

## 掺杂Mott绝缘体的电子结构演变研究取得重要进展

自1986年铜氧化物高温超导体发现以来，其高温超导机理的研究一直是凝聚态物理中的一个核心问题。铜氧化物高温超导体的母体是反铁磁Mott绝缘体，通过向母体中掺入适量的载流子(电子或空穴)，可以实现高温超导电性。由此产生的一个首要问题是，Mott绝缘态是如何随掺杂逐渐演变进入超导态的。进一步具体来讲，Mott能隙是如何随载流子掺杂而消失，Mott能隙中的低能电子态是如何产生和演变的？Mott绝缘体及其掺杂的研究在强关联电子领域占有重要的地位。30多年来，针对Mott绝缘体的本质、Mott绝缘体掺杂及其与高温超导电性的关系，研究者虽然已提出了很多理论模型，但是还没有达成共识。其中的一个主要原因在于，这些理论模型往往并不能直接给出精确的解析解，而必须采用数值计算方法，其中不可避免地引入各种简化和近似，导致得出的结果不尽相同。因此，对Mott绝缘体的关键实验研究，对理解Mott物理和建立相关理论至关重要。角分辨光电子能谱是研究材料电子结构最直接的实验手段。长期以来，研究者一直希望能从角分辨光电子能谱实验中获得铜氧化物母体在微量掺杂情况下的完整电子结构演变信息，不仅在能量上能包含整个Mott能隙区域，而且在整个动量空间中也能分辨这些能态的分布。然而，由于缺乏合适的铜氧化物母体材料和精细的载流子调控手段，相关的角分辨光电子能谱研究一直难以开展。

中国科学院物理研究所 / 北京凝聚态物理国家研究中心超导国家重点实验室周兴江研究组博士胡成等，与极端条件物理重点实验室靳常青研究组的博士赵建发以及凝聚态理论与材料计算重点实验室的向涛院士合作，利用高分辨角分辨光电子能谱技术，对新型铜氧化物母体 $\text{Ca}_3\text{Cu}_2\text{O}_4\text{Cl}_2$ 的电子结构及其掺杂演变进行了系统的研究，取得了重要进展，为掺杂Mott绝缘体的电子结构演变和铜氧化物高温超导体的微观理论研究提供了重要信息。

这项研究工作得以成功开展，一方面得益于近期一种新型铜氧化物母体 $\text{Ca}_3\text{Cu}_2\text{O}_4\text{Cl}_2$ 单晶样品的获得，另一方面是通过对样品表面进行连续的原位碱金属Rb原子沉积，可以实现表面电子掺杂浓度的精确调控(图1)。实验发现，母体中化学势位于Mott能隙中间，随着微量的表面电子掺杂，化学势迅速跳跃到上Hubbard带带底位置(图2)。这使得通过角分辨光子能谱对完整Mott能隙区域的电子结构研究成为可能，包含电荷转移能带，Mott能隙和上Hubbard带。由此，可以通过角分辨光电子能谱对Mott能隙和低能电子态随掺杂演变展开系统的研究(图3)。主要结果如下：(1)  $\text{Ca}_3\text{Cu}_2\text{O}_4\text{Cl}_2$ 母体中的Mott能隙是一个间接带隙，能隙大小约为1.5eV(图3)。(2) Mott能隙的大小随掺杂基本不变，然而电荷转移能带的谱重，随少量电子掺杂而迅速转移到Mott能隙区域形成低能电子态，导致了Mott能隙在掺杂浓度0.04附近基本消失(图3)。(3) Mott能隙中新产生的低能电子态在动量空间中的演变具有明显的各向异性(图2)。在反节点 $(\pi, 0)$ 区域，随着上Hubbard带逐渐被电子填充，在费米能级附近形成了一个抛物线型的金属能态，在费米面上表现成一个小的电子型费米口袋。同时，在节点 $(\pi/2, \pi/2)$ 区域，在Mott能隙中形成很弥散的间隙态，其谱重分布在很大的能量范围。在低掺杂区域，这个间隙态的带顶在费米能级以下，随着掺杂增加逐渐向费米能级靠近，最后穿越费米能级。在Mott能隙中的由掺杂诱导产生的低能电子态，本质上都是非相干的，谱重分布在整个Mott能隙中的大部分能量区域。

通过角分辨光电子能谱对 $\text{Ca}_3\text{Cu}_2\text{O}_4\text{Cl}_2$ 母体电子掺杂后电子结构的演变，可以从实验上建立掺杂Mott绝缘体的图像(图4)，从而与相关的理论模型进行比较。目前，单粒子谱函数的计算主要基于单带Hubbard模型或者t-J模型。这些理论计算在大的图像上能给出母体中的Mott能隙结构和随掺杂产生的低能电子态，部分实验结果能够被单带Hubbard模型描述。然而，实验上观察到的Mott能隙随掺杂的塌陷、在Mott能隙中非相干、各向异性间隙态的产生，以及电子结构的演变(图4)，都不能被现有的理论所解释。这项工作提供了掺杂Mott绝缘体电子结构演变的关键信息，不仅能够验证现有的理论模型，而且能够促进理论的进一步发展。

相关研究成果发表在近期的Nature Communications上 [Nature Communications 12, 1356 (2021)]。上述科研工作得到国家自然科学基金委、科技部和中国科学院B类先导专项等的资助。

相关工作链接：<https://www.nature.com/articles/s41467-021-21605-6>

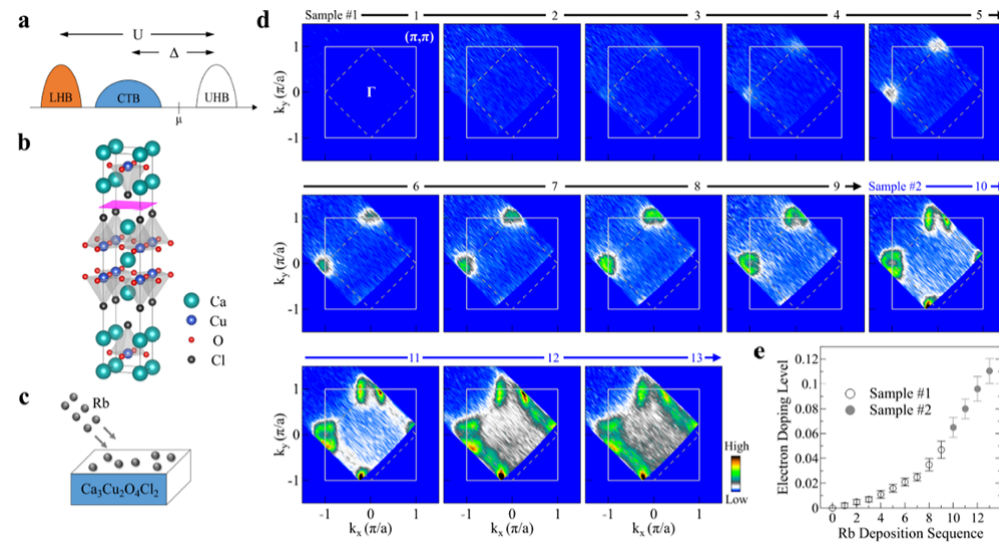


图1：表面原位沉积Rb之后的 $\text{Ca}_3\text{Cu}_2\text{O}_4\text{Cl}_2$ 费米面演变和对应的电子掺杂浓度。

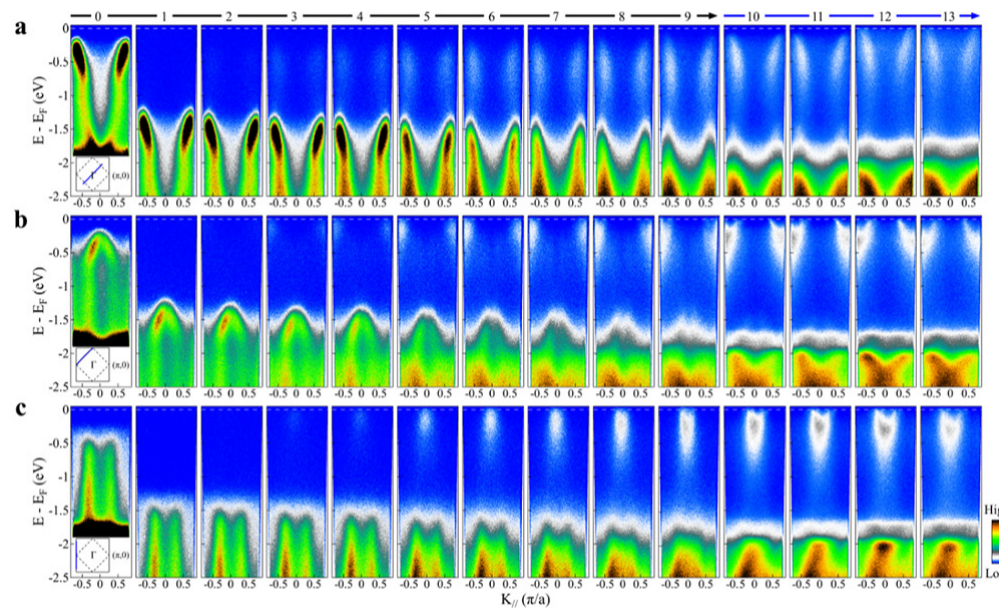


图2：表面原位沉积Rb之后沿3个动量方向 $\text{Ca}_3\text{Cu}_2\text{O}_4\text{Cl}_2$ 能带结构的演变。

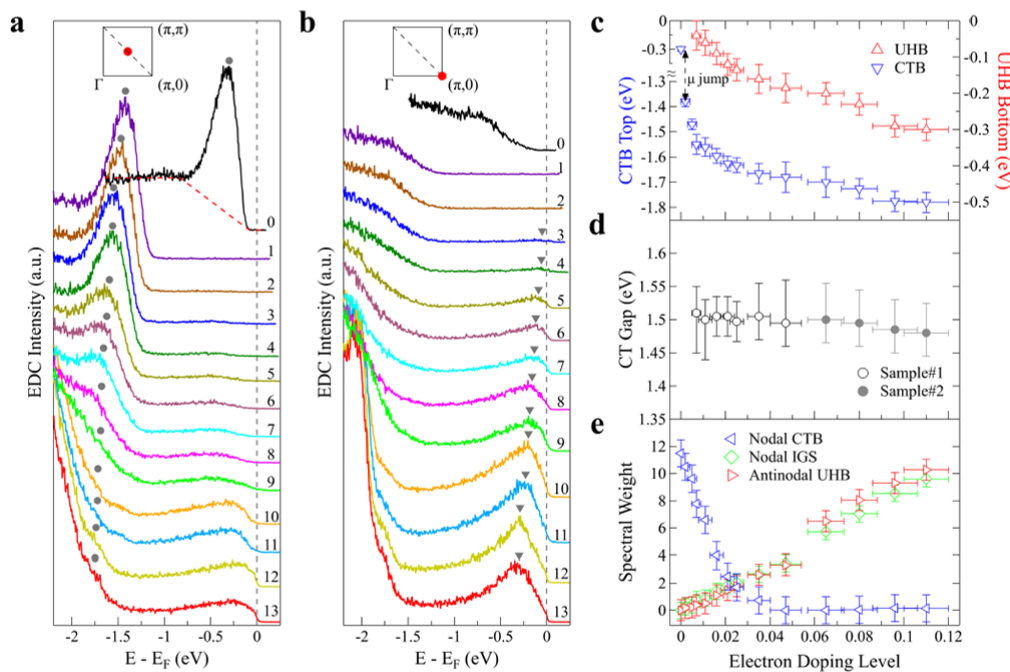


图3：电荷转移能带，上Hubbard带和间隙态随掺杂的演变。

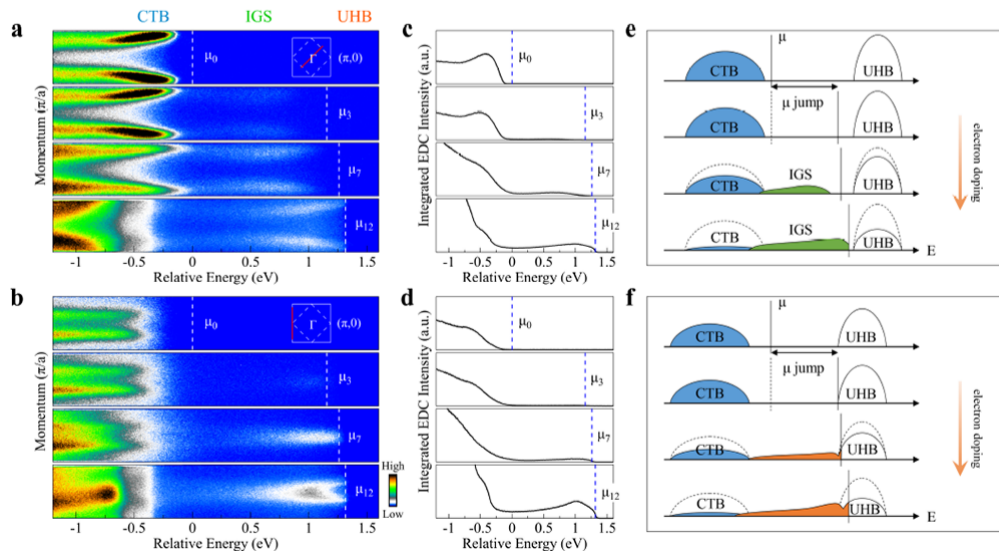


图4：从实验上建立的掺杂Mott绝缘体电子结构随电子掺杂演变的完整图像。

[电子所刊](#) [公开课](#) [微信](#) [联系我们](#) [友情链接](#) [所长信箱](#) [违纪违法举报](#)



版权所有 © 2015-2021 中国科学院物理研究所 京ICP备05002789号-1 京公网安备1101080082号 主办：中国科学院物理研究所 北京中关村南三街8号 100190