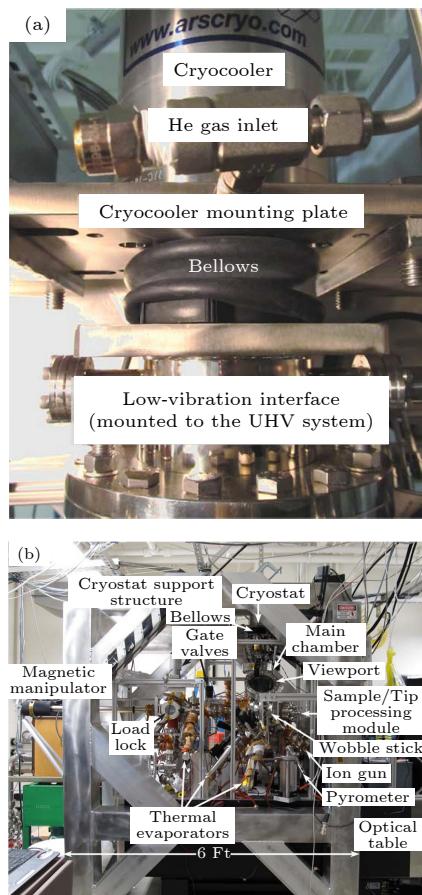


图 2 干式制冷部分实物图^[17] (a) GM 机与 SPM 部分的连接部分照片, 该方案采用橡胶波纹管连接制冷机和 STM 上方的二级热交换器; (b) LT-STM 系统部分系统实物图, 低温恒温器安装在 LT-STM 系统上方的刚性支架上, 刚性支架与 LT-STM 系统没有刚性接触

Fig. 2. Photograph of Dry refrigeration^[17]: (a) Photo of the connection part between the GM cryocooler cold head and the SPM part, this solution uses rubber bellows to connect the refrigerator and cold finger above the STM; (b) photo of the LT-STM system, the cryostat is mounted on a rigid support above the LT-STM system, the rigid support has no rigid contact with the LT-STM system.

该 LT-STM 系统采用干式制冷系统实现低温. GM 制冷机冷头的一级和二级冷台所产生的冷量首先传递给橡胶波纹管中的氦气, 然后氦气将冷量分别传递给低振动接口的一级和二级热交换器, 并通过铜辫子将冷量进一步传递给 STM 扫描探头, 以获得低温环境. 为了达到尽可能低的温度, 该设备采用了两层屏蔽设计. 这两层屏蔽罩都采用了镀

金的铜罩, 并固定在低振动接口的两级热交换器上. 外层屏蔽罩固定在一级热交换器上, 温度大约为 25—35 K; 内层屏蔽罩固定在二级热交换器上 (二级热交换器亦称“冷指”, 图 3(b) 中的 cold finger), 温度大约为 15 K. 该系统需要大约 12 h 将 STM 从室温冷却至 16 K, 并且能够长时间保持该温度.

图 3 展示了该 Dry-LT-STM 系统部分的设计图. Hackley 等^[17] 选择了体积较小、抗振能力较高的 Pan 式扫描探头, 并通过弹簧进行悬挂, 弹簧的上端则固定在二级热交换器上. 悬挂的 Pan 式扫描探头固有频率约为 1.7 Hz, 低于闭循环制冷部分的固有频率, 从而避免了与闭循环制冷部分的振动噪音耦合.

通过将 GM 制冷机与 LT-STM 系统分别固定在各自独立的刚性支架上 (两者之间通过橡胶波纹管进行柔性连接), 制冷机产生的冷量能不断地通过氦气传递给 LT-STM 系统. 虽然这种设计并不能完全消除振动, 但是制冷机传输到二级热交换器端的残余振动噪声在 5 nm 以内. 相对于传统的干式制冷方式, 机械噪声水平下降了 4 个数量级, 扫描探针处 Z 方向振动水平控制在 1.5 pm 左右. 由此, Hackley 等^[17] 研发的 Dry-LT-STM 系统能够对 Au(111), NaCl(100) 表面实现原子级别分辨率的成像, 如图 4 所示. 该干式制冷扫描隧道显微镜在成像性能上与现有高性能湿式低温 STM 系统相当, 并有效解决湿式系统液氦依赖的问题, 延长了 STM 系统在低温环境的工作时间.

2021 年, Chaudhary 等^[14] 采用了与前述相同的制冷方案, 他们采用 RHK Technology 公司 (以下简称 RHK 公司) 的干式扫描探针显微镜部分, 并将扫描探头放置于干式超导磁体的室温孔处. 通过橡胶波纹管, LT-STM 部分与干式制冷机连接, 最终实现最低 13 K 的低温和 5-1-1 T 的矢量磁场. 该设备在设定电流 0.1 nA, 偏压 1 V 条件下, 隧道结处实现了约 $1.5 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ 的噪音水平. 得益于干式超导磁体, 该设备亦能完成磁性材料内部电子密度变化和各向异性的测量.

2.2 多级减振型干式低温扫描探针显微镜

2016 年, 在 Hackley 等^[17] 所研制 Dry-LT-STM 方案的基础上, Zhang 等^[18] 做了进一步改进, 其方案的示意图和系统实物分别如图 5 和图 6 所示.

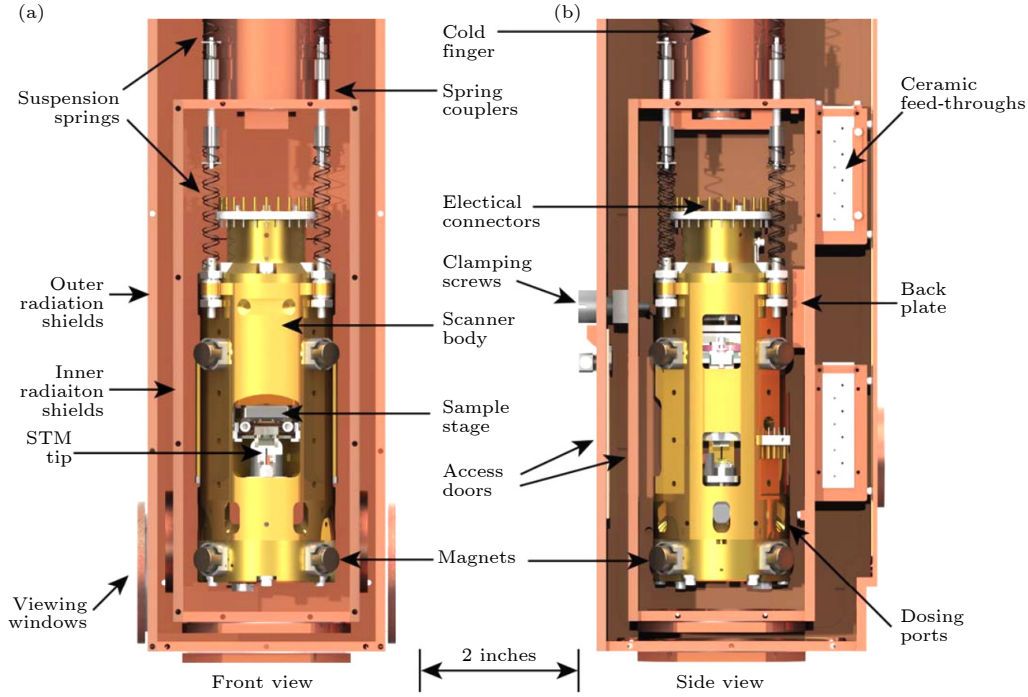


图 3 STM 扫描探头悬挂在屏蔽罩内^[17] (a) 带有屏蔽罩的 STM 前视图; (b) STM 的侧视图, 内部屏蔽罩直接与二级热交换器相连
Fig. 3. The STM scanner is suspended in the shielding^[17]: (a) Front view of STM with shield; (b) side view of the STM, with the internal shield directly connected to the cold finger.

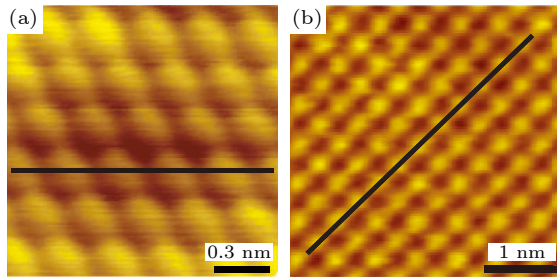


图 4 Dry-LT-STM 获得的若干图像^[17] (a) Au(111) 原子分辨; (b) NaCl(100) 原子分辨
Fig. 4. STM images obtained by the Dry-LT-STM^[17]: (a) Atomic resolution of Au(111); (b) atomic resolution of NaCl(100).

与 Hackley 等^[17]工作相同的是, Zhang 等^[18]亦将 GM 制冷机直接安装在 LT-STM 系统上, 并通过柔性波纹管进行连接. 但不同的是, Zhang 等^[18]采用多级波纹管进行减振, 选择将制冷机安装在第一级刚性支架上, 并通过橡胶波纹管与第二级刚性支架相连. 第二级刚性支架再通过第二级波纹管与 LT-STM 系统相连. 两个刚性支架分别固定在地面上并不与 LT-STM 系统其他部分产生直接接触, 进一步隔绝了 GM 制冷机的振动.

为了提高换热效率, Zhang 等^[18]同样采用了两级换热的方式, 并在制冷机的两级冷台处安装多

孔热交换器, 通过增大表面积的方式, 进一步提高氦气的热交换效率. 为了获得更低的基础温度, Zhang 等^[18]也选择采用两层屏蔽设计, 两层屏蔽罩均采用镀金的铜罩, 并分别固定在一级热交换器界面和二级热交换器界面 (图 5(b) 中的 1st stage interface 和 2nd stage interface) 上. 该 STM 系统大约可在 4 h 内将 STM 扫描探头从室温冷却至 14.3 K, 并长时间维持低温.

在干式系统运行过程中, 氦气不仅是热交换介质, 还在隔振中起到了重要作用. 氦气的压力大小不仅仅影响着热交换效率, 还影响着波纹管减振效果. 为了确保氦气在长期运行过程中始终维持其纯净状态并保持压力稳定, Zhang 等^[18]精心设计了一套氦气纯化系统和压力调节装置. 这套系统有效地解决了空气渗透所引起的制冷机结冰问题, 确保了 STM 系统能够长时间连续稳定地运行. 在 LT-STM 部分, Zhang 等^[18]使用 Besocke 型扫描探头, 并添加了光学窗口, 能够将外部光信号耦合到 STM 隧道结上, 如图 5 所示.

在设备性能方面, 该设备由于采用多级波纹管的减振方式, 实现了 Z 方向上 2 pm 的振动水平, 并获得了石墨的原子图像和石墨样品的 dI/dV 谱. 由于系统的噪音水平较低, Zhang 等^[18]能够进

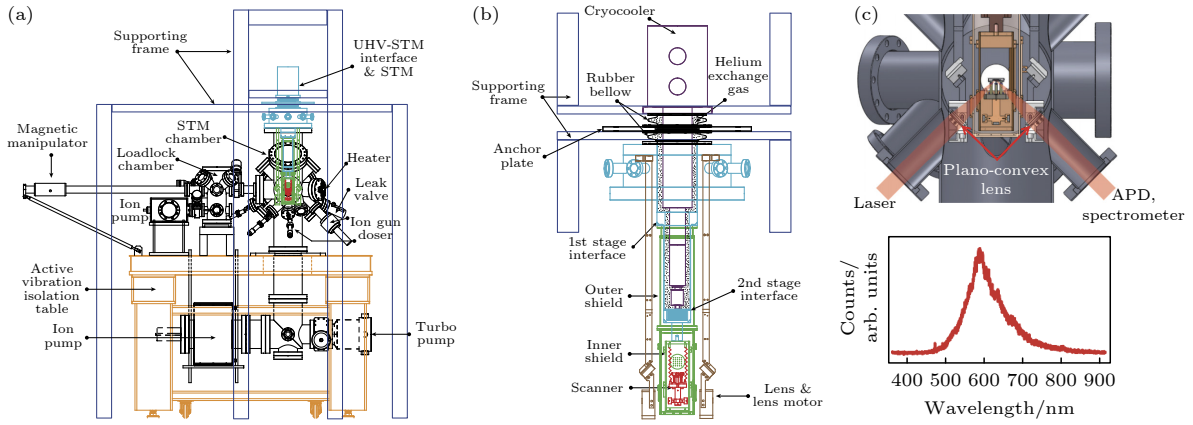


图 5 (a) Dry-LT-STM 系统示意图^[18], 制冷机 (蓝色) 安装在刚性支架上, LT-STM 系统放在含有气腿 (橙色) 的实验台上, 两者通过橡胶波纹管与 LT-STM 系统连接; (b) 闭循环制冷部分示意图, 氦气在制冷机 (紫色) 和热交换器界面 (青色) 之间, 氦气由两级橡胶管 (黑色) 密封; (c) STM 扫描探头示意图, 激光通过两种透镜聚焦在 STM 上, 并通过雪崩光电二极管或光谱仪从 STM 收集光信号

Fig. 5. (a) Schematic diagram of the Dry-LT-STM system^[18], the cryocooler (blue) is mounted on a rigid frame and the LT-STM system is placed on the vibration isolation table containing the gas legs (orange), both of which are connected to the LT-STM system via rubber bellows; (b) schematic diagram of the closed-cycle refrigeration section, helium gas is filled between the cryocooler (purple) and stage interfaces (cyan), the helium is sealed by two-stage rubber bellow (black); (c) schematic of the STM scanning head. The laser is focused on the STM by two lenses and the optical signal is collected from the STM by means of a APD or a spectrometer.

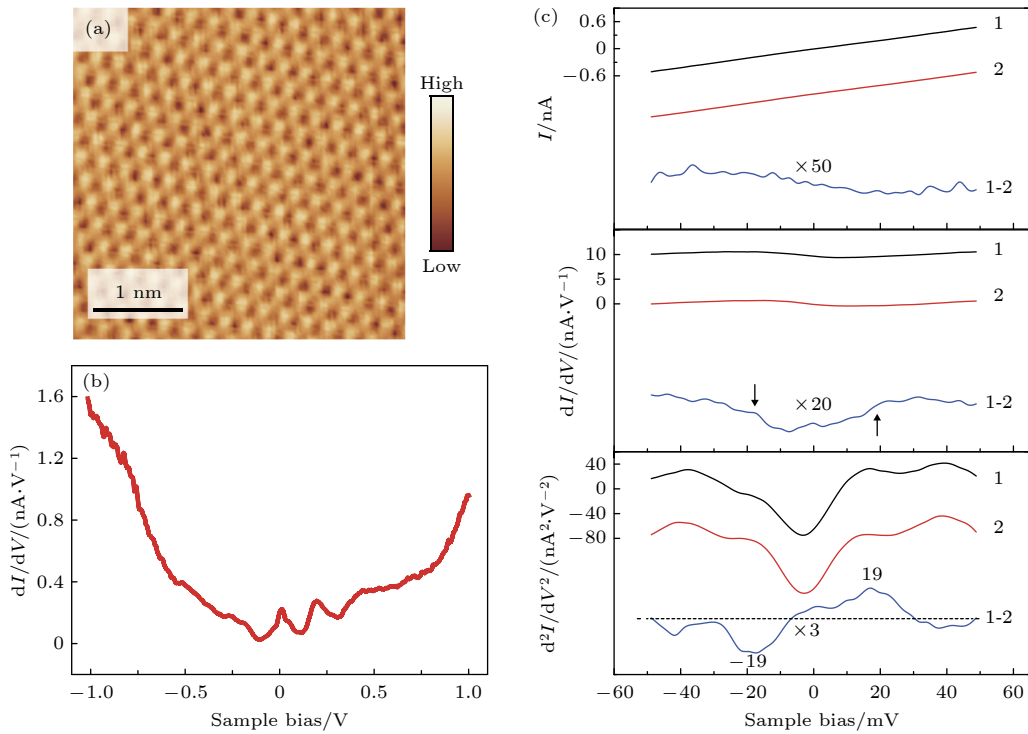


图 6 (a) 石墨表面的原子分辨图像, 样品温度为 16.8 K; (b) 石墨表面的 dI/dV 谱; (c) CO 分子的 I/V 谱, dI/dV 谱和 IETS 谱^[18]

Fig. 6. (a) Atomic-resolution image of graphite surface, the sample temperature is 16.8 K; (b) dI/dV spectrum of graphite surface; (c) I/V spectrum, dI/dV spectrum and IETS spectrum of CO molecules^[18].

一步测量 CO 分子的非弹性电子隧道谱 (inelastic electron tunneling spectroscopy, IETS, d^2I/dV^2), 如图 6 所示.

2022 年, 日本 UNISOKU Co., Ltd. 公司 (以下简称 UNISOKU 公司) 借鉴相似的思路, 提出了一

种 LT-SPM 系统方案, 如图 7 所示^[19]. UNISOKU 公司将 GM 制冷机更换成 PT 制冷机. PT 制冷机相对于 GM 制冷机, 在同样制冷功率下, 前者振动更小.

与之前所提到干式 SPM 系统构型^[18]相同的是, UNISOKU 公司也选择将制冷机直接安装在

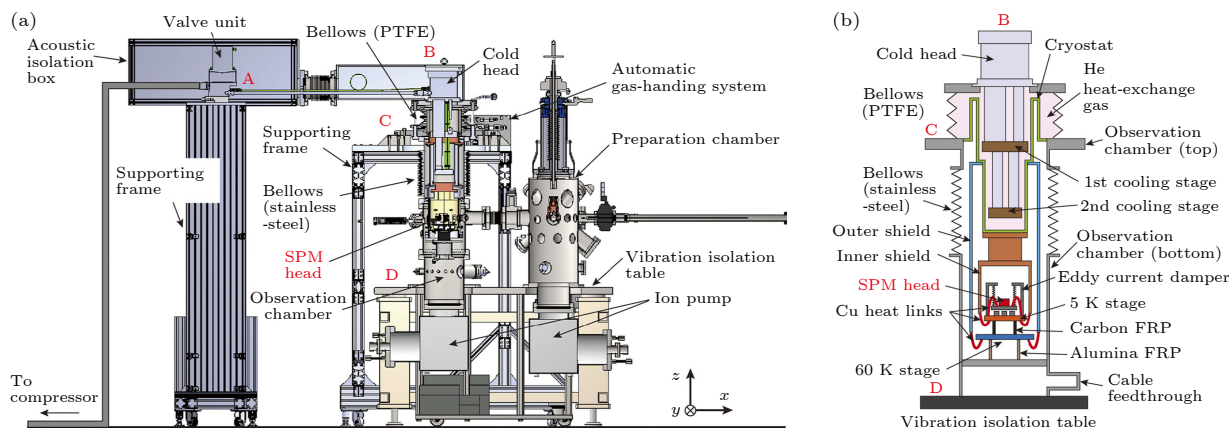


图 7 (a) 日本 UNISOKU 公司的 LT-STM 系统示意图; (b) PT 制冷机和 SPM 扫描探头的示意图, PT 制冷机两级冷台、PTFE 波纹管 and 低温恒温器围成的区域充满氦气, 扫描腔则保持在超高真空状态^[19]

Fig. 7. (a) Schematic diagram of the LT-STM system of Japanese UNISOKU company; (b) schematic of PT refrigerator (cryocooler) and SPM scanner, the area enclosed by the cooling stages, PTFE bellows and cryostat is filled with helium, while the SPM chamber is maintained in ultra-high vacuum condition^[19].

LT-SPM 系统上, 并通过波纹管进行连接. UNISOKU 公司同样采用两级波纹管的多级减振方式. 不同的是, 在靠近 LT-SPM 的部分采用不锈钢波纹管, 而在制冷机部分则为聚四氟乙烯 (polytetrafluoroethylene, PTFE) 波纹管. 不锈钢波纹管和 PTFE 波纹管相对橡胶波纹管, 具有更小的漏气率和更长的使用寿命.

在 LT-SPM 部分, UNISOKU 公司还采纳了双层屏蔽设计策略, 内层屏蔽采用镀金的铜罩, 固定在二级热交换器处 (图 7(b) 中间棕色工字型部分), 底部连接 5 K 冷盘 (图 7(b) 的 5 K stage); 而外层屏蔽则选择了纯度为 99.7% 的铝材, 固定在一级热交换器处 (图 7(b) 顶部绿色部分), 底部连接 60 K 冷盘 (图 7(b) 的 60 K stage). 5 K 冷盘和 60 K 冷盘进一步通过铜辫子与内外屏蔽罩相接, 用以加强导热效果. 该公司摒弃了传统的二级热交换器悬挂扫描探头的布局, 转而采用在二级热交换器下方的 5 K 冷盘上固定 4 根支柱, 以此悬挂扫描探头, 并通过铜辫子连接扫描探头与 5 K 冷盘. 5 K 冷盘能够通过增强型纤维塑料与 60 K 冷盘相连, 并固定在腔体上. 降温时, PT 制冷机所产生的冷量首先在冷头下方的一级和二级冷台 (分别对应图 7(b) 的 cold head, 1st 和 2nd cooling stages) 处传递给一级和二级热交换器, 然后由内层屏蔽罩通过铜辫子传递至 5 K 冷盘, 并最终通过 5 K 冷盘处的铜辫子将冷量传输至扫描探头. 该 LT-SPM 系统通过其双级换热系统能够在约 9 h 内将 SPM 扫描探头温度从室温降至 5 K, 并能在该温度下长

期稳定运行. UNISOKU 公司研制了高度自动化的气体处理系统, 能够自动调节氦气的压强, 以便冷却一、二级热交换器至所需低温并稳定维持该温度.

为了实现更高的共振频率和更大的扫描范围, UNISOKU 公司所采用的扫描探头具有独特的设计. 扫描探头在其顶端装配了一个约 1.8 g 的针尖支架进行扫描, 并创新性地采用双重压电扫描管设计, 其中内外管同时负责 XY 轴的定位, 而外管还需控制 Z 轴的反馈. 对于该系统, 将电流设定为 0.1 nA 且偏压为 -0.1 V 条件下, 其隧道电流的噪音水平皆小于 1.5 pA/ $\sqrt{\text{Hz}}$. 在设备功能方面, 该设备具有高性能低温 SPM 系统的功能, 并兼容 STM 和 AFM 两种模式. UNISOKU 公司利用该设备测量获得了 Au(111) 表面的原子分辨, 以及用 AFM 模式获得了 NaCl(100) 表面的原子分辨.

2.3 多级制冷型干式扫描探针显微镜

2023 年, Huang 等^[20] 基于已有干式 SPM 设备构型, 提出了改进的 Dry-LT-SPM 系统, 最低获得 1.4 K 的基础温度, 如图 8(a) 所示. 他们的方案与 UNISOKU 公司类似, 也选择了振动水平更低的 PT 制冷方案. PT 制冷机被安装在 LT-SPM 系统上, 并通过波纹管进行连接, 采用两级不锈钢波纹管的多级减振方式. 不锈钢波纹管相较 PTFE 波纹管, 具有更好的减振效果和更长的使用寿命, 并且适用于高温烘烤, 更容易到达超高真空. 两级不锈钢波纹管通过两个刚性支架固定在地面上, 并不与 LT-SPM 系统其他部分产生直接接触.

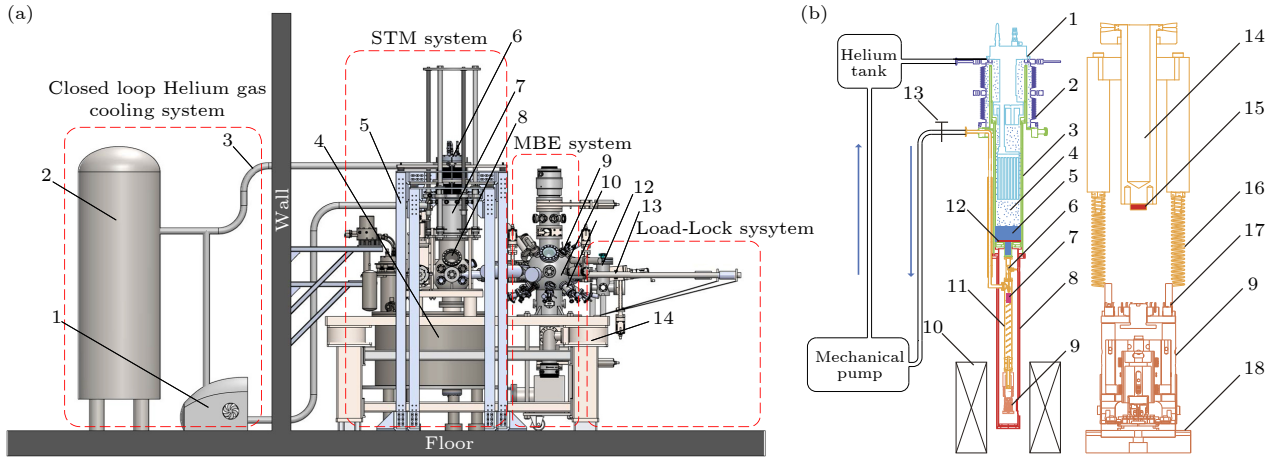


图 8 (a) 搭建 Dry-LT-SPM 设备整体系统设计示意图^[20]. 1-涡旋泵, 2-氦气罐, 3-氦气管道, 4-干式制冷超导磁体, 5-刚性支架, 6-PT 制冷机, 7-低温恒温器, 8-STM 腔体, 9-氩离子源, 10-MBE 腔体, 11-MBE 蒸发源, 12-快速进样腔, 13-传输杆, 14-主动减振平台. (b) 制冷系统(左)和扫描探头(右)示意图, 1-PT 制冷机, 2-金属焊接波纹管, 3-低温恒温器接口, 4-氦气, 5-液氦, 6-针阀, 7-AFM 的前置放大器, 8-屏蔽罩, 9-扫描探头, 10-干式制冷超导磁体, 11-毛细管, 12-加热器-1, 13-排气阀, 14-1 K 池, 15-加热器-2, 16-弹簧, 17-信号线插口, 18-磁阻尼铜板

Fig. 8. (a) Schematic diagram of the overall system design of the dry SPM equipment^[20]. 1-scroll pump, 2-helium tank, 3-helium pipeline, 4-cryogen-free superconducting magnet, 5-supporting frame, 6-PT refrigerator, 7-cryostat, 8-STM chamber, 9-argon ion beam bombardment, 10-MBE chamber, 11-MBE evaporation sources, 12-load-lock chamber, 13-transfer rod, 14-active air damping. (b) Schematic diagram of the refrigeration system (left) and scanner (right), 1-PT cryocooler, 2-vibration-isolated bellows, 3-cryostat interface, 4-helium gas, 5-LHe, 6-needle valve, 7-the preamplifier of AFM, 8-thermal shield, 9-scanning head, 10-superconducting magnet, 11-pumping pipe, 12-heater-1, 13-exhaust valve, 14-1 K-pot, 15-heater-2, 16-spring, 17-socket, 18-copper plate for eddy current damping.

SPM 腔体主要分为上下两部分, 上部 SPM 腔体固定在一个主动减振平台上, 下部 SPM 腔体由钛金属制成, 放置于干式超导磁体的室温孔中心. 钛金属腔体可以减小对磁场分布的影响. 超导磁体的制冷机和超导线圈通过铜辫子连接, 用于热传导. 为了隔振, 超导磁体的制冷机也通过刚性支架固定, 并通过波纹管与超导磁体主体相连. 该磁体可以为 SPM 扫描探头提供约 9 T 的磁场.

Huang 等^[20] 同样采用了 Pan 式扫描探头设计. Pan 式扫描探头由 3 根 Be-Cu 弹簧悬挂在 1 K 池下方, 并通过两股铜辫子连接 1 K 池和 Pan 式扫描探头. 该 LT-SPM 系统可在大约 20 h, 将 SPM 扫描探头从室温冷却至 30 K, 然后开启针阀, SPM 扫描探头可在 5 min 内降温至 2 K, 并在 3 h 后稳定在 1.4 K, 并长时间维持该温度.

在降温设计方面, Huang 等^[20] 进一步改进了制冷方式, 该干式系统同样采用氦气作为换热介质, 通过 PT 制冷机将氦气液化, 聚集并储存在低温恒温器底部, 如图 8(b) 所示. 低温恒温器底部通过毛细管与 1 K 池相连, 液氦通过毛细管流到 1 K 池的流量可以通过针阀进行调节. 由于焦耳-汤姆孙效应, 流过针阀的液氦温度可进一步由 4.2 K 降

低至 1 K 左右, 给扫描探头降温后汽化变成氦气, 氦气再通过涡旋泵组被泵回制冷机处, 参与下一个循环. 该过程为完整的闭循环过程, 没有任何额外的氦气消耗.

相比于以上的多级减振型系统, 该系统增加了一级制冷系统, 并利用外部的涡旋泵循环氦气, 在实现 1.4 K 基础温度的同时可获得约 0.7 pm 的振动水平. 在设备功能方面, 该 SPM 设备也同时兼容 STM 和 AFM 两种模式, 由于磁场的存在, 该设备还支持磁交换力显微镜成像 (magnetic exchange force microscopy, MExFM). Huang 等^[20] 选择在 Ir(111) 表面沉积 Fe 原子, Fe 原子会形成两种方向相反的单层高三角形岛, 分别对应 FCC 和 HCP 超晶格的叠加. 图 9 展示了 HCP 岛 skyrmion 超晶格的自旋极化扫描隧道显微镜 (spin polarized scanning tunneling microscope, SP-STM) 和 MExFM 图像.

2.4 基于干式超导磁体的 SPM 系统

2019 年, Meng 等^[21] 提出了一种基于干式超导磁体的 STM 设计. 该团队选择利用振动更小的脉管制冷机给变温插件降温并将冷量传递给 STM 扫描探头从而获得低温, 如图 10 所示.

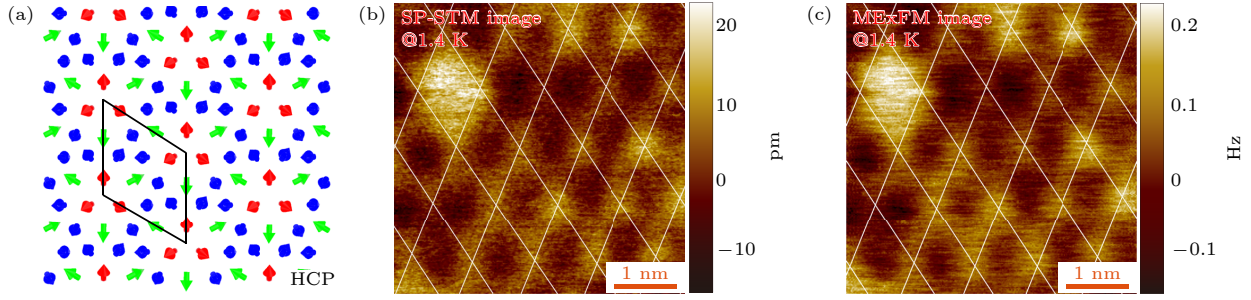

 图 9 Ir(111) 表面 Fe 原子所形成 HCP 岛 skyrmion 超晶格的 SP-STM 和 MExFM 图像^[20]

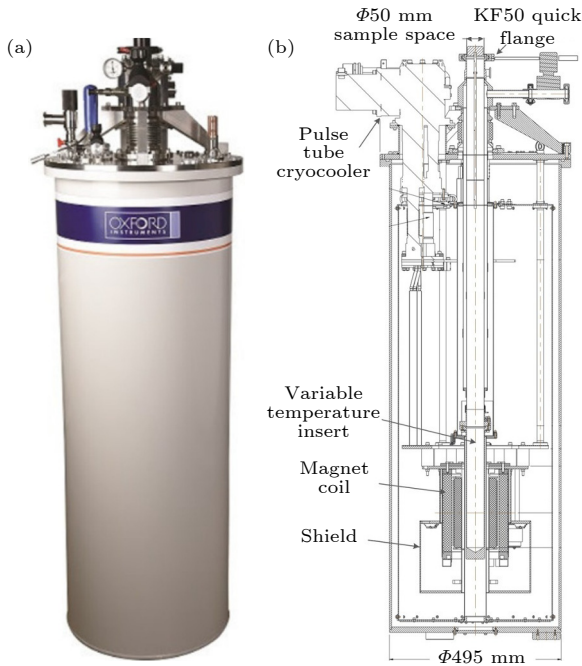
 Fig. 9. SP-STM and MExFM images of the HCP island skyrmion superlattice formed by Fe atoms on the Ir(111) surface^[20].

 图 10 搭建 Dry-LT-SPM 设备采用的 8 T 干式超导磁体结构及其横截面示意图^[21]

 Fig. 10. Structure and cross-sectional view of the 8 T dry superconducting magnet used in Dry-LT-SPM equipment^[21].

目前, 干式超导磁体大都采用 GM 制冷机或者 PT 制冷机给超导线圈降温, 从而使磁体线圈获得超导特性, 产生强大的磁场. 而现有的干式超导磁体因其直接与制冷机相接触, 振动较大, 人们大都认为在这种极端的条件下很难实现 STM 成像. Meng 等^[21]所设计的一种 STM 探头, 能在极端条件下依旧能达到原子级分辨率, 如图 11 所示, 探头部分主要由前放电路箱、波纹管接头、外径中心管、屏蔽板、配重棒、蓝宝石转接片、隔振弹簧和 STM 扫描探头组成. STM 扫描探头通过隔振弹簧悬挂在配重棒上, 位于 STM 探头的最下方. 通过将 STM 扫描探头悬挂在配重棒上能有效的降低 STM 扫描探头的共振频率, 提高了 STM 扫描探

头的隔振能力. 配重棒上方是 3 个由 304 不锈钢制成的屏蔽板, 每一块板都抛光两面, 以降低室温环境对低温下 STM 部分的影响.

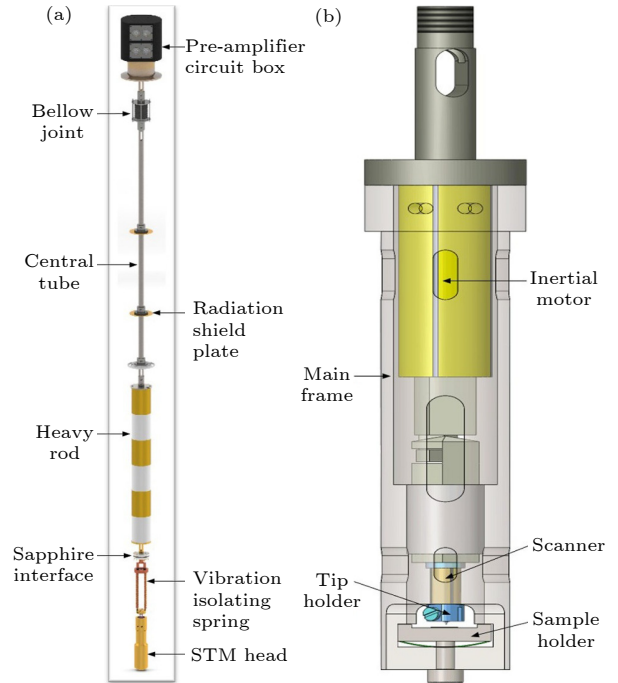
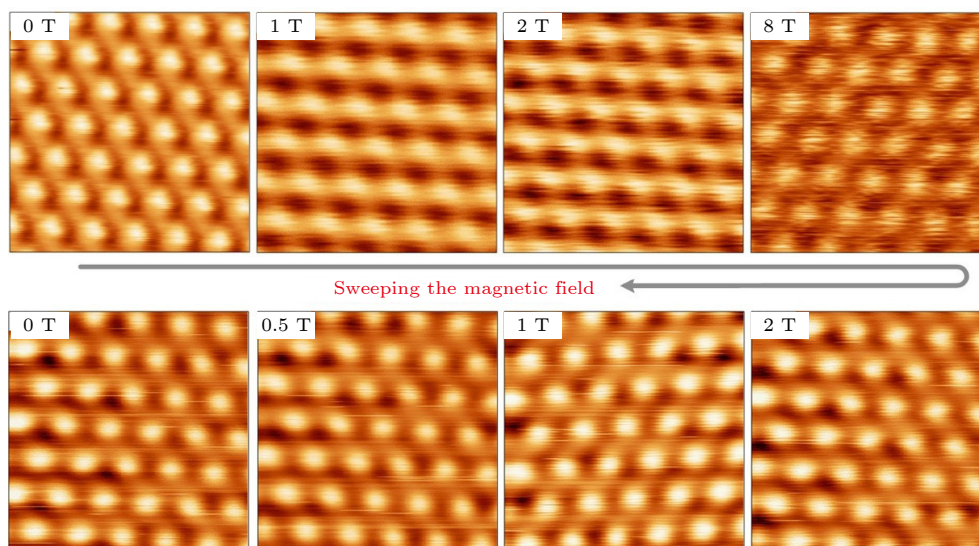

 图 11 基于干式超导磁体的 STM 结构设计图^[21] (a) STM 探头部分的构型图; (b) STM 扫描探头构型图

 Fig. 11. Cryogen-free STM design based on cryogen-free superconducting magnets^[21]: (a) Diagram of the STM probe configuration; (b) diagram of the STM scanner.

降温时, 将 STM 探头插入变温插件 (variable temperature insert, VTI) 内. 此时 STM 扫描探头恰好处于超导体的中心部分. 需要在样品腔内填充一定量的氦气, 为 STM 扫描探头提供低真空样品条件和氦气保护, 同时少量的氦气也能作为热交换气, 以保持扫描探头与 VTI 之间良好的热交换. 开启 PT 制冷机给 VTI 降温, 并通过氦气作为热交换气, 可以将实验样品从室温冷却到 1.6 K. 样品

图 12 NbSe₂ 的原子分辨和添加磁场后的图像^[21]Fig. 12. Atomic-resolution STM image of NbSe₂ with sweeping magnetic field^[21].

腔底部的外侧是由 PT 制冷机冷却的磁体超导线圈, 当 STM 探头插入样品空间时, STM 扫描探头恰好位于磁体线圈的中心区域, 能获得 0—9 T 的磁场。

该设备采用了诸多隔振方式, 获得了较好的振动水平, 在 0.2 V 偏压, 0.5 nA 的设定电流下, 峰值点处噪声在 $1.5 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ 左右. 然而由于该设计通过氦气作为热交换气在样品腔内直接导热, 对扫描探头上样品影响较大, 所受到约束较多. 图 12 展示了该系统获得的 NbSe₂ 的原子分辨和添加磁场后的图像。

2024 年, Coe 等^[22] 同样选择利用干式超导磁体给扫描探头进行降温. 相对于之前的方案, 该团队提出了很多改进方式, 首先选择将 LT-SPM 系统与干式超导磁体部分分开. LT-SPM 选择采用超高真空 (UHV) 插件的方式于超导线圈中心处. 其次, Coe 等^[22] 选择采用飞梭扫描探头 (可在腔体内进行传递). 飞梭扫描探头可以通过传样机构直接放置在 UHV 插件底端的飞梭插口处. UHV 插件的外部为高真空 (HV) 插件层, 其中含有少量氦气, 并通过 ISO 法兰密封. PT 制冷机安装在 HV 插件层附近, 并通过多级波纹管与 HV 插件层连接. 降温时, PT 制冷机带动 40 K 盘和 4 K 盘降温 (图 13(b) 中的 40 K stage 和 4 K stage), 从而冷却氦气. 氦气进一步将冷量带给 UHV 插件, 最终通过飞梭插口将冷量传递给飞梭扫描探头. 在 UHV 插件与 HV 插件层安装有无氧铜制散热鳍片 (copper thermal

fins) 辅助导热, 并在飞梭扫描探头上方安装有多层的屏蔽隔层, 如图 13(b) 所示^[22]. 该设备能够在 20 h 左右将飞梭扫描探头温度从室温降至 4.6 K.

由于扫描探头是直接放置在飞梭插口处, 并非采用传统的弹簧悬挂方式. 为达到较低的振动水平, Coe 等^[22] 选择将飞梭插口安装在焊接波纹管上, 并通过自主设计的负刚度减振器进行减振. 此外, 由于设备直接与干式超导磁体相连接, 该系统同样采用了多级焊接波纹管进行减振, 并且直接在腔体外部配备有磁阻尼辅助减振. 最终, 该设备实现了在 0.2 V 偏压, 0.2 nA 的设定电流下约 $1.2 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ 的噪声水平. 在功能上, 该系统配备有 5 T 的磁场, 并测量获得了 HOPG 表面的原子分辨, 在 5 T 磁场下 HOPG 表面的朗道能级, 如图 14 所示^[22].

2.5 远端液化型干式扫描探针显微镜

上述所提到的 Dry-LT-SPM 系统中, 研究者都将制冷机安装在 SPM 扫描探头附近, 可称之为近端制冷方案, 如图 15 所示. 近端安装制冷机的原因是由于离制冷机二级冷台越近, 热交换效率越高. 然而这种设计也存在着几个缺点.

1) 不耐烘烤. 超高真空是低温 SPM 设备的必备条件, 超高真空的获得需要将设备进行 150 °C 以上的长时间烘烤. 由于制冷机中具有稀土材料, 不耐受 60 °C 以上的高温. 因此现有方案在烘烤时需要将制冷机拆除或低温超长时间烘烤.

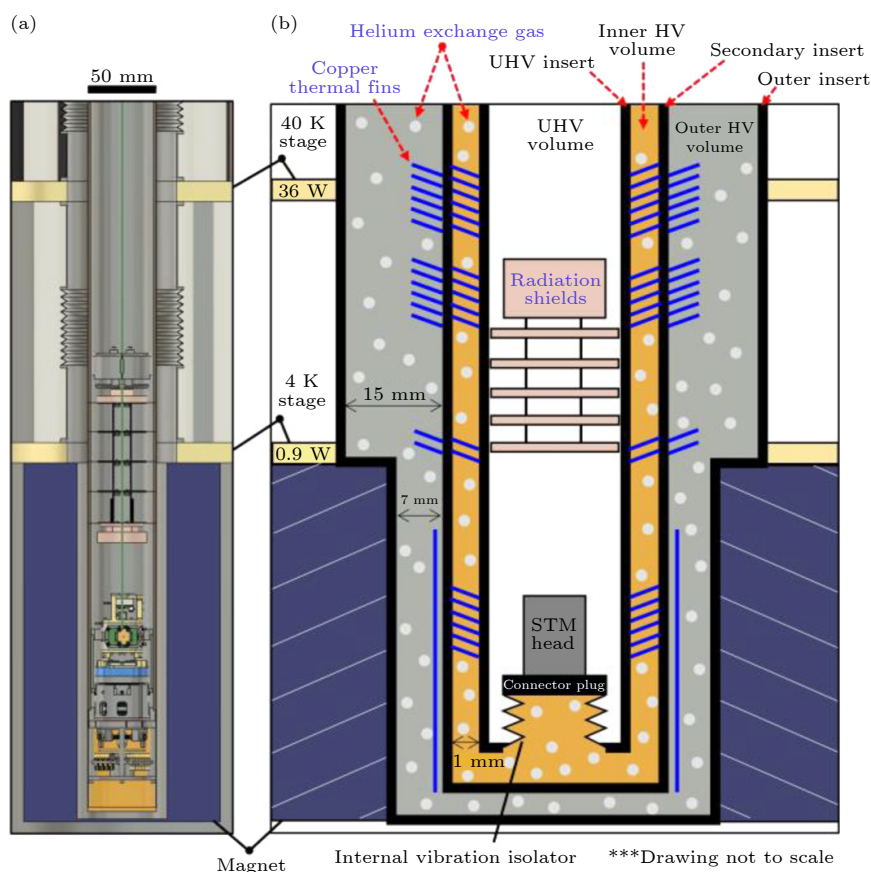


图 13 (a) 飞梭扫描探头与在 UHV 插件横截面; (b) UHV 插件横截面, 未按比例绘制^[22]

Fig. 13. (a) Shuttle-style STM head and UHV plug cross-section; (b) UHV plug cross-section, not to scale^[22].

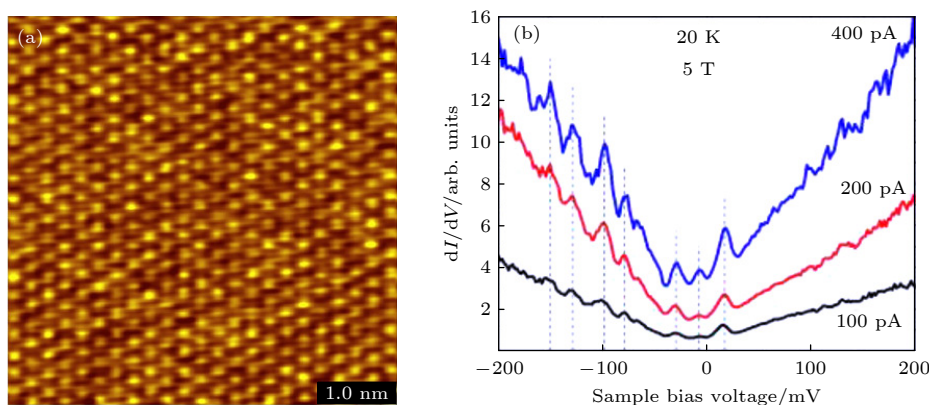


图 14 (a) 在 4.6 K 下, HOPG 表面的原子分辨; (b) 在 20 K, 5 T 的磁场下, HOPG 显示出朗道能级^[22]

Fig. 14. (a) Atomic resolution of the HOPG surface at 4.6 K; (b) Landau levels of HOPG at 20 K with 5 T magnetic field applied^[22].

2) 磁场敏感. 同样由于制冷机中存在稀土材料, 磁场的存在会降低制冷机的制冷性能, 因此将强磁场集成到现有近端方案中去难度较大^[15].

3) 安装角度受限. 由于制冷机的工作原理, 其安装角度只能局限在垂直向下的方向上, 这样会导致顶部空间被制冷机占据, 限制了 SPM 设备功能的扩展, 例如增加光学通路、设置光学显微镜等.

4) 橡胶波纹管透气结冰. 采用了橡胶波纹管减振的干式 SPM 虽然具有较好的减振效果, 但是容易导致空气和水汽进入氦气进行热交换的空间, 导致结冰, 需要定期清理, 影响设备运行.

5) 难以升级. 现有的近端液化是高度集成的方案, 很难将现有的基于液氮杜瓦的 SPM 设备升级成干式 SPM. 而且, 基于现有方案也无法进一步升级成获得亚 K 温区的系统.

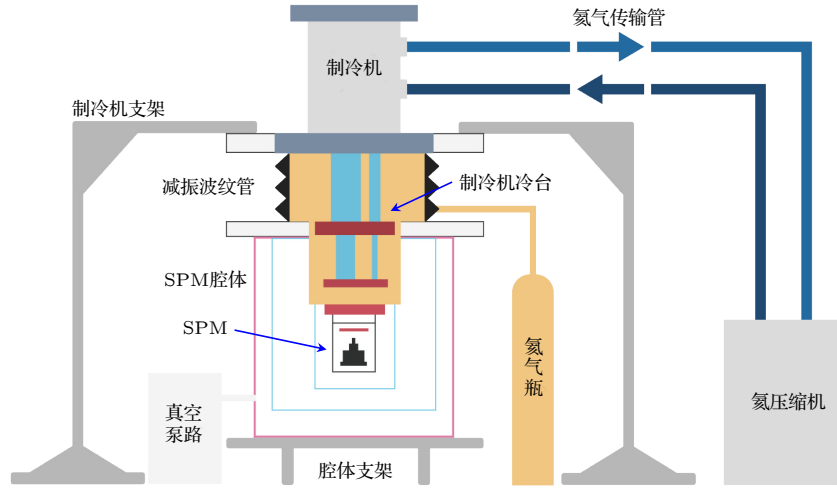
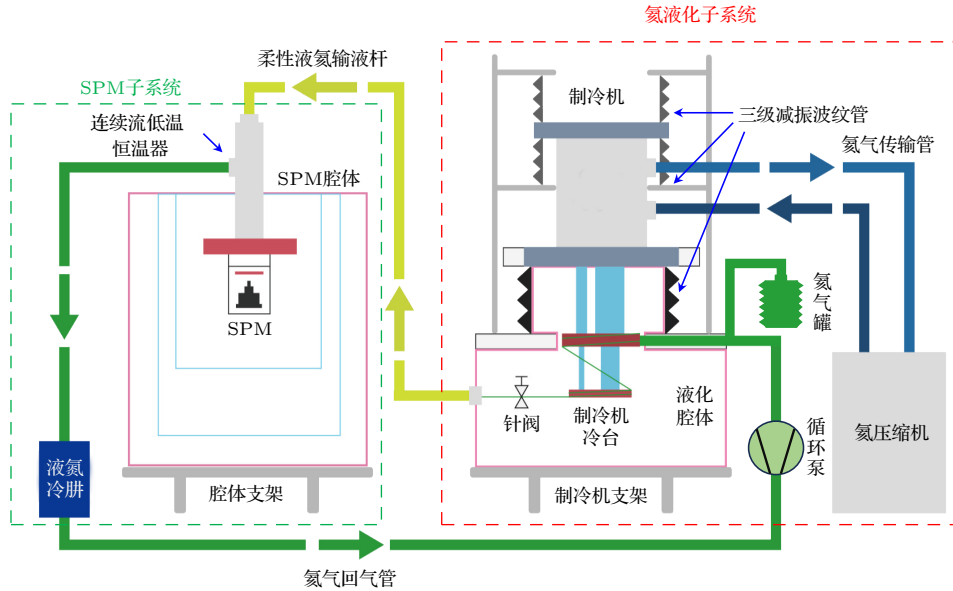


图 15 制冷机在 SPM 腔体顶部的 Dry-LT-STM 系统

Fig. 15. Dry-LT-STM system with refrigerator on top of SPM chamber.

图 16 制冷机与 SPM 腔体分离的 LT-STM 系统示意图^[23]Fig. 16. Schematic diagram of the LT-STM system with the dry refrigerator and SPM chamber separated^[23].

Ma 等^[23]提出了一种全新的干式技术,改变了现有 Dry-LT-SPM 近端安装制冷机的方式. 该团队选择将低频大幅振动的制冷机安装在远端的独立制冷腔体(图 16),并通过三级金属焊接波纹管将制冷机悬浮,依靠大气压进行平衡,减小制冷机运行时的振动对其他部件的影响^[21]. 参与热交换的氦气在液化腔体内与制冷机进行热交换后被液化,在通过节流阀时膨胀降温到 2 K 以下,成为超流氦(液氦可以没有任何阻碍通过任何孔和缝隙),并经由柔性液氮输液杆输送至 SPM 腔体处的连续流式低温恒温器,为 SPM 部分进行降温. 汽化后的氦通过氦气回气管在循环泵的作用下传输

回液化腔体,完成整个循环. 在氦气回气管路中,循环泵的出口安装有一个特制的不锈钢波纹管储气罐. 当气路中氦气液化导致气压减少时,储气罐会在大气压的作用下压缩,将气罐中的氦气补充到气路中从而保持气路压强始终维持在近 1 个大气压. 因此,即使循环气路中灌入了 10 L 氦气亦可完成制冷循环并维持气压稳定. 在循环过程中流出连续流式低温恒温器的氦气首先通过液氮冷阱纯化后再进入液化腔体,以防止气路堵塞,使得系统能够更长时间且更加稳定地运行.

Ma 等^[23]方案的核心是将氦的制冷部分和低温 SPM 部分拆分成相对独立的两个子系统,即氦

液化子系统和 SPM 子系统, 两者之间氦的流通由柔性液氮输液杆和氦气回路管承担, 可称之为远端液化方案。

基于远端液化方案的 Dry-LT-STM 系统的三维模型如图 17 所示^[23]。低温 SPM 子系统部分由两个腔体组成, 分别为表征腔和快速进样腔。该设

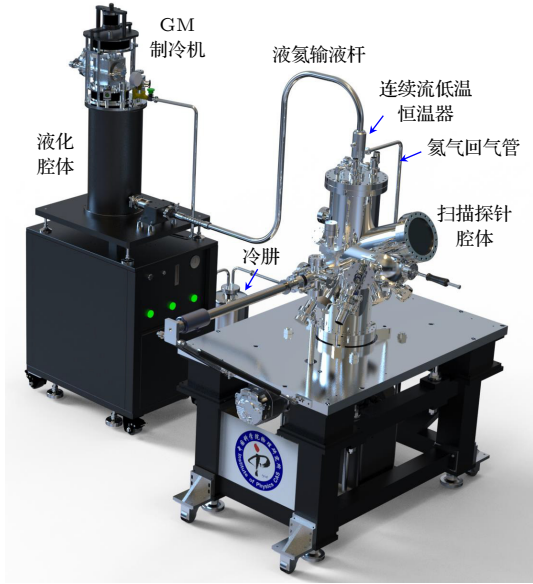


图 17 基于远端液化方案的 Dry-LT-STM 系统的三维模型^[23]

Fig. 17. Three-dimensional model of the cryogen-free LT-STM system based on the remote liquefaction scheme^[23].

备也采用了体积较小、抗振能力较高的 Pan 式扫描探头^[11]。Pan 式扫描探头由 3 根弹簧悬挂在冷指上, 工作状态时的自然频率为 1.89 Hz。Ma 等^[23]选择将连续流低温恒温器安装在 SPM 腔体的顶部法兰上。为扫描探头隔热的内、外屏蔽层分别与连续流低温恒温器的一级和二级热交换器紧密配合。内外级屏蔽罩顶部是镀金的铜板, 其余的热屏蔽罩为铝制且镀银。扫描探头安装在内屏蔽内, 多股螺旋状的铜辫子连接扫描探头和连续流低温恒温器冷指。实验结果表明, 当扫描探头被冷却到约 20 K 时, 通过调节针阀的节流效果进行控制, SPM 的样品处温度可进一步下降至 3 K, 约一天时间冷却后最低可达到约 2.8 K 的温度。

在减振设计上, 该系统一方面用 3 根弹簧将扫描探头悬挂起来, 并结合磁阻尼进行共同减振; 另一方面由于采用远端液化的方案, GM 制冷机与 LT-SPM 系统相对隔离, 进一步减少了 GM 制冷机振动带来的影响。此外, 该系统还采用主动减振气腿支撑起 LT-SPM 系统, 隔绝地面振动的影响。最后, 以超流的形式传输液氮也是减小制冷机振动传输的关键技术点。通过采用上述的减振措施, 系统最终实现了原子级别的分辨率, 获得了与基于低温杜瓦的 SPM 系统相媲美的噪音水平 ($< 1 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$)。图 18 展示了基于远端液化方案的

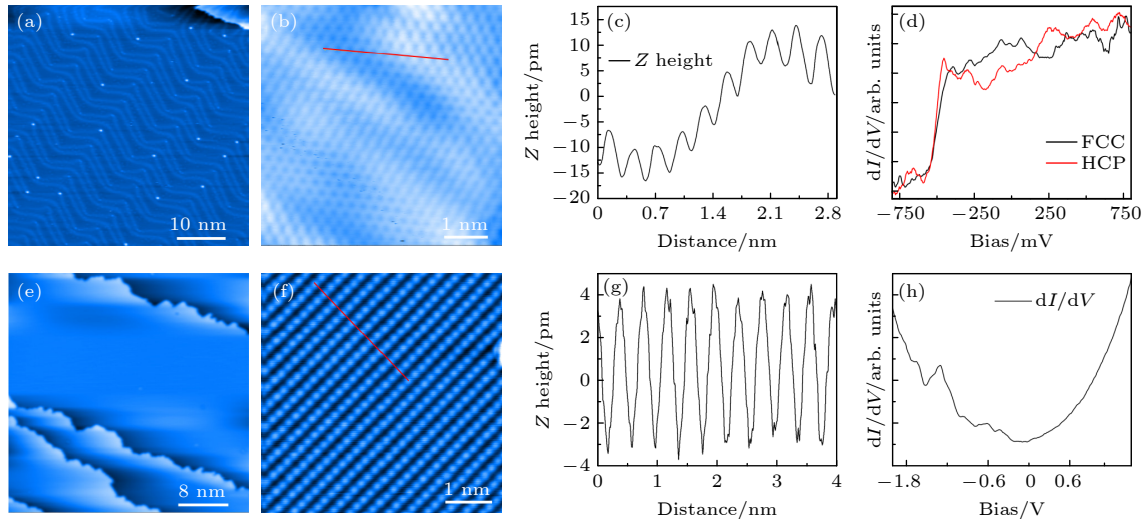


图 18 搭建 Dry-LT-SPM 的成像和隧道谱性能表征^[23] (a) Au(111) 表面的鱼骨形重构; (b) Au(111) 表面的原子分辨; (c) 金原子沿图 (b) 中红线的线剖面图; (d) Au(111) 表面 FCC 和 HCP 位点的 dI/dV 谱; (e) Ag(110) 表面的大范围 STM 图像; (f) Ag(110) 表面的原子分辨 STM 图像; (g) Ag 原子沿图 (f) 中红线的线剖面图; (h) Ag(110) 表面的 dI/dV 谱

Fig. 18. Imaging and tunneling spectrum performance characterization of the Dry-LT-SPM^[23]: (a) Herringbone reconstruction of the Au(111) surface; (b) atomic resolution of the Au(111) surface; (c) line profile of gold atoms along the red line shown in panel (b); (d) dI/dV spectra of FCC and HCP sites on Au(111) surface; (e) large-scale STM image of the Ag(110) surface; (f) atomic-resolved STM image of the Ag(110) surface; (g) line profile of Ag atoms along the red line shown in panel (f); (h) dI/dV spectrum of Ag(110) surface.

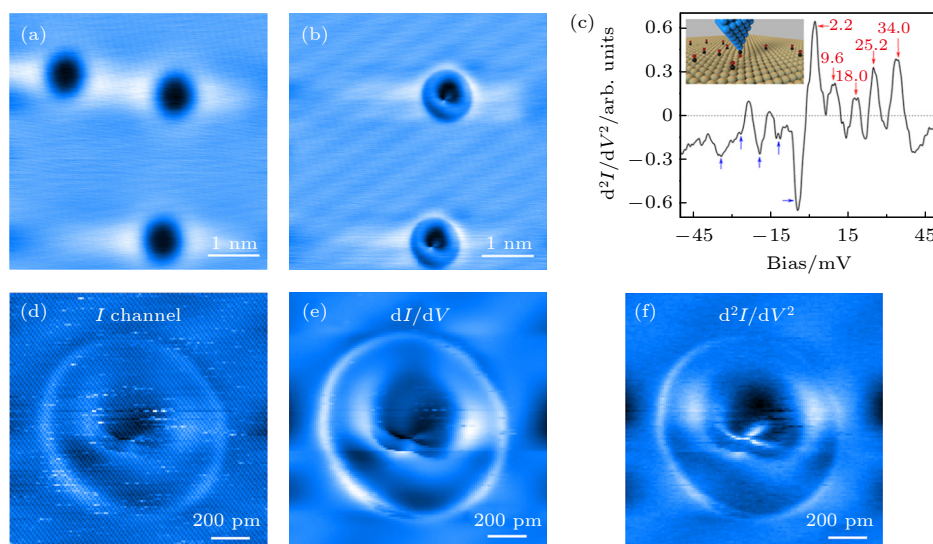


图 19 基于远端液化方案的 SPM 系统的谱学成像表征^[23] (a) CO 分子沉积在 Ag(110) 表面; (b) 能够被探针捡起; (c) 能获得高质量的 IETS 谱; (d)–(f) 在 CO 分子上取得隧道电流谱, STS 谱以及 IETS 谱学图像, 成像参数为 110 pA, 9.6 mV

Fig. 19. Spectroscopic imaging performance of the SPM system based on the remote liquefaction scheme^[23]: (a) CO molecules are deposited on the Ag(110) surface; (b) can be picked up by the probe; (c) high-quality IETS spectra can be obtained; (d)–(f) tunneling current spectrum, STS spectrum and IETS spectroscopy images on CO molecules with setpoint of 110 pA and 9.6 mV.

Dry-LT-STM 系统得到的 Au(111) 和 Ag(110) 表面的原子图像, 其振动水平在 2 pm 以下, 并在其表面测量得到了 dI/dV 谱^[23]. 由于极低的振动水平和优异的温度稳定性, 该系统同样也能够得到 CO 分子的 IETS 谱, 并可进行数小时的谱学成像, 如图 19 所示^[23].

3 总结与展望

随着技术的发展, Dry-LT-SPM 系统接连实现了显著的技术突破, 近端液化与远端液化两种构型的确立, 使 Dry-LT-SPM 系统更加适应了现代科研的复杂需求. 近端液化虽为早期技术方案, 目前日渐成熟, 性能也已满足目前的基本实验需求, 但是其将制冷机安装 SPM 系统近端, 这在一定程度上限制了系统的性能提升与未来功能扩展. 相对而言, 远端液化构型以其专有设计的制冷方式和改进的减振机制, 有效克服了近端液化的局限性, 不仅为更高精度的实验操作创造了条件, 而且为系统的进一步发展铺平了道路.

展望未来, 可以预见远端液化技术将迎来更深入的发展, 比如开发基于远端液化 ^4He 方案的 ^3He 制冷装置以及 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 稀释制冷机, 这将大幅提升 SPM 系统的低温性能和能量分辨率, 减少系统运行中的热漂移现象, 并实现极低的振动水平, 扩

大所研究材料体系的范围. 此外, 干式 SPM 系统的多功能化将成为发展的新趋势, 如通过集成磁场和激光等附加信号输入, 开发出能够支持电子自旋共振、针尖增强拉曼光谱等技术的设备. 又比如多探针技术的引入, 将使得长时间对复杂样品的多参数测量和纳米级操作成为可能. 这些技术的发展将推动纳米尺度科学和技术的进一步发展, 为其提供更加详尽和准确的纳米尺度表征和操作手段, 进而推动各个领域的科学研究和应用取得重要突破.

参考文献

- [1] Wu Z B, Gao Z Y, Chen X Y, et al. 2018 *Rev. Sci. Instrum.* **89** 113705
- [2] Bian K, Gerber C, Heinrich A J, Müller D J, Scheuring S, Jiang Y 2021 *Nat. Rev. Method. Prime.* **1** 36
- [3] Pettinger B, Schambach P, Villagómez C J, Scott N 2012 *Annu. Rev. Phys. Chem.* **63** 379
- [4] Watkins N J, Long J P, Kafafi Z H, Mäkinen A J 2007 *Rev. Sci. Instrum.* **78** 053707
- [5] Grafström S 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 1717
- [6] Flores S M, Toca-Herrera J L 2009 *Nanoscale* **1** 40
- [7] Bharat B 2004 *Handbook of Nanotechnology* (Springer)
- [8] Baykara M Z, Morgenstern M, Schwarz A, Schwarz U D 2017 *Handbook of Nanotechnology* (Berlin: Springer) pp769–808
- [9] Behler S, Rose M K, Dunphy J C, Ogletree D F, Salmeron M, Chapelier C 1997 *Rev. Sci. Instrum.* **68** 2479
- [10] Stipe B C, Rezaei M A, Ho W 1999 *Rev. Sci. Instrum.* **70** 137
- [11] Meyer G 1996 *Rev. Sci. Instrum.* **67** 2960
- [12] Elrod S A, Lozanne A L D, Quate C F 1984 *Applied Physics Letters* **45** 1240
- [13] He G, Wei Z X, Feng Z P, Yu X D, Zhu B Y, Liu L, Jin K,

- Yuan J, Huan Q 2020 *Rev. Sci. Instrum.* **91** 013904
- [14] Chaudhary S, Panda J J, Mundlia S, Mathimalar S, Ahmedof A, Raman K V 2021 *Rev. Sci. Instrum.* **92** 023906
- [15] Zhao Z, Wang C 2019 *Engineering and Technologies: Principles and Applications of Cryogen-Free Systems* (CRC Press)
- [16] Wong D, Jeon S, Nuckolls K P, Oh M, Kingsley S C J, Yazdani A 2020 *Rev. Sci. Instrum.* **91** 023703
- [17] Hackley J D, Kislitsyn D A, Beaman D K, Ulrich S, Nazin G V 2014 *Rev. Sci. Instrum.* **85** 103704
- [18] Zhang S, Huang D, Wu S W 2016 *Rev. Sci. Instrum.* **87** 063701
- [19] Kasai J, Koyama T, Yokota M, Iwaya K 2022 *Rev. Sci. Instrum.* **93** 043711
- [20] Huang H M, Shuai M M, Yang Y L, Song R, Liao Y H, Yin L M, Shen J 2022 *Rev. Sci. Instrum.* **93** 073703
- [21] Meng W J, Wang J H, Hou Y B, et al. 2019 *Ultramicroscopy* **205** 20
- [22] Coe A M, Li G H, Andrei E Y 2024 *Rev. Sci. Instrum.* **95** 083702
- [23] Ma R S, Li H, Shi C S, et al. 2023 *Rev. Sci. Instrum.* **94** 093701

INSTRUMENTATION AND MEASUREMENT

Advances in dry low-temperature scanning probe microscopy system development^{*}

Huang Yuan-Zhi¹⁾ Yang Chuan-Hao²⁾ He Song-Ping¹⁾
Ma Rui-Song^{1)†} Huan Qing^{1)‡}

¹⁾ (Nanophysics and Devices Laboratory, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

²⁾ (ACME (Beijing) Technology Co., Ltd., Beijing 101407, China)

(Received 28 September 2024; revised manuscript received 19 October 2024)

Abstract

Since the beginning of the 21st century, scanning probe microscopy (SPM) has played an increasingly important role in investigating the micro- and nanoscale surface characterization, physical property measurement, and micro/nano fabrication. To provide a more stable operating environment and higher energy resolution for SPM, researchers have developed low-temperature scanning probe microscopy (LT-SPM) systems that operate under the conditions of ultra-high vacuum and low temperature. Currently, most of LT-SPM systems have achieved temperatures around 4.2 K by supplying liquid helium-4 (⁴He) to continuous flow cryostats or low-temperature Dewars. However, due to the low natural abundance of ⁴He and its increasing demand, the significant increase in the price of liquid helium has seriously affected the normal operation of ⁴He-based low temperature equipment. To solve this problem, dry (cryogen-free) refrigeration technology has emerged as a promising alternative to the next-generation low-temperature systems. In this context, the integration of dry refrigeration technology with SPM to construct Dry-LT-SPM systems has become a key research focus in the field of scanning probe instruments.

This paper mainly discusses several reported closed-cycle Dry-LT-SPM systems, focusing on aspects such as system design, refrigeration schemes, vibration reduction methods, and overall performance. Finally, this paper summarizes the current challenges and problems faced by Dry-LT-SPM systems and explores potential future developments in this field.

Keywords: cryogen-free, low temperature, scanning probe microscopy, vibration

PACS: 87.61.Ff, 07.20.Mc, 07.79.-v, 07.10.Fq

DOI: 10.7498/aps.73.20241367

CSTR: 32037.14.aps.73.20241367

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. T2125014, 11927808, 12004417) and the CAS Key Technology Research and Development Team Project (Grant No. GJJSTD20200005).

† Corresponding author. E-mail: mars@iphy.ac.cn

‡ Corresponding author. E-mail: huanq@iphy.ac.cn



基于干式制冷的低温扫描探针显微镜研究进展

黄远志 杨传浩 何颂平 马瑞松 郇庆

Advances in dry low-temperature scanning probe microscopy system development

Huang Yuan-Zhi Yang Chuan-Hao He Song-Ping Ma Rui-Song Huan Qing

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 73, 228701 (2024) DOI: 10.7498/aps.73.20241367

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.73.20241367>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

“针尖下的实验室”——扫描探针探测与调控铁电畴及其微观物性

Laboratory experiments based on tip probe – Scanning probe detection and regulation of ferroelectric domains and their microscopic physical properties

物理学报. 2023, 72(20): 207501 <https://doi.org/10.7498/aps.72.20230954>

低温促进表面等离子激元共振效应及肌酐的超灵敏表面增强拉曼散射探测

Low temperature-promoted surface plasmon resonance effect and ultrasensitive surface-enhanced Raman scattering detection of creatinine

物理学报. 2022, 71(14): 146101 <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220151>

太赫兹散射式扫描近场光学显微镜中探针与样品相互作用及其影响探究

Tip-sample interactions in terahertz scattering scanning near-field optical microscopy and its influences

物理学报. 2021, 70(24): 248703 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211715>

偏振调制扫描光学显微镜方法

Polarization modulation scanning optical microscopy method

物理学报. 2024, 73(15): 157801 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240688>

无阀纳米泵中水流的反常堵塞

Abnormal blockage of water flow in valveless nanopumps

物理学报. 2024, 73(9): 094702 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240115>

用于扫描隧道显微镜的低噪声前置电流放大器

Low-noise preamplifier for scanning tunneling microscope

物理学报. 2024, 73(13): 130702 <https://doi.org/10.7498/aps.73.20240560>