



无液氦制冷隔振技术在低温扫描隧道显微镜中的应用

孙泽元¹, 吴施伟^{1,2,3*}

1. 复旦大学物理系, 应用表面物理国家重点实验室, 上海 200438

2. 复旦大学微纳光子结构教育部重点实验室, 上海 200438

3. 复旦大学微纳电子器件与量子计算机研究院, 上海 200438

*联系人, E-mail: swwu@fudan.edu.cn

收稿日期: 2024-10-13; 接受日期: 2024-11-26; 网络出版日期: 2025-01-21

国家自然科学基金(编号: 11427902)资助项目

摘要 低温环境在扫描隧道显微镜(STM)的应用中至关重要, 它不仅能够减少实验测量的热噪声、提高精度和稳定性, 还能提供超导强磁场等极端实验条件, 并揭示各种新奇量子材料的物性, 如拓扑效应、电子关联等. 传统低温STM依赖昂贵的液氦, 极大地限制了连续运行时间和成本. 而基于闭循环制冷机的制冷技术虽然能够实现无液氦消耗的连续低温运行, 但受到制冷机振动的影响难以实现原子级别的显微实验测量以及和超高真空环境兼容. 本文将回顾最新开发的无液氦制冷隔振技术原理及其在前沿STM中的应用.

关键词 无液氦制冷隔振技术, 低温扫描隧道显微镜, 扫描探针显微术, 尖端科学仪器

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

1 引言

1.1 传统低温实验手段

低温环境在物理学和材料科学的研究中发挥着至关重要的作用, 其应用涵盖了从实验技术到物理现象的多方面内容. 从实验技术的角度来看, 低温环境的引入可以显著减少实验中的热噪声, 从而提高测量的精度. 这在诸如扫描隧道显微镜(Scanning Tunneling Microscopy, STM)^[1,2]和原子力显微镜(Atomic Force Microscopy, AFM)^[3]等精密显微测量技术中尤为重要.

低温能够有效减少热漂移, 进而提高实验设备的分辨率和稳定性. 从物理现象的角度, 低温环境为研究诸多极端物理现象提供了必要的条件. 大量电荷序、自旋序、超导及量子物态的相变行为都需要在低温条件下才会出现. 而应用这些低温物态, 例如低温环境中的超导材料, 是目前人类获得强磁场环境的主要手段. 这些强磁场环境在前沿科学研究中成为了一种重要的调控维度, 帮助科学家探索和理解材料中的许多新奇物态. 不仅如此, 超导强磁场在日常生活中应用广泛, 例如医疗成像设备中的磁共振成像技术(Magnetic Reso-

引用格式: 孙泽元, 吴施伟. 无液氦制冷隔振技术在低温扫描隧道显微镜中的应用. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2025, 55: 250009

Sun Z Y, Wu S W. Application of cryogen-free vibration isolation techniques in low-temperature scanning tunneling microscopy (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2025, 55: 250009, doi: [10.1360/SSPMA-2024-0470](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2024-0470)

nance Imaging, MRI)等; 同时也在尖端科学技术中起着关键作用, 例如可控核聚变技术的磁约束和构建超导量子计算机中的量子比特. 总之, 低温在研究材料纳米乃至原子尺度的结构和物性时是一种不可或缺的实际环境, 而低温技术无论是在我们日常生活中的实际应用, 还是在推动物理学和材料科学前沿研究方面, 都起到了举足轻重的作用.

传统低温实验通常利用液氦或液氮的蒸发相变潜热来实现所需的低温环境. 当液氮或液氦蒸发时, 其相变过程中吸收了大量热量, 从而有效地降低系统温度. 常压下, 液氮的沸点为77 K, 因此在许多不需要极端低温的应用中, 液氮成为了低价且易获取的理想制冷媒介, 广泛应用于冷却实验设备或材料. 当需要更低的温度时, 则使用液氦作为制冷媒介. 液氦(^4He)的沸点在常压下为4.2 K, 成为实现极低温的理想制冷媒介, 尤其是在超导材料的应用中, 它能够为超导线圈提供必要的低温环境, 以保持其超导状态维持强磁场. 此外, 液氦在真空状态下能够进一步获得小于4.2 K的极低温, 也为探索量子相变等极端物理现象提供了必要的基础.

尽管利用液氦是实现低温的传统方法, 但氦是一种极为稀缺且不可再生的资源. 地球上的氦大部分存在于地表以下, 通过火山喷发或者渗透效应释放到空气中, 只占空气组分的5.2 ppm, 并且由于密度极低, 会逐渐逃逸到太空中. 这意味着与大多数化学元素不同, 地球上自然产生的氦气总量在不断减少. 目前, 最经济的获取氦气方式是通过开采天然气并从中提取氦气. 然而, 全球氦气资源的分布极为不均衡, 主要供应国包括美国、卡塔尔等¹⁾, 而中国的氦气产量不足全球的1%, 极度依赖进口. 随着全球氦需求的激增, 氦气的价格也随之快速上涨, 欧盟于2017年将氦列入关键稀有材料清单²⁾, 美国在2018年将氦纳入关键矿产资源清单³⁾.

液氦的稀缺性和进口液氦的成本不断上涨, 使其成为了我国名副其实的“卡脖子”难题, 促使我们在低温领域不断寻找新的替代方案和更高效的制冷技术以减少对液氦的依赖. 近年来, 这一需求推动了无液氦闭

循环制冷技术和液氦回收技术的发展. 美国、日本和中国等都研发了较为成熟的无液氦闭循环制冷机和氦回收系统. 这些技术通过消耗电力运行即可达到低于4.2 K的低温环境, 从而使其能够为无液氦MRI等低温运行设备提供所需的制冷功率. 需要指出的是, 无液氦设备通常指“无液氦消耗的”低温设备, 如无液氦MRI等设备在实际运行时内部依然会存有少量液氦, 只是制冷运行时不产生液氦消耗.

然而, 无液氦闭循环制冷机在工作过程中不可避免地产生机械振动, 这对许多对振动极为敏感的精密显微测量装置, 如低温光学显微镜和基于扫描探针显微原理的AFM和STM来说是不可接受的. 为了解决这一难题, 近年来领域内不仅发展了更低振动的无液氦制冷机, 还开发了一系列利用闭循环制冷机的无液氦制冷隔振技术. 这些隔振技术通过结合先进的机械设计和隔振系统, 能够有效减少制冷机振动对精密设备的影响, 从而保证设备在低温环境下的稳定运行.

1.2 无液氦制冷技术

图1(a)和(b)是两类主流的无液氦闭循环制冷机的冷头, 其中图1(a)是Gifford-McMahon (GM)制冷机, 图1(b)是脉冲管(Pulse Tube, PT)制冷机⁴⁾. 常用的GM和PT制冷机使用氦气作为内循环工质, 设计有单级或二级制冷端(下文称一级冷端和二级冷端), 根据制冷机规格的不同, 二级冷端最低能达到小于4.2 K的低温, 且在4.2 K时的制冷功率能够达1.5 W以上⁴⁾.

GM制冷机已广泛应用于MRI和低温泵等多种低温设备中, 其基本工作原理是通过将冷头与压缩机连接, 利用压缩机对氦气进行压缩并输送到冷头中的膨胀过程实现制冷. 冷头配有机驱动电机, 驱动移置器(Displacer)进行线性往复运动, 使压缩气体在冷头内的膨胀器(Expander)中膨胀产生低温流体, 并通过冷端换热器(Cold-End Heat Exchanger)将位于制冷端的再生器(Regenerator)冷却至低温. 在冷头中, 氦气压力的变化通过阀门以1–2.4 Hz的开关频率连接压缩机的高压和低压侧, 阀门的开关与移置器的运动同步. 因此, GM制冷机在冷端的低温运行依赖电机驱动移置

1) Garvey M D. The 2023 worldwide helium market. gasworld, 2023.

2) Study on the review of the list of critical raw materials. Publications Office of the European Union, 2017.

3) Final list of critical minerals 2018, Federal Register. 2018, 23295–23296.

4) 中船鹏力(南京)超低温技术有限公司, <https://724pridecryogenics.com>.

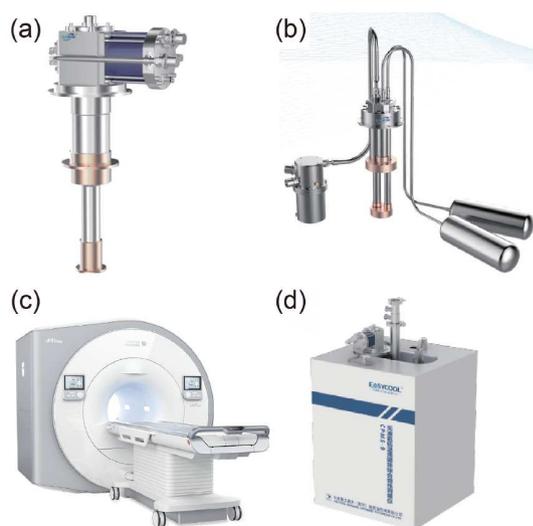


图 1 (a), (b) GM 制冷机(a)和PT制冷机(b)⁴⁾的冷头; (c), (d)应用无液氦制冷技术研发的无液氦MRI (c)⁵⁾和PPMS (d)⁴⁾
 Figure 1 (a), (b) Cold head of GM cryocooler (a) and PT cryocooler (b)⁴⁾; (c), (d) cryogen-free MRI (c)⁵⁾ and PPMS (d)⁴⁾ developed by closed-cycle cryocoolers.

器, 会使低温端产生显著的机械振动。

为了解决GM制冷机的振动问题, PT制冷机应运而生。它将GM制冷机中的机械移置器替换为气动移置器, 气动移置器的运动通过节流阀(Orifice)和气体储存罐(Gas Reservoir)进行调控, 以实现低温热力学循环所需的质量流量和气体压力相位关系, 获得最大的膨胀功。PT制冷机的优点在于无机械运动部件, 移置器对冷头带来的振动能量较低, 使得它在对振动高度敏感的低温装置中表现更为优越, 且减少了结构复杂性和机械磨损, 从而提高了系统的可靠性, 延长了平均维护时间。不仅如此, 部分型号的PT制冷机还采用了电机分离设计。这种设计将制冷机上仅有的旋转阀体部件和冷头进行了分离, 中间通过相对柔性的氦气管道将电机与冷头连接, 进一步减少了冷头的振动。在实际安装方面, PT制冷机的冷头相比GM冷头有更大的直径, 且PT冷头的安装有角度限制, 而GM冷头可以做到任意方案安装。

1.3 无液氦制冷技术的应用

使用无液氦制冷机的低温装置在许多方面展现出

了明显优势。例如, 无液氦MRI⁵⁾(图1(c))相比传统的液氦MRI, 虽然初始安装成本可能更高, 但由于不需要频繁补充液氦, 长期的运营成本显著降低。此外, 无液氦MRI还具备更长的连续运行周期, 减少了因液氦补充或挥发导致的停机维护时间。在设备重量方面, 由于无需储存大量液氦, 无液氦MRI整体体积和重量大幅减小, 减轻了设备的安装和运输负担, 更适合有限空间或结构承载能力有限的医疗环境。另一个重要的优势是安全性。在传统液氦MRI中, 当超导磁体发生失超时, 超导线圈中电能的瞬间释放会使储存的液氦大量蒸发, 产生的高压氦气可能会损坏设备并带来安全隐患, 且系统恢复的成本较高, 时间较长。相比之下, 无液氦MRI由于内部液氦量极少, 甚至完全避免了液氦的使用, 因此在失超情况下具有更高的安全性, 系统恢复效率也更高。这使无液氦MRI不仅在操作和维护方面更加简便, 还在设备故障时提供了更可靠的保护。

上述无液氦MRI的优势同样适用于其他无液氦科研设备。以综合物性测量系统(Physical Property Measurement System, PPMS)⁴⁾(图1(d))为例, 无液氦PPMS使用无液氦制冷机提供低温环境, 消除了对液氦供应的依赖。这不仅显著降低了长期运行成本, 还使得设备能够实现更长的连续运行周期, 尤其适合大范围变温实验的应用。此外, 无液氦制冷系统还能根据实验需求, 通过降低制冷机的驱动频率来调制冷量。当系统制冷量富余时, 降低驱动频率可以有效减少设备用电功耗, 从而提升运行的经济性和可持续性。这种灵活调节的能力, 使无液氦PPMS在需要频繁变温或进行长时间连续实验的场景中表现更好, 成为了实验室和科研机构的理想选择。

尽管PT制冷机在运行时相比GM制冷机产生的机械振动能量更小, 使其在振动敏感的低温设备中具有显著优势, 如医用MRI系统的显微成像, 但这种低振动的成像效果也同时依赖于MRI中超导线圈的巨大质量(1–2 t)。无液氦制冷机安装在大质量的超导线圈上能够有效降低来自冷头产生的10 μm 量级机械振动。然而, 在广泛的低温科研应用中, 研究人员通常期望低温设备具备更小的体积和占地面积, 设备的紧凑性和便携性成为关键。较小体积和重量的实验设备更容易

5) 上海联影医疗科技股份有限公司, <https://www.united-imaging.com>.

受到无液氦制冷机振动的影响. 因此, 在需要低振动的实验中, 常需采用隔振设计方案来应对制冷机振动对实验测量的影响.

图2(a)展示了本文作者团队自主设计研发的一套无液氦磁场光学显微系统, 采用了机械振动隔离的无液氦制冷技术. 低温光学冷台通过柔性橡胶密封的氦交换气, 将无液氦制冷机的制冷功率传导至样品端, 同时隔离了制冷机的机械振动, 将GM制冷机冷头 $10\ \mu\text{m}$ 的振动幅度衰减至小于 $1\ \mu\text{m}$, 从而能够在5 K的最低温度下应用高倍物镜实现亚微米级的光学显微成像分辨率. 这一制冷结构的详细原理将在第2节中介绍.

图2(b)展示了商业化的无液氦扫描探针显微系统⁶⁾. 这类系统采用插杆式样品结构, 将样品及扫描探针台插入极低温氦气冷孔中, 以实现低温磁场下的高分辨显微实验表征, 最低温度可达到2 K以下. 通过使用电机分离型的PT制冷机, 该类系统有效地将旋转阀体与冷头的振动隔离, 结合冷头与低温导冷界面的柔性连接, 使扫描台的振动幅度控制在约150 pm. 这一振动幅度对于纳米量级的AFM探针来说, 已经满足其空间分辨的极限性能需求. 不仅如此, 这类扫描探针显微系统具有高度的兼容性, 使其能够适用于多种AFM及其衍生的探针技术, 如磁力显微镜(Magnetic Force Microscopy, MFM)、压电力显微镜(Piezoresponse Force Microscopy, PFM)等, 拓展了无液氦低温显微系

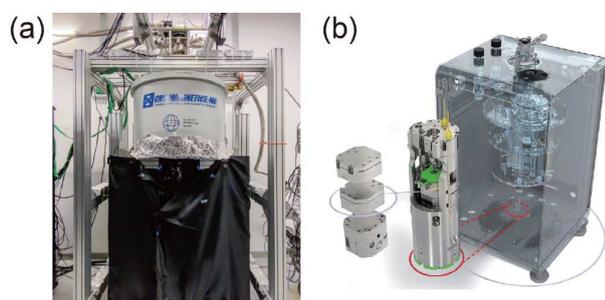


图 2 (a) 无液氦低温磁光显微系统; (b) 无液氦低温扫描探针显微系统⁶⁾

Figure 2 (a) Cryogen-free low-temperature magneto-optical microscope; (b) cryogen-free low-temperature scanning probe microscope⁶⁾.

统的应用范围, 使其实现了高分辨率的多功能物态表征, 为凝聚态物理、材料科学等领域的研究提供了更加灵活和高效的工具.

然而, 插杆类扫描探针显微系统150 pm的振动水平与原子大小相近, 难以实现原子级的空间显微成像. 另外, 运行在低温氦气环境中易导致气体分子在样品表面产生吸附, 从而阻碍其实现原子级的空间分辨. 要突破这一限制, 亟需发展具备超高真空(Ultrahigh Vacuum, UHV)环境的无液氦STM. UHV环境能够消除气体吸附的影响, 为实现长时间的原子分辨实验提供更加稳定的测量环境.

2 基于振动隔离技术的无液氦制冷技术

为了获得更低振动的无液氦UHV低温环境, 扫描隧道显微技术领域一直在致力于发展低振动的无液氦制冷技术. 图3展示了目前主流的三种能够实现原子级空间分辨能力的无液氦制冷隔振设计.

图3(a)是一种通过氦交换气实现制冷机与测量设备间制冷功率传导的结构设计, 这是目前主流的无液氦UHV-STM的设计方案^{7)8)9)[5-9]}. 无液氦制冷机的冷头通过冷头支架固定于地面, 将振动能量传导至地面, 而冷头与真空腔体之间通过一段密封的波纹管连接. 波纹管可以由橡胶、特氟龙或金属焊接波纹管制成. 由于波纹管具有柔性, 当冷头的振动通过波纹管传导至真空腔体时, 振动幅度会大幅降低, 从而实现有效的振动隔离. 密封波纹管內充填氦气, 使冷头的一级、二级冷端与腔体内的两个低温端(一级制冷界面、二级制冷界面)进行热交换. 基于腔体上的两个制冷界面, 可以在UHV环境內设计安装低温冷屏, 并安装所需的测量设备.

在此设计中, 冷头的振动通过支架传递至地面, 因此在制冷机运行时, 地面会出现来自制冷机的振动. 为了隔离由地面传导至真空腔体的振动, 真空腔体被安装在具有隔振功能的平台上. 由于制冷机固定在地面往往无法移动, 而隔振平台的运行会导致桌面及腔体内设备出现毫米级的移动, 因此在系统设计安装时需

6) Attocube systems AG, <https://www.attocube.com/en>.

7) RHK Technology, <https://www.rhk-tech.com>.

8) UNISOKU Co., Ltd., <https://www.unisoku.com>.

9) 埃频(上海)仪器科技有限公司, <http://www.aipin-instruments.com>.

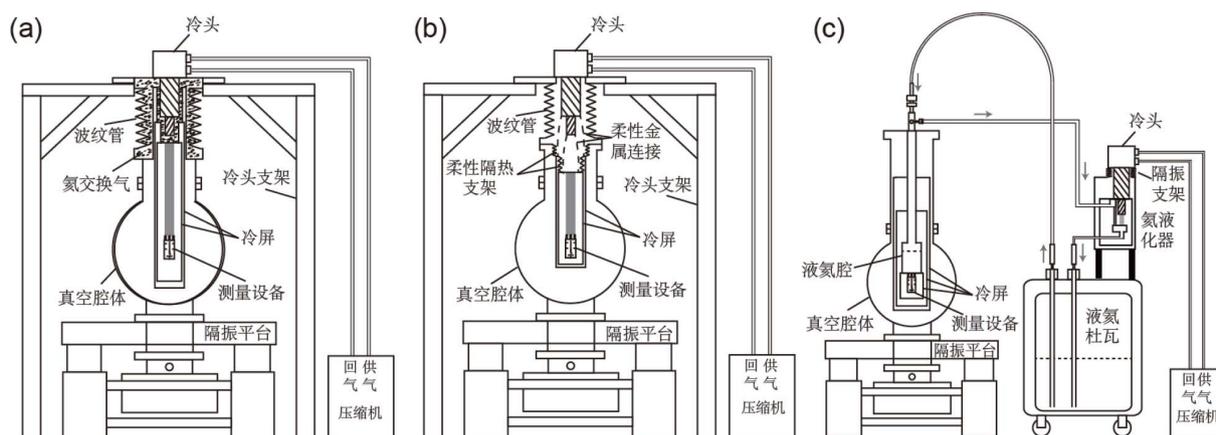


图 3 (a) 采用氦交换气导冷的无液氮制冷隔振结构; (b) 采用柔性金属导冷的无液氮制冷隔振结构; (c) 基于远端氦气液化模式的无液氮制冷系统

Figure 3 Cryogen-free refrigeration with vibration isolation structure based on helium exchange gas (a) and flexible metal (b); (c) cryogen-free refrigeration based on helium gas remote liquefaction system.

要在冷头和腔体之间保留一定的冗余. 尽管如此, 由于氦气常压下的热导率远小于金属, 因此不宜在冷头和腔体制冷界面之间设置太大的间隙, 同时还应设计鳍片增加冷头和制冷界面之间的导热面积.

在此隔振结构中, 测量设备的振动噪声主要取决于冷头的振动幅度、波纹管的隔振效果以及减振平台的性能. 对于冷头的振动, 安装在牢固且具有大质量的支架上是相对有效的解决方案, 但还需考虑安装环境的空间限制和承重能力. 在波纹管 and 减振平台的设计上, 降低其有效弹性模量形成更低的共振频率是基本原则, 并可考虑增加振动从冷头传播到测量设备的阻尼. 对于波纹管, 适当降低波纹管壁的厚度并增加长度是实现有效隔振的关键. 当隔振效果依然不理想时, 可以在波纹管中段增加二级固定支架至地面, 有效降低冷头往腔体传导的振动. 对于减振平台, 一方面可以通过增加系统桌面的质量降低振动幅度, 另一方面, 选择共振频率更低的减振装置也是尤为重要的.

图3(b)展示了一种采用柔性金属导冷的无液氮隔振制冷结构^[10]. 与图3(a)中的氦交换气导冷结构类似, 冷头仍然通过支架固定在地面上, 但不同的是, 冷头与腔体之间的波纹管不再单独填充氦交换气, 而是直接将波纹管设计为UHV腔体的一部分. 腔体固定在减振平台上, 以隔离来自地面的振动. 冷头的两级冷端通过柔性金属将制冷量传导至一级和二级制冷界面, 并

从制冷界面处安装冷屏. 由于金属的热导率比常压氦气高出2-3个数量级, 因此金属连接使用较长的安装间距, 避免了氦交换气结构中冷头与腔体碰撞的潜在问题. 此外, 由于真空腔体内的一级和二级制冷界面没有安装固定点, 因此可通过柔性隔热支架与腔体固定, 这一支架设计需要同时实现制冷界面的低振动, 以及确保与高温端之间的热交换最小化.

图3(a)和(b)中的设计将冷头直接安装在低温测量设备的腔体上, 这种结构能够高效利用冷头的制冷功率, 但需要基于系统的整体设计, 并结合实验室的搭建和改造需求. 对于常规的液氮低温UHV-STM系统, 也可通过将使用后的氦气进行远端重新液化, 实现几乎无液氮消耗的闭循环运行能力, 其结构如图3(c)所示. 这类系统使用基于无液氮制冷机的远端氦液化器进行氦气的液化, 液化后产生的液氮可重新保存进液氮杜瓦, 并与液氮制冷的低温测量设备构成连续流制冷结构; 也可采用更加紧凑和低氦气存量的结构设计, 直接将液化后产生的液氮导入低温测量系统, 仅通过少量氦气的闭循环即可令测量设备实现液氮制冷下的连续运行^{[10][11]}. 这一结构具有很强的通用性, 能够直接应用于常规液氮STM系统以及其他连续流液氮制冷的低温实验系统. 由于制冷机没有直接连接到探测设备的腔体, 振动主要通过远端氦液化器和测量设备腔体之间的液氮管道传导. 因此, 管道可通过有效的振

10) 中科艾科米(北京)科技有限公司, <https://www.acme-bj.com>.

动阻尼措施(如埋入沙箱或与大质量物体固定)来降低传递到腔体的振动. 另外, 氦液化器中无液氦制冷机的安装也可以采用隔振结构, 以减少制冷机对氦液化器传递的振动. 不过, 这类结构对制冷机制冷量的利用率低于图3(a)和(b)中的制冷结构, 无论是液氦杜瓦本身还是液氦的传输过程都会不可避免引入对制冷量的损耗.

尽管无液氦隔振的实现方法有所不同, 这些结构最终都实现了UHV-STM的原子级空间分辨能力. 一方面, 相比传统的液氦STM, 无液氦STM在连续运行时间方面具有显著优势. 在不断电的情况下, 它可以长年维持在最低温状态下进行实验, 所需的设备维护次数极为有限. 另一方面, 根据合理设计制冷机的制冷量, 无液氦STM更适合具有额外低温负载的实验需求, 例如带有超导强磁场的STM系统、设计有光学视窗的STM系统以及引入微波耦合的STM系统. 富余的制冷量和几乎无限的连续运行时间, 使STM的低温端能够通过温度反馈实现极高的温度稳定性. 此外, 由于实际操作中可以等待扫描管的蠕变稳定后再进行高质量扫描成像, 无液氦STM系统的热漂移量比液氦STM系统更低. 不仅如此, 无液氦STM系统更加适合进行变温实验. 变温测量需要加热低温端的扫描探针台, 对于液氦STM系统会极大地增加加热负载, 加速液氦消耗. 无液氦STM能够在制冷机持续运行的状态下升温扫描探针台实现变温, 结合温度反馈控制, 能够长时间维持在变温状态进行稳定的实验测量.

接下来, 我们将介绍几套具有代表性的无液氦STM系统.

3 无液氦扫描隧道显微镜

基于上述三种主要的无液氦制冷隔振设计, 过去10年内涌现出了众多UHV兼容的无液氦STM系统. 图4展示了一些具有代表性的无液氦UHV-STM, 其中图4(a)和(b)采用了基于氦交换气的制冷原理^[5,12]; 图4(c)采用了远端液化模式的无液氦消耗闭循环制冷方案^[11]; 图4(d)通过柔性金属连接制冷机与低温测量设备进行制冷^[10]. 从外观上可以看出, 氦交换气和柔性金属导冷的UHV-STM系统为了实现稳固的冷头固定, 需要设计较为庞大的外部支架. 而采用远端液化系统的无液氦STM则避免了这种支架设计, 具有更加精简

的空间布局. 表1^[5-11,13]汇总了近年主流的无液氦STM系统及其关键性能指标. 通过近10年的发展, 运行在UHV环境下的无液氦STM系统已经能够结合1 K pot或焦耳-汤姆孙(Joule-Thomson, JT)节流效应实现小于1.3 K的最低温度. 同时, 来自无液氦制冷机10 μm 的振动幅度通过各类隔振方案设计, 最终能够在隧穿结位置实现小于2 pm的Z方向稳定性. 如前文所述, 极长的连续运行时间和温度稳定性也实现了极小的系统热漂移性能.

3.1 基于氦交换气的无液氦UHV-STM

基于氦交换气的无液氦制冷隔振结构是最早实现无液氦UHV-STM的设计方案. 图5是本文作者团队研制的无液氦UHV-STM系统, 是最早采用无液氦闭循环制冷机并实现超高真空环境的STM系统(相关专利申请于2014年3月13日, 专利中展示了无液氦STM系统在低温、超高真空环境下的原子分辨能力)^[12], 并使用无液氦消耗的低温STM展示了单分子尺度的非弹性电子隧道谱(Inelastic Tunneling Spectroscopy, IETS)测量^[5]. 该系统使用了GM制冷机进行制冷, 通过氦交换气对STM扫描头进行降温, 最低温度可达15 K, 系统温度波动范围控制在 ± 0.5 mK以内, STM隧穿结在Z方向的稳定性约2 pm.

图5(a)展示了无液氦低温STM系统的结构示意图, 详细说明了冷头与UHV-STM系统的相对布局. 冷头被安装在一个独立的支撑框架上, 并固定在地面, 与UHV-STM系统没有直接物理接触. STM系统放置在带有主动减振功能的气浮隔振平台上. 通过橡胶波纹管、氦交换气、支撑框架和主动气动减振台的组合, 该系统实现了对GM制冷机振动的有效隔离, 在低频下显著降低了系统的振动幅度.

图5(b)描述了无液氦制冷隔振界面(Cryogen-Free Interface)和STM的设计细节. 冷头和隔振界面之间通过两级橡胶波纹管中密封的氦气传递冷却功率, 同时实现了机械振动的隔离. 系统通过氦气的热导和对流将冷头的一级、二级冷端有效与腔体的一级、二级制冷界面进行换热. 为了实现高效的氦气换热, 冷头与制冷界面之间的间距不宜设计过大. 一级和二级制冷界面固定延伸出内、外低温冷屏(Outer Shield, Inner Shield), 屏蔽了来自外部300 K环境的黑体辐射, 从而使STM扫描头达到最低15 K的低温状态. 在扫描头的

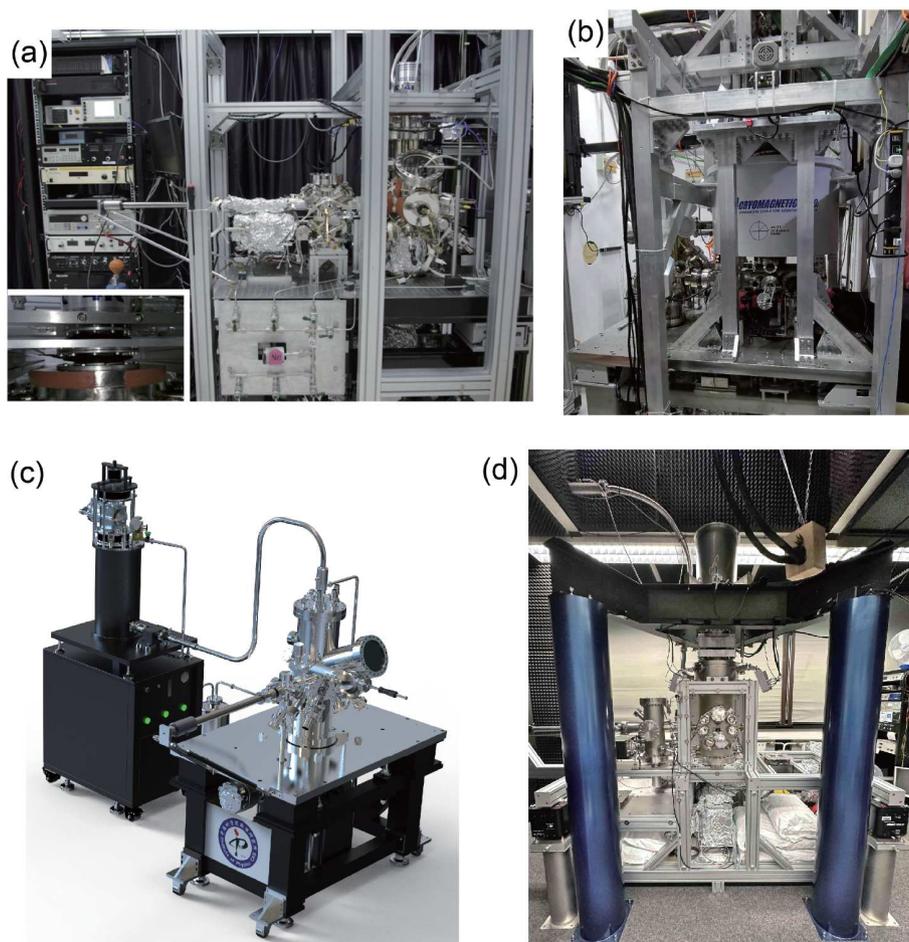


图 4 (a) 国际上最早基于氦交换气导冷结构研制的无液氦UHV-STM^[5,12]; (b) 基于氦交换气和1 K pot制冷的1.3 K无液氦UHV-STM; (c) 基于远端液化模式的无液氦UHV-STM^[10] [11]; (d) 基于柔性金属导冷结构的无液氦UHV-STM^[10]

Figure 4 (a) The world's first cryogen-free UHV-STM based on helium exchange gas cooling structure [5,12]; (b) 1.3 K cryogen-free UHV-STM based on helium exchange gas and 1 K pot cooling structure; (c) cryogen-free UHV-STM based on remote liquefaction^[10] [11]; (d) cryogen-free UHV-STM based on flexible metal cooling structure [10].

设计中, 考虑到制作材料在15 K温度时仍具有显著的热膨胀系数, 系统在二级制冷界面采用了温度反馈系统以实现更高的温度稳定性. 同时, 扫描头使用了Be-soccke型设计, 有效补偿了因温度波动引起的隧穿结漂移. 扫描头通过弹簧悬挂在二级制冷界面下方, 底部设计有磁铁, 并通过与内冷屏之间的涡流阻尼效应进一步减少振动.

凭借极高的系统振动稳定性和温度稳定性, 该系统成功实现了单分子尺度的IETS d^2I/dV^2 谱和显微成像. 图5(c)展示了在Ag(110)表面上的单个CO分子及其STM隧穿电流 I/V 曲线、 dI/dV 和 d^2I/dV^2 谱的测量结果. 数据显示在IETS d^2I/dV^2 谱 ± 19 mV处出现的反对称峰和谷, 表明CO分子在Ag(110)表面上的受限旋转模式

(Hindered Rotation Mode). 图5(d)和(e)展示了单个CO分子的IETS d^2I/dV^2 显微成像及其横向剖面曲线, 清晰显示了IETS信号主要集中在CO分子区域, 证实了IETS测量探测到了分子在Ag(110)表面上的振动模式.

成功研制基于氦交换气制冷隔振结构的STM系统证明了无液氦STM技术的可行性. 此后, 领域内开始致力于进一步发展和优化其制冷性能, 力求接近4.2 K的液氦温度. 制冷性能的优化主要体现在提升无液氦制冷机的制冷功率以及设计更高效的多层热辐射屏蔽结构. 在无液氦制冷机的选择方面, 早期的无液氦STM系统使用了一级冷端约3 W@50 K和二级冷端0.5 W@4.2 K的制冷功率配置. 二级冷端的制冷功率与传统液氦STM系统相当, 限制扫描头进一步达到更

表 1 近年主流的无液氦UHV-STM系统及其关键性能指标

Table 1 Recent state-of-the-art cryogen-free UHV-STM systems and their key performance specifications

| 制冷架构 | 最低温度 (K) | Z方向稳定性 | 热漂移 | 磁场 | 参考数据来源 |
|--------|----------|---------|-----------------------------------|---------|-------------|
| 氦交换气导冷 | 15 | ~2 pm | Z: ~0.06 pm/min | – | [5] |
| 氦交换气导冷 | 16 | ~1.5 pm | XY: ~18 pm/h | – | [6] |
| 氦交换气导冷 | 1.4 | ~0.7 pm | – | 9 T | [8] |
| 氦交换气导冷 | 1.3 | ~1 pm | XY: ~26 pm/h, Z: ~0.01 pm/min | 4 T/2 T | 作者实验室的第二代装置 |
| 氦交换气导冷 | 1.2 | ~2 pm | XY: ~50 pm/h, Z: ~0.08 pm/min | – | 9) |
| 氦交换气导冷 | 9 | ~1 pm | XY: ~20 pm/h, Z: ~0.014 pm/min | – | 7) |
| 氦交换气导冷 | 13 | “原子像” | – | 5 T/1 T | [7] |
| 氦交换气导冷 | 5 | ~2 pm | XY: ~28 pm/h | – | 8) [9] |
| 氦气远端液化 | 2.8 | ~1 pm | XY: ~10 pm/h, Z: ~0.08 pm/min | – | [11] |
| 氦气远端液化 | 4 | ~2 pm | XY: ~100 pm/h, Z: ~0.3 pm/min | – | 10) |
| 柔性金属导冷 | 1.5 | ~0.3 pm | XY: ~18 pm/h | – | [10] |
| 插杆式导冷 | 4.6 | “原子像” | XY: ~41.6 pm/h | 9 T | [13] |

低温度的主要瓶颈在于一级冷端的制冷功率不足。一级冷端较低的制冷功率无法有效减少外冷屏受到的300 K腔体热辐射负载。因此，通过选用制冷功率更大的无液氦闭循环制冷机，一级冷端的制冷功率从3 W@50 K提升至40 W@45 K，使得外冷屏温度能够降低至接近液氮温度。此外，通过在外冷屏外部增加更多绝热金属屏蔽层，进一步减少了来自300 K腔体的热辐射负载。这些优化措施使得外冷屏的最低温度降低到60 K以下，内冷屏温度降至10 K以下，从而使氦交换气STM系统中的扫描头能够成功达到4–5 K的液氮温度。

3.2 基于氦交换气的1.3 K无液氦UHV-STM

在成功研制基于氦交换气的无液氦UHV-STM系统后，本文作者团队进一步研发了具备更低温度的STM系统，目标实现小于2 K的无液氦连续运行能力。该系统的低温设计思路是选用合适的无液氦制冷机以提供足够的低温制冷功率，结合高效的热屏蔽层结构，使无液氦制冷机能够在氦气环境中液化氦气，并通过真空泵降低液氦的气压环境，进一步获得更低温度的液氦。

图6(a)展示了该系统的主要结构。真空系统安装在主动减振平台上，超高真空腔体穿过室温孔超导磁体，腔体与磁体室温孔没有物理接触，以避免磁体对

腔体带来的振动影响。冷头和无液氦制冷隔振界面位于真空系统顶部，冷头与磁体通过同一组支架固定在地面上(为简洁起见，图中未绘制支架)。系统选用了电机分离式的PT制冷机，其二级冷端具备1.5 W@4.2 K的制冷功率，能够满足氦气液化的需求。室温孔超导磁体也采用无液氦制冷，使用第二台独立的1.5 W@4.2 K的脉管制冷机进行降温。

图6(b)展示了实现1.3 K的无液氦低温制冷结构。与图5中的无液氦STM类似，冷头与STM的低温部件之间通过氦气进行热交换，氦气被密封在柔性的波纹管内。由于冷头的二级冷端拥有足以产生液氦的制冷量，产生的液氦会因重力下落到二级制冷界面上，因此，二级冷端与二级制冷界面之间不需要为增加氦气热导率而设计较小的间距。相反，二级制冷界面积累的液氦如果较多，可能会接触到冷头，使冷头振动通过液氦传递到制冷界面上。因此，在二级冷端与二级制冷界面之间保留较大的间距是有必要的。

与图5系统相比，1.3 K的STM系统增加了1 K pot的低温设计结构^[14]。原理上，如果直接使用真空泵抽取制冷界面的液氦会显著增加液氦的蒸发速度，占用大量无液氦制冷机的二级冷端制冷功率，同时需要高抽速的真空泵来实现负压环境，且液氦的蒸发同时会带来较大的振动噪声。为了平衡液氦的制冷量与消耗

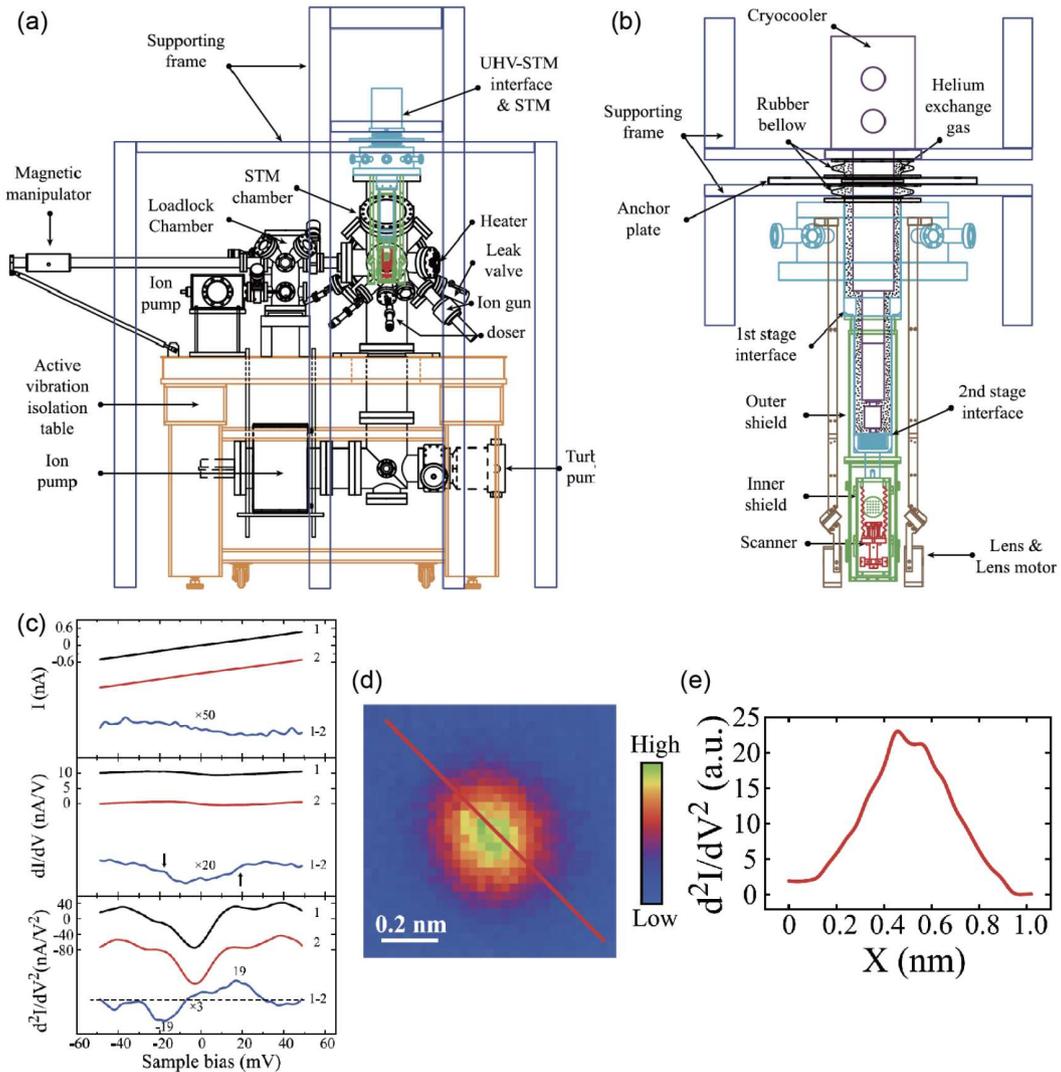


图 5 (a) 基于氦交换气导冷的无液氦UHV-STM结构示意图^[5]; (b) 氦交换气制冷界面结构示意图; (c) 使用钨针尖在单个CO分子及Ag(110)表面测得的 I 曲线(高)、 dI/dV 谱(中)和 d^2I/dV^2 谱(低), 实验温度: 16 K; (d), (e) 单个CO分子的 d^2I/dV^2 显微成像(d)及横向剖面曲线(e). 设置参数: 0.2 nA@19 mV

Figure 5 (a) Schematic of the cryogen-free UHV-STM based on helium exchange gas [5]; (b) details of the helium exchange gas interface structure; (c) I versus V curve (top), dI/dV spectrum (middle), and d^2I/dV^2 spectrum (bottom) measured with a W tip on a single CO molecule and Ag(110) substrate at 16 K; (d), (e) d^2I/dV^2 microscopic image (d) and a line-cut (e) of the CO molecule. Setpoint: 0.2 nA@19 mV.

速度, 系统在二级制冷界面基于极细毛细管(Capillary)实现了液氦的流阻部件, 只允许少量液氦流入1.3 K腔室. 真空泵仅抽取1.3 K腔室内的液氦, 降低其内部的氦气压力, 从而达到小于2 K的温度. 通过合理设计液氦流阻的大小以及选择合适的真空泵, 该系统最终能够在最低小于1.3 K的温度下实现连续运行(如图6(c)所示), 并且在1.5和2 K下分别有~8和~24 mW的制冷功率. 真空泵抽出的氦气通过气路重新回到制冷界面的氦气下重新冷却液化, 形成闭循环的1.3 K无液氦

制冷.

为了进一步稳定系统在最低温状态下的温度, 1.3 K腔室设计了温度反馈回路. 当温度反馈设置在1.25 K时, 系统能够实现小于 ± 0.4 mK (峰-峰值)的温度波动. 图6(d)和(e)分别展示了针尖-样品在竖直方向和水平方向的热漂移测量结果. 在系统位置稳定约24 h后, 针尖隧穿电流在0.12 nA关闭反馈下的变化率为 -2.35×10^{-5} nA/min, 对应竖直方向热漂移小于0.01 pm/min (图6(d)), 水平方向的热漂移小于26 pm/h

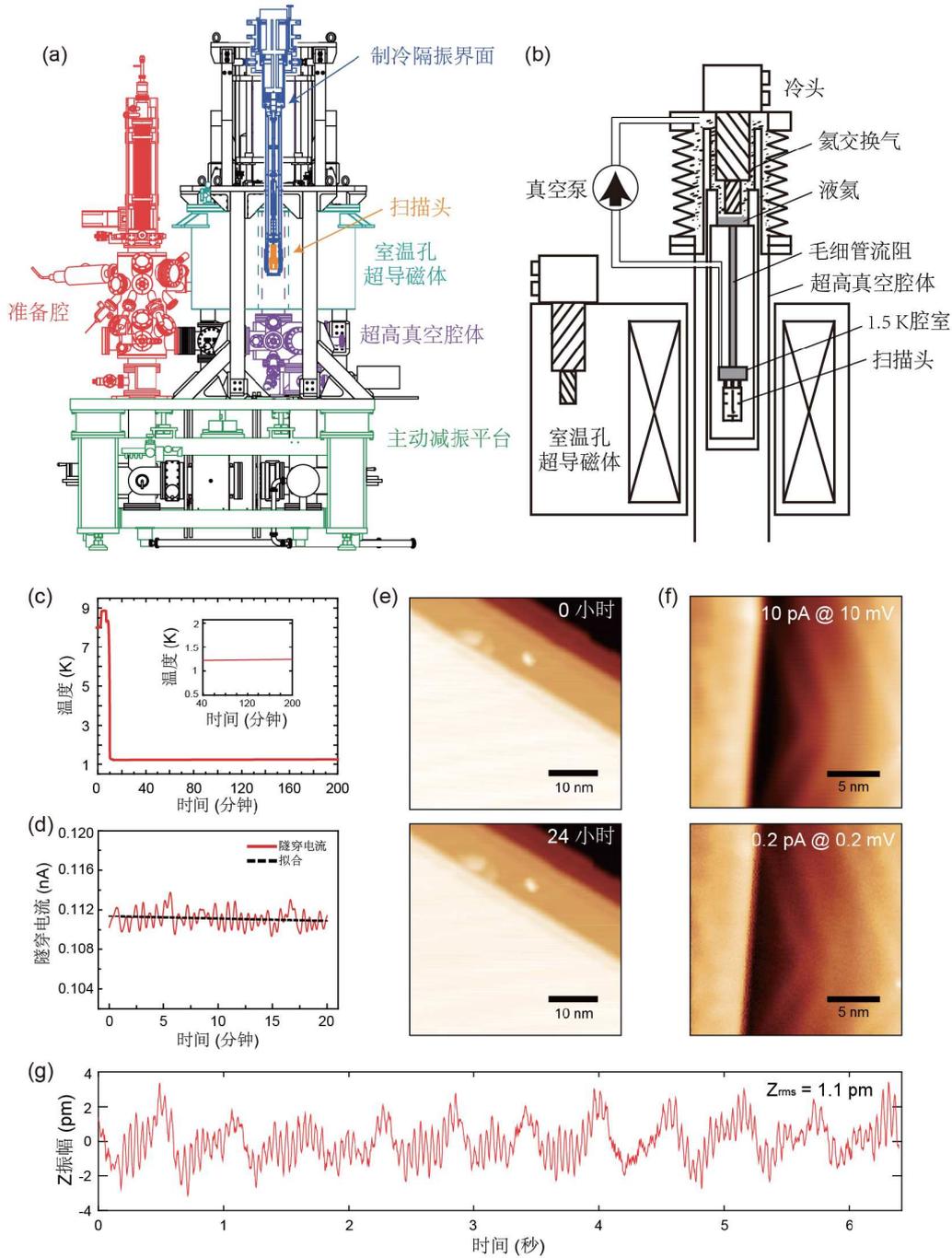


图 6 (a) 基于氦交换气和 1 K pot 制冷结构的无液氦 UHV-STM 结构示意图. (b) 氦交换气和 1 K pot 制冷结构的示意图. (c) 1 K pot 的最低温度曲线. (d) 反馈关闭状态下 STM 的隧穿电流随时间变化曲线, 线性拟合斜率为 -2.35×10^{-5} nA/min. 实验使用钨针尖和 Au(111) 衬底, 偏压设置: 0.8 V. (e) Au(111) 的 24 h 显微成像. (f) 最小隧穿电流 (0.2 pA) 下的 Au(111) 显微成像. (g) 针尖 Z 方向振幅随时间变化曲线, 偏压参数: 1 nA@1 V, 测量带宽: 1.6 kHz

Figure 6 (a) Schematic of the cryogen-free UHV-STM based on helium exchange gas and 1 K pot. (b) Details of the helium exchange gas interface and 1 K pot structure. (c) Base temperature curve of 1 K pot. (d) Time-dependent STM tunneling current with feedback off, the slope of the linear fit is -2.35×10^{-5} nA/min. The measurement was performed with a W tip on Au(111) substrate, bias voltage: 0.8 V. (e) 24 h STM imaging of the Au(111) substrate. (f) STM imaging of Au(111) at minimum tunneling current (0.2 pA). (g) Time-dependent Z amplitude variation, setpoint: 1 nA@1 V, measurement bandwidth: 1.6 kHz.

(图6(e)). 图6(f)为STM系统在最小隧穿电流下的运行水平, 能够实现最小0.2 pA的显微成像能力. 图6(g)显示了STM针尖在垂直方向1.1 pm的噪声水平(测量带宽1.6 kHz).

3.3 基于远端液化模式的无液氦消耗UHV-STM

对于常规的液氦UHV-STM系统, 通过远端液化模式的闭循环来实现基本无液氦消耗连续运行也是一种可行方案. 这一模式能够直接应用于大量现有的液氦低温系统, 也在一定程度上避免了对实验室进行空间改造.

图7是一套基于远端液化模式的无液氦STM系统^[11], 最低温度可达到~2.84 K, 并且在4 K温度下的温度波动范围可以控制在 ± 0.1 mK以内. 这一温度稳定性确保了低温环境下的高分辨率显微成像和STS谱测量. 该系统具有较低振动水平, 通过采用远端氦液化器的闭循环制冷方案, 来自制冷机冷头的振动噪声被有效隔离和减弱. 此外, 该系统具有优异的IETS谱探测水平, 能够对单分子进行高能量分辨的分子振动模式探测, 这得益于该系统的高信噪比和出色的热稳定性.

图7(a)展示了这套STM系统闭循环制冷结构的示意图, 其主要组成部分包括氦补充系统、STM系统和

气路系统. 在氦补充系统中, GM制冷机位于独立的氦液化腔室内, 液化腔与STM系统通过液氦传输管相连. GM制冷机通过其冷头一级和二级冷端对合计约10 L的氦气进行冷却, 液化后的液氦通过传输管送入安装在STM系统顶部的连续流低温恒温器, 用于进一步冷却扫描头. 在冷却样品后, 液氦蒸发形成的氦气会通过气路系统中的回流管道返回氦液化腔, 完成氦气的闭循环. 气路循环中安装有循环泵, 可以在需要时降低连续流低温恒温器内液氦的气压, 进一步降低STM的最低温度. 但这一操作会增加液氦蒸发的速度, 且液氦蒸发时产生的气泡可能会产生额外的系统噪声. 为了减小GM制冷机振动对STM系统的影响, GM制冷机通过三个金属波纹管悬挂在液化腔上, 使波纹管起到一定的振动隔离. 液化腔内, 氦气在柔性波纹管内, 波纹管与GM冷头的一级、二级冷端进行换热, 冷却的氦气再通过针阀利用节流效应液化, 其中形成的超流相液氦也能避免带入额外振动.

图7(b)为使用吸附了CO分子的探针在Ag(110)表面进行IETS的测量结果及示意图. IETS谱中出现了多个峰值, 对应于CO分子的不同振动模式. 其中, 2.2和9.6 meV的峰值对应CO分子的受限平移模式(FT模式), 而18.0和25.2 meV的峰值对应受限旋转模式(FR模式), 而34.0 meV的峰值对应受限旋转模式(FR模式).

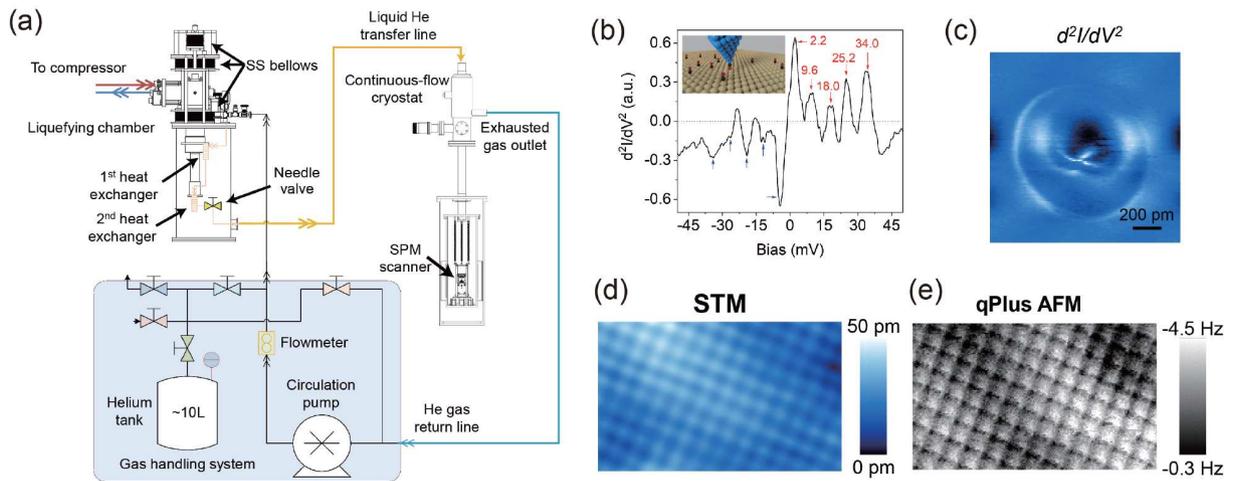


图7 (a) 基于远端液化模式的无液氦UHV-STM结构示意图^{[10][11]}; (b) 使用CO分子吸附的Pt-Ir针尖在Ag(110)衬底测得的 d^2I/dV^2 谱; (c) 使用CO分子吸附的Pt-Ir针尖对单个CO分子进行 d^2I/dV^2 成像, 设置参数: 110 pA@9.6 mV; (d), (e) Au(111)上生长的双层NaCl(100)的STM恒流模式成像(d)及NC-AFM恒高模式 Δf 成像(e). STM设置参数: 300 pA@-1 V, NC-AFM qPlus振幅: 700 pm

Figure 7 (a) Schematic of the cryogen-free UHV-STM based on remote liquefaction^{[10] [11]}; (b) d^2I/dV^2 spectrum measured with a CO-adsorbed Pt-Ir tip on Ag(110) substrate; (c) d^2I/dV^2 image of a single CO molecule measured with a CO-adsorbed Pt-Ir tip; (d), (e) constant-current STM image (d) and constant-height (Δf) NC-AFM image (e) of bilayer NaCl(100) on Au(111). STM setpoint: 300 pA@-1 V, NC-AFM qPlus oscillation amplitude: 700 pm.

此外, 还可以观察到34.0 meV处的FR模式的谐波. 图7(c)为使用CO分子修饰的探针对单个CO分子进行的 d^2I/dV^2 显微成像, CO分子表现为亮环状结构, 并且在中心显示了细微的结构特征.

图7(d)和(e)分别展示了基于qPlus探针在STM模式和非接触式AFM(NC-AFM)模式下获得的双层NaCl(100)岛的成像结果. STM成像显示了NaCl的原子结构, NC-AFM频移(Δf)成像在恒高模式下扫描样品表面得到的NaCl原子结构与STM成像的结果一致, 表明了系统在AFM模式下也具有出色的稳定性和分辨率.

3.4 采用柔性金属导冷的无液氦UHV-STM

除了使用氦交换气制冷的无液氦架构, 无液氦STM也可通过柔性金属连接的形式将冷头的制冷量传导到STM. 这一架构的优势在于金属有远高于氦气的热导率, 因此不需要设计类似氦交换气的制冷界面式结构, 所有热传导机制都可以在UHV环境中完成.

图8介绍了采用柔性金属导冷的UHV-STM系统^[10]. 该系统使用PT制冷机产生4.2 K下的制冷功率, 并使用JT制冷单元实现小于2 K的最低温度. 该系统

能够在1.5 K下工作, 扫描探针Z方向的噪声水平低至300 fm, 具有极高的显微成像精度和稳定性. 系统通过多个振动隔离结构, 包括使用柔性铜线、弹簧悬挂和最小刚度隔振设计等, 成功隔离了PT制冷机产生的振动. 此外, STM主体采用轻质且刚性的Shapal材料, 进一步降低了低频振动对STM的影响. 系统隧道结的电压噪声为120 μ V, 并通过一个射频天线能够提供高达40 GHz的微波激励.

图8(a)展示了系统的工作原理和隔振设计. 为了在确保制冷效果的同时隔离来自PT制冷机的振动, 系统采用了多重隔振结构. PT制冷机通过支架固定到地面, 冷头一级、二级冷端通过直径为50 μ m的柔性细铜丝与内、外冷屏连接, 这些铜丝提供了良好的导热性和机械隔振效果. 冷屏与UHV腔体之间使用不锈钢片制成的蜂窝状网格结构进行连接, 采用激光焊接的方式制成. 这一结构能够有效悬挂起相关冷屏和其他重量较大的部件, 而不引入较大的漏热和额外的机械振动. STM扫描头通过三根弹簧与JT制冷单元相连, 进一步减少低频振动向扫描头的传递. 此外, UHV腔体与PT制冷机通过两个金属波纹管连接, 这些波纹管

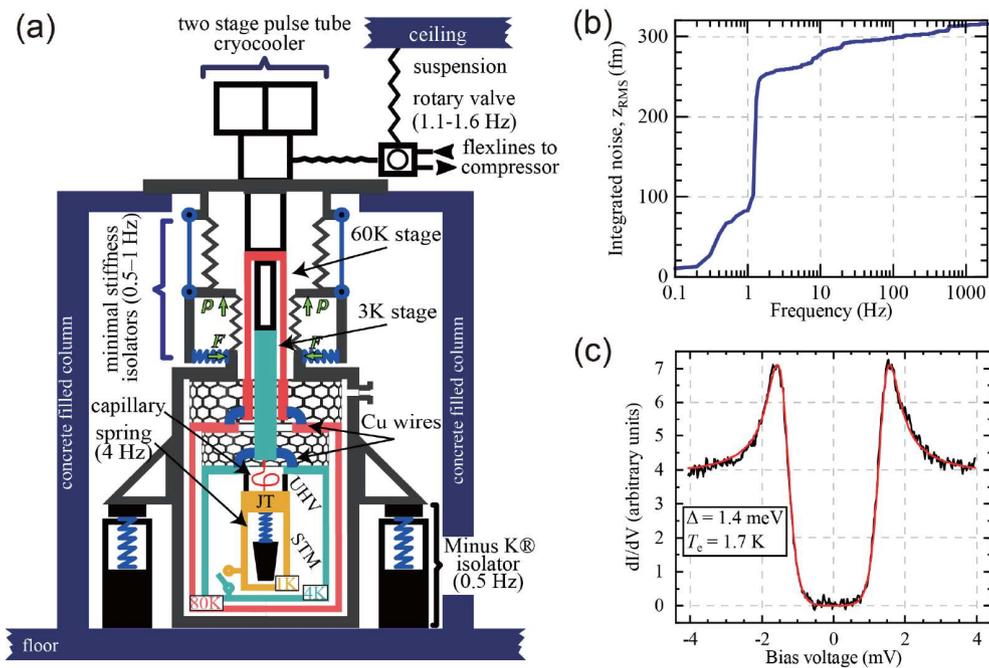


图 8 (a) 基于柔性金属导冷的无液氦UHV-STM结构示意图^[10]; (b) Z方向积分噪声的频谱曲线; (c) 使用覆盖有铅的钨探针在Au(111)测得的STS谱. 设置参数: 100 pA@6 mV, 测量温度: 1.7 K
Figure 8 (a) Schematic of cryogen-free UHV-STM based on flexible metal [10]; (b) frequency spectrum of integrated Z noise; (c) STS curve of a Pb-coated W tip on Au(111) substrate. Setpoint: 100 pA@6 mV, temperature: 1.7 K.

外具有最小刚度隔振设计, 采用外部弹簧能够对波纹管结构的有效刚度进行调节, 使其共振频率低至 0.5–1 Hz, 从而有效减小PT冷头向腔体的振动传递。

系统的振动隔离效果较好, 扫描探针能够达到亚皮米的垂直方向噪声水平. 图8(b)展示了不同的振动频率对垂直方向积分振动噪声的贡献, 积分振幅在大于 1.3 Hz 的脉管制冷机工作频率后显著增加, 但仅为 300 fm 量级, 且这振幅一直维持到了 5 kHz 的频率范围. 图8(c)展示了使用覆盖有铅的钨探针在Au(111)表面测量超导隧道结的STS谱曲线, 显示铅的超导能隙. 基于BCS模型的拟合曲线, 确定了超导能隙为 1.4 meV, 电子温度为 1.7 K, 略高于 1.48 K 的晶格温度。

3.5 采用插杆结构的无液氦UHV-STM

无论是采用氦交换气还是柔性金属导冷的UHV-STM系统, 都依赖于实验室内稳定的冷头固定支架, 这通常需要占用较大的实验室空间, 甚至可能需要对实验室进行一定程度的改造. 相比之下, 插杆式无液氦制冷系统具有成熟的低温架构, 能够实现更紧凑的设备尺寸, 并且更容易兼容变温、强磁场环境, 使其成为实现非超高真空无液氦STM的一个可行的方案^[15]。

通过有效隔离插杆式无液氦制冷系统的机械振动, 并设计符合UHV要求的低温制冷结构, 插杆式制冷系统也实现了超高真空运行下的STM原子级成像. 文献[13]介绍了一套插杆式结构无液氦制冷系统的UHV-STM. 这套STM系统基于模块化设计, 能够在 4.6 K 低温和 9 T 的强磁场环境下运行, 实现稳定的原子级显微成像. STM在设计上通过内部振动隔离结构实现了小于 $1.2 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$ 的低噪声水平. 此外, 这套系统的扫描头可以在常温和低温区域之间传输, 而不破坏真空环境, 从而能够实现针尖和样品的退火、离子溅射以及电子束沉积等操作, 适用于从毫米到微米尺度的样品, 尤其是二维材料样品的研究。

该系统核心腔室为UHV环境, 腔室插入制冷系统的低温冷孔, 并安装在一个两层的支架桌面, 底层通过聚氨酯材料与低温系统支撑结构相连, 有效减少了外部高频振动向腔室传播. 为了避免核心腔室接触冷孔, 腔室在冷孔中的位置可通过调整顶层桌面来调节. 核心腔室与径向伸缩转移臂(Radial Telescoping Transfer Arm, RTTA)腔室之间安装了金属波纹管和三层聚氨酯支撑结构, 以防止波纹管在真空条件下发生压缩,

并隔离来自真空泵和水冷系统的振动. 腔体和冷孔之间的真空管道使用了金属波纹管和磁涡流阻尼器结构, 用于减少电学真空贯通件附近的振动. 阻尼器采用铜环设计, 并带有多个凹槽以增大磁体与铜环的耦合面积. 隧穿电流和偏压的KF法兰接口处包裹有绝缘胶带以实现电学隔离。

STM扫描头通过设计可沿导轨引导垂直运动, 通过电学连接插座与UHV腔室底端相连以实现对扫描头的控制. 三层真空换热结构包括UHV插入层、二级插入层和外部插入层, 通过三层真空结构隔离振动传递. 氦交换气体填充于外部HV区域和内层HV区域以提高制冷效率. UHV腔室和二级插入层在靠近 40 和 4 K 冷端的区域外侧焊接有铜箔. 这些铜箔通过接触冷端提高制冷效率, 同时不会将冷端的振动传递到UHV腔室, 最终使扫描头能够在 4.6 K 的最低温度下稳定工作. 在UHV腔室内, 为减少来自顶部的辐射热, 扫描头上方设计安装了热辐射屏蔽层. 这些屏蔽层通过不锈钢丝连接, 防止高温端的热辐射加热扫描头. 屏蔽层的高度可调整, 并能够控制扫描头的温度。

STM扫描头的电学连接采用了超高真空内的插座结构, 插座安装在一个内部振动隔离器上. 该隔离器依靠双级波纹管实现振动隔离, 通过设计双级波纹管的不同长度, 使其分别具有不同的共振频率, 其中较短的波纹管共振频率为 20–50 Hz, 较长的波纹管共振频率为 10–20 Hz, 实现了对振动的低通滤波功能. 波纹管下方设计了负K刚度结构, 压缩弹簧作为波纹管的反作用力, 降低了结构的有效刚度. Z轴定位器位于波纹管下方, 通过接触波纹管梁底部的平板来消除振动。

上述隔振设计使STM具有了较好的振动隔离性能, 并能在低温下实现的原子级分辨率. 在没有振动隔离的情况下, 隧道电流噪声水平约 $10 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$. 在启用振动隔离后, 噪声水平显著下降, 低于 $1.2 \text{ pA}/\sqrt{\text{Hz}}$, 并能够在 4.6 K 下获得高定向热解石墨(Highly Oriented Pyrolytic Graphite, HOPG)的原子分辨成像。

4 总结与未来展望

4.1 发展无液氦制冷隔振技术

未来无液氦制冷隔振技术的发展将主要集中在对隔振效果和制冷温度的优化. 在隔振技术方面, 可以进

一步研发新型的系统隔振结构. 例如, 一方面, 可以设计开发专用于无液氦闭循环制冷机的隔振装置, 由于常规的无液氦制冷机只在固定频率下运行, 通过数字化控制的主动式减振系统能够检测和针对制冷机的振动频率与振动幅值进行除振, 从而有效从源头降低振动对测量设备的影响. 另一方面, 可以针对低温端的测量设备设计如负K刚度结构等的被动式隔振单元, 或基于压电陶瓷驱动设计主动式隔振单元.

在制冷技术方面, 基于现有的1 K pot和JT制冷原理, UHV-STM系统已经成功实现了在无液氦隔振条件下达到1.3 K的极低温度. 未来可以在现有极限温度的基础上, 继续发展更低温度的无液氦制冷方案^[14]. 例如, 1.3 K的低温能够液化³He气体, 利用液体³He的节流效应可以将温度降低至300 mK; 利用³He/⁴He稀释制冷技术可以实现低于20 mK的温度; 采用绝热去磁技术可以进一步降低温度至1 mK以下. 这些技术目前已在一些液氦UHV-STM中得以实现, 其在无液氦制冷系统中的应用将为更多低温领域的前沿研究提供强有力的支持.

致谢 特别感谢复旦大学沈健教授、高春雷教授和殷立峰教授及作者团队在无液氦低温扫描隧道显微镜研制过程中的紧密合作和相互扶持; 感谢中国科学院物理研究所郇庆研究员和马瑞松博士提供了基于远端液化模式的无液氦UHV-STM的图片(图4(c)和图7); 感谢RWTH Aachen University的Markus Morgenstern教授和Marcus Eßer提供了基于柔性金属导冷的无液氦UHV-STM的图片(图4(d)和图8).

参考文献

- 1 Binnig G, Rohrer H, Gerber C, et al. Tunneling through a controllable vacuum gap. *Appl Phys Lett*, 1982, 40: 178–180
- 2 Binnig G, Rohrer H, Gerber C, et al. 7×7 reconstruction on Si(111) resolved in real space. *Phys Rev Lett*, 1983, 50: 120–123
- 3 Binnig G, Quate C F, Gerber C. Atomic force microscope. *Phys Rev Lett*, 1986, 56: 930–933
- 4 Zhao Z, Wang C. *Cryogenic Engineering and Technologies: Principles and Applications of Cryogen-Free Systems*. Boca Raton: CRC Press, 2019
- 5 Zhang S, Huang D, Wu S. A cryogen-free low temperature scanning tunneling microscope capable of inelastic electron tunneling spectroscopy. *Rev Sci Instrum*, 2016, 87: 063701
- 6 Hackley J D, Kislitsyn D A, Beaman D K, et al. High-stability cryogenic scanning tunneling microscope based on a closed-cycle cryostat. *Rev Sci Instrum*, 2014, 85: 103704
- 7 Chaudhary S, Panda J J, Mundlia S, et al. A low noise cryogen-free scanning tunneling microscope-superconducting magnet system with vacuum sample transfer. *Rev Sci Instrum*, 2021, 92: 023906
- 8 Huang H, Shuai M, Yang Y, et al. Cryogen free spin polarized scanning tunneling microscopy and magnetic exchange force microscopy with extremely low noise. *Rev Sci Instrum*, 2022, 93: 073703
- 9 Kasai J, Koyama T, Yokota M, et al. Development of a near-5-Kelvin, cryogen-free, pulse-tube refrigerator-based scanning probe microscope. *Rev Sci Instrum*, 2022, 93: 043711
- 10 Eßer M, Pratzner M, Frömming M, et al. An ultra-high vacuum scanning tunneling microscope with pulse tube and Joule-Thomson cooling operating at sub-pm z-noise. *Rev Sci Instrum*, 2024, 95: 123703

4.2 推广无液氦制冷隔振技术的应用场景

现有的无液氦制冷隔振技术在STM应用中已达到仅pm量级的振动噪声水平, 这为应用在其他需要低温环境且对振动高度敏感的精密实验技术奠定了基础. 例如, 可以设计和研发无液氦制冷的低温电子显微镜^[16], 在无液氦消耗的条件下实现接近液氦温度的低温环境, 将为凝聚态物理、材料科学等领域研究材料的新奇物性提供有力支持.

无液氦制冷技术还可以扩展到更多扫描探针显微镜研究中, 例如散射式近场光学显微镜(scattering Scanning Near Field Optical Microscopy, s-SNOM)^[17,18]和太赫兹扫描隧道显微镜(THz-STM)^[19]等依赖外部光源与低温探针耦合的扫描探针技术. 激光的引入及光路设计的视窗元件等会给扫描头带来显著的热负载, 这使基于液氦运行的系统会产生极大的液氦消耗和频繁的液氦补充, 影响实验的连续性和可行性. 相比之下, 无液氦制冷方案不仅能够避免液氦消耗, 还能够实现长时间的连续运行, 将极大提高系统的实验效率.

- 11 Ma R, Li H, Shi C, et al. Development of a cryogen-free sub-3 K low-temperature scanning probe microscope by remote liquefaction scheme. *Rev Sci Instrum*, 2023, 94: 093701
- 12 Wu S, Zhang S, Huang D. A kind of low-temperature scanning tunneling microscope utilizing the refrigeration of closed circuit refrigeration machine. PRC Patent, CN201410091094.8. 2014-03-13
- 13 Coe A M, Li G, Andrei E Y. Cryogen-free modular scanning tunneling microscope operating at 4-K in high magnetic field on a compact ultrahigh vacuum platform. *Rev Sci Instrum*, 2024, 95: 083702
- 14 Ventura G, Risegari L. *The Art of Cryogenics: Low-Temperature Experimental Techniques*. Oxford: Elsevier Science, 2007
- 15 Meng W, Wang J, Hou Y, et al. Atomically resolved probe-type scanning tunnelling microscope for use in harsh vibrational cryogen-free superconducting magnet. *Ultramicroscopy*, 2019, 205: 20–26
- 16 Rennich E, Sung S H, Agarwal N, et al. Ultra-cold cryogenic TEM with liquid helium and high stability. arXiv: 2402.00636
- 17 Yang H U, Hebestreit E, Josberger E E, et al. A cryogenic scattering-type scanning near-field optical microscope. *Rev Sci Instrum*, 2013, 84: 023701
- 18 Kim R H J, Park J M, Haeuser S J, et al. A sub-2 Kelvin cryogenic magneto-terahertz scattering-type scanning near-field optical microscope (cm-THz-sSNOM). *Rev Sci Instrum*, 2023, 94: 043702
- 19 Zhang H, Tian D, Zhan Y, et al. The development of a low-temperature terahertz scanning tunneling microscope based on a cryogen-free scheme. *Rev Sci Instrum*, 2024, 95: 093703

Application of cryogen-free vibration isolation techniques in low-temperature scanning tunneling microscopy

SUN ZeYuan¹ & WU ShiWei^{1,2,3*}

¹ State Key Laboratory of Surface Physics, Department of Physics, Fudan University, Shanghai 200438, China

² Key Laboratory of Micro and Nano Photonic Structures (MOE), Fudan University, Shanghai 200438, China

³ Institute for Nanoelectronic Devices and Quantum Computing, Fudan University, Shanghai 200438, China

*Corresponding author (email: swwu@fudan.edu.cn)

Low-temperature environment is essential to scanning tunneling microscopy (STM), because it not only reduces thermal noise in experimental measurements for improving precision and stability, but also provides extreme experimental conditions for strong-field superconducting magnets and so on. Furthermore, a low-temperature environment enables the exploration of various novel quantum materials and their physical properties, such as topological effects and strong electron correlations. Conventional low-temperature STMs rely on expensive liquid helium, significantly limiting the running time and cost for continuous operations. While cryogen-free closed-cycle refrigeration technology allows for continuous low-temperature operation without liquid helium consumption, atomic-resolved microscopic measurements are challenging due to the appreciable vibration from the closed-cycle cryocoolers and the compatibility with ultrahigh vacuum. This study reviews the latest development of vibration-isolated cryogen-free cooling techniques with their working principles and applications in state-of-the-art STMs.

cryogen-free low-temperature vibration isolation technique, low-temperature scanning tunnelling microscope, scanning probe microscopy, cutting-edge scientific instruments

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

doi: [10.1360/SSPMA-2024-0470](https://doi.org/10.1360/SSPMA-2024-0470)