具有化学键合灵敏度的单原子振动谱学分析技术

作者：writer 来源：科学网

本文原地址：https://www.iikx.com/news/progress/22441.html

本文仅供学习交流之用，版权归原作者所有，请勿用于商业用途！

具有化学键合灵敏度的单原子振动谱学分析技术。
2023年3月16日，中国科学院大学周武课题组在Nature Materials期刊在线发表题为Single-atom vibrational spectroscopy with chemical-bonding sensitivity的研究成果。

该研究报道了利用单原子尺度、毫电子伏能量分辨的扫描透射电镜电子能量损失谱技术对单层石墨烯中不同成键构型点缺陷处的局域晶格振动信号进行精确系统测量的结果，首次在单原子精度上揭示了缺陷原子的成键构型和原子质量对局域特征晶格振动谱信号的影响，将扫描透射电镜中单原子尺度晶格振动谱的测量精度提升到了化学键合敏感的水平。

中国科学院大学的周武教授和范德堡大学的Sokrates T. Pantelides教授为该论文的共同通讯作者。中国科学院大学18级博士生许名权、范德堡大学博士后包德亮及中国科学院大学18级博士生李傲雯为该论文的共同第一作者。该研究工作的主要合作者包括中国科学院大学的杜世萱教授、苏刚教授，以及中国科学院大学卓越客座教授Stephen J. Pennycook。

声子是凝聚态物理中描述周期原子集体运动的一种本征激发，其特征受材料的晶格结构、化学键合、原子质量和晶格应变等因素影响。微观尺度的缺陷带来的晶格对称性破缺可以改变对应的声子激发，从而影响材料的热导、相变、电导等物理性质，并通过电子-声子耦合等作用进一步影响材料的超导等特殊性质。因而，发展原子尺度振动谱学测量技术并不断提升其测量精度与灵敏度对于研究量子材料的物性调控具有重要意义。随着电子单色仪技术的发展，扫描透射电子显微镜电子能量损失谱学(STEM-EELS)可以兼具原子级空间分辨率和毫电子伏能量分辨率，使得在原子尺度探测材料的局域振动信号成为可能。

近日，中国科学院大学物理科学学院周武教授研究团队通过对单色仪球差校正扫描透射电子显微镜的优化，提升仪器稳定性并优化电子光路设置，将原子尺度振动谱学测量技术的灵敏度推进到了新的极限，实现了具有化学键合灵敏度的单原子振动谱学测量，揭示了缺陷原子的成键构型和原子质量对局域特征晶格振动谱信号的影响，为理解单个原子缺陷对局域晶格振动模式的影响提供了直接的实验依据(图1)。

利用单原子精度、毫电子伏分辨的扫描透射电镜电子能量损失谱技术，周武研究团队对石墨烯晶格中两类稳定的硅原子点缺陷，即硅原子取代一个晶格碳原子形成三配位成键的Si-C3构型以及取代两个晶格碳原子形成四配位成键的Si-C4构型的局域晶格振动信号进行了精确、系统的测量，并探索了扫描透射电镜中单原子振动谱学测量技术的灵敏度极限。实验结果表明，对比具有同样杂质原子(Si)但不同键合构型的这两类点缺陷，Si-C4在～100毫电子伏能量损失区间具有强于Si-C3的振动谱信号，表明化学键合的改变导致了独特的局域振动模式。通过在单原子尺度对点缺

陷周围原子的振动谱学信号进行高精度测量，并结合理论计算模拟，该研究团队发现：点缺陷周围碳原子的低能量振动信号特征(P1)会随其与中心杂质Si原子的距离不同而发生变化，并且不同点缺陷构型中相应的碳原子上的振动谱信号也存在明显区别(图2)。结合理论计算发现，Si-C4与Si-C3由于具有不同的局域结构对称性，因此在不同的能量范围体现出独特的本征振动模式(图3)。

此外，该研究团队还对石墨烯中和碳原子相比具有较小质量差别的氮原子缺陷(N-C3)的局域振动信号进行了分析。如图4所示，与Si-C3不同，石墨烯中的N-C3缺陷导致能量较高的振动信号(P2)发生明显的红移，并且氮原子和最近邻碳原子的振动频率基本符合简谐振子模型规律，表明该实验技术可以在单原子精度上揭示原子质量的微小差别对局域振动频率的影响。

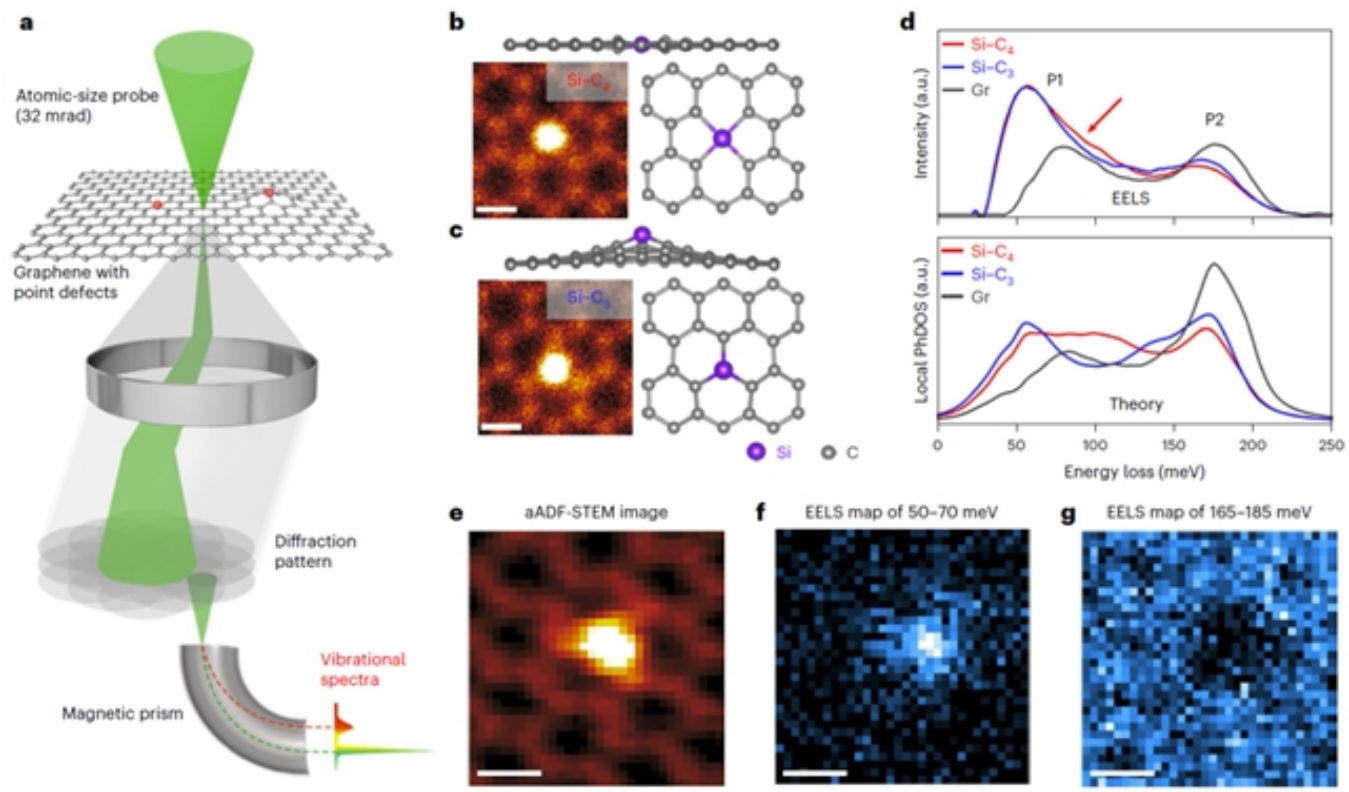


图1：石墨烯晶格中不同构型的硅点缺陷处的局域振动谱学信号测量

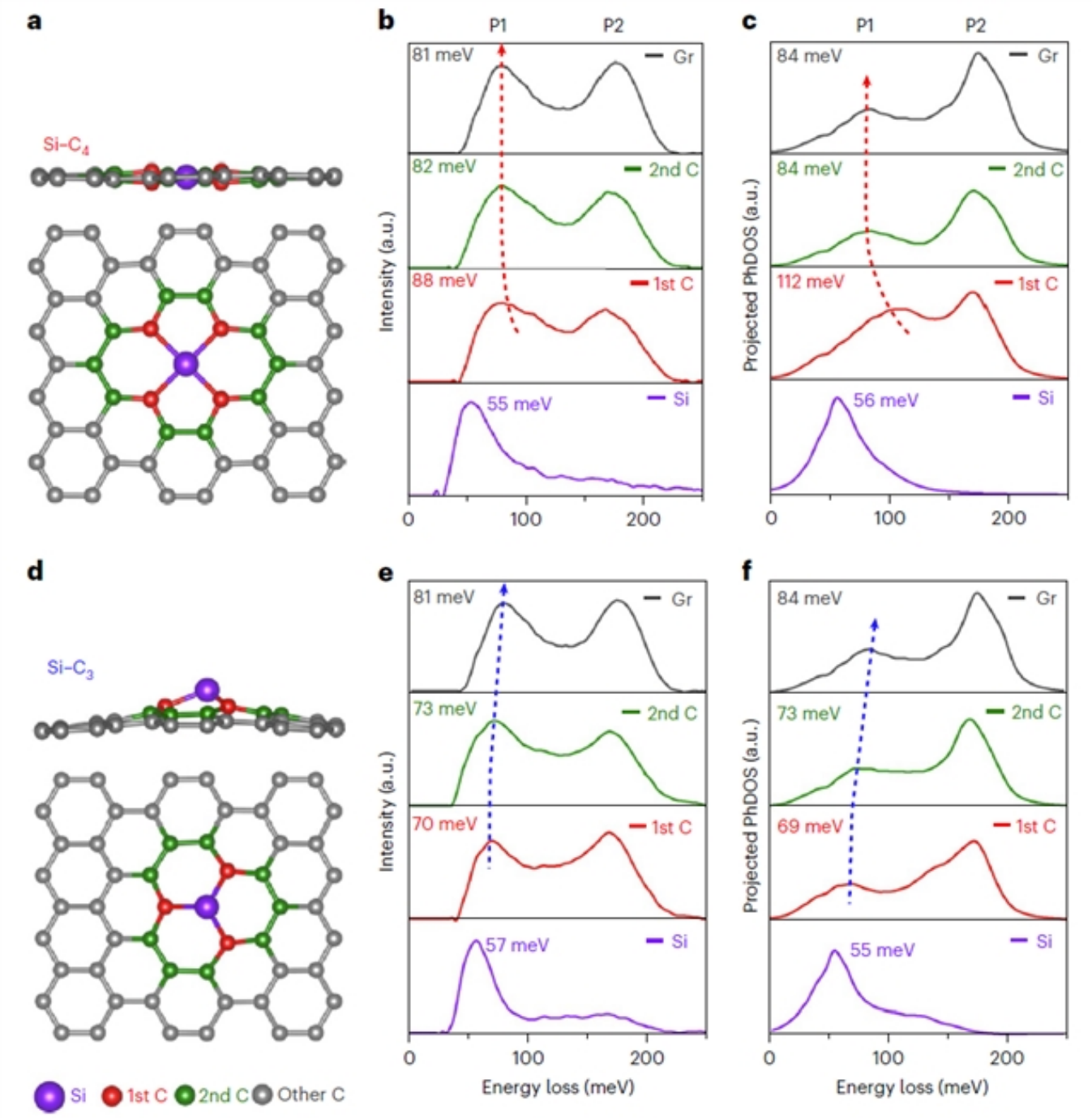


图2：石墨烯中不同硅缺陷处化学键合方式对原子尺度局域振动信号的调制

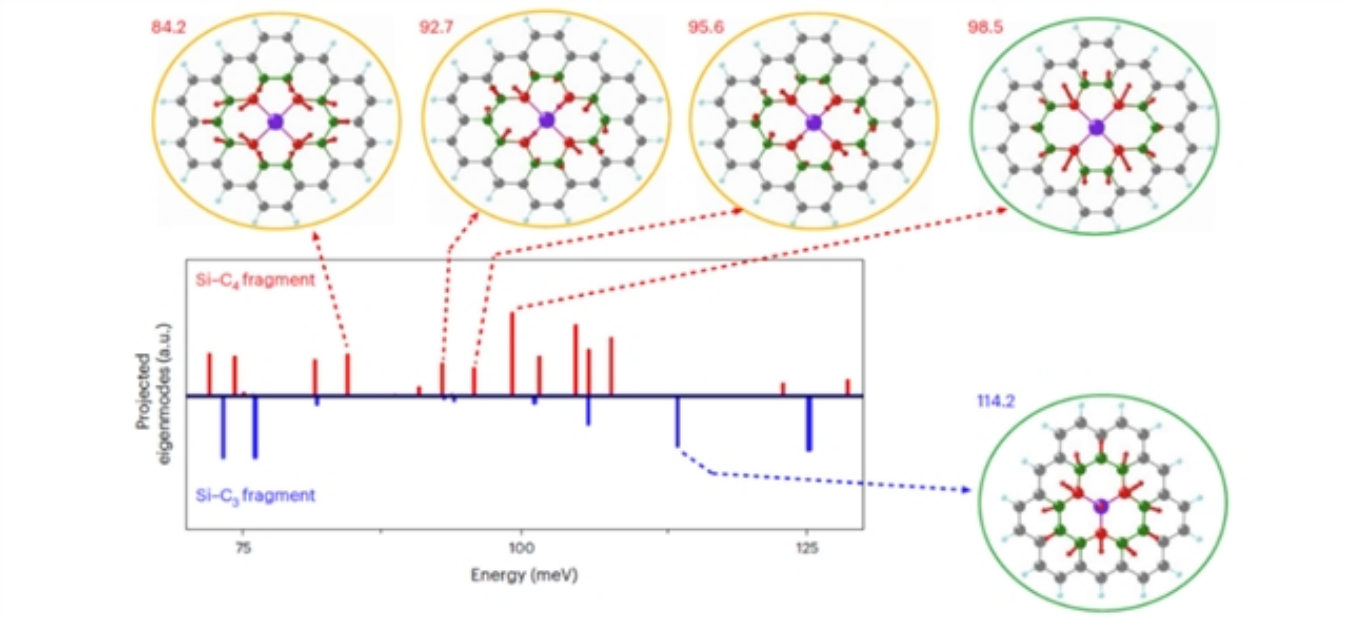


图3：石墨烯中Si-C4、Si-C3缺陷处的本征模的理论计算

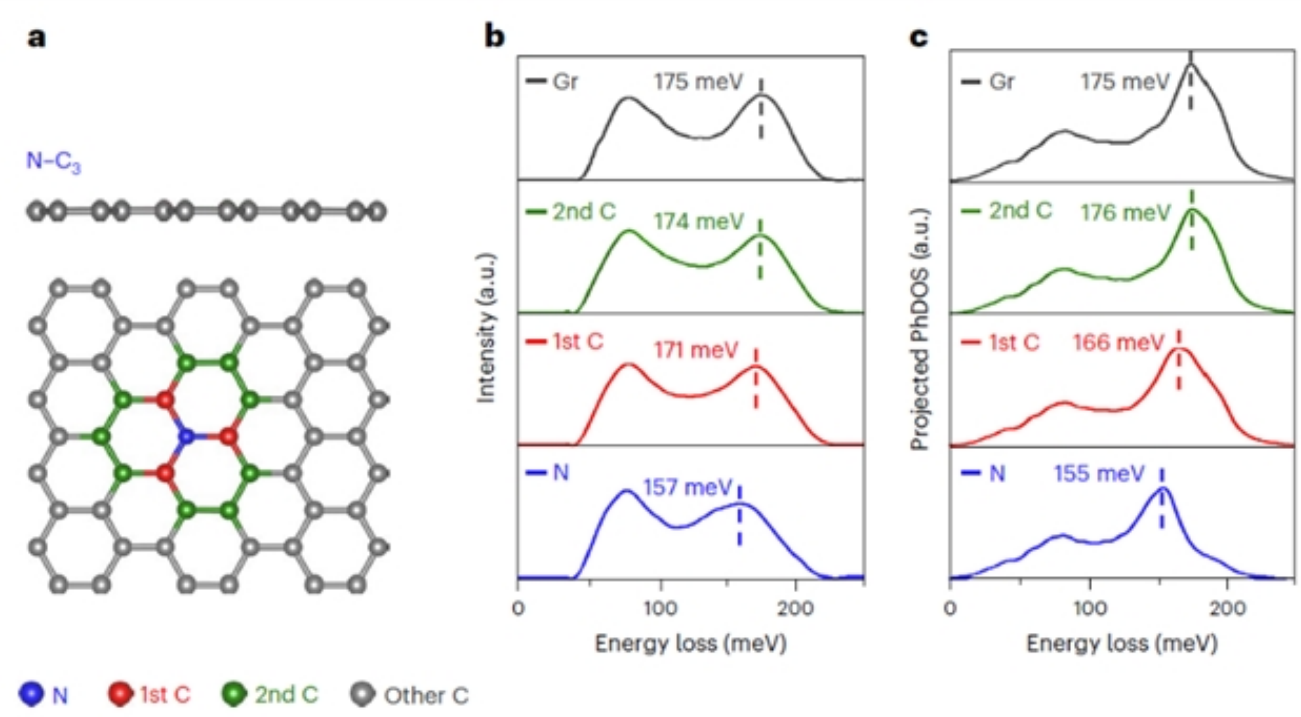


图4：石墨烯中氮缺陷处的单原子尺度振动谱学分析

该研究工作进一步提升了扫描透射电子显微镜中的电子能量损失谱学技术的探测极限，首次在单原子尺度上揭示了化学成键和原子质量对局域晶格振动特征的调制，将扫描透射电镜中单原子尺度晶格振动谱的测量精度提升到了化学键合敏感的水平。该技术为直接测量化学键合对量子材料局域晶格振动模式的调制、探索晶格缺陷对量子物性的调控提供了新的实验手段，也为理解石墨烯中缺陷诱导的新物理现象提供了帮助。该研究工作获得了国家重点研发计划项目、北京高校卓越青年科学家计划项目、国家自然科学基金、中国科学院先导项目、中国科学院前沿科学重点研

究项目等资助。(来源：科学网)

相关论文信息：https://doi.org/10.1038/s41563-023-01500-9

作者：周武等 来源：《自然—材料》

更多 科学进展 请访问 https://www.iikx.com/news/progress/

本文版权归原作者所有，请勿用于商业用途，爱科学iikx.com转发