

## 铁磁共振磁交换力显微镜\*

薛慧<sup>1)</sup> 马宗敏<sup>1)2)†</sup> 石云波<sup>1)</sup> 唐军<sup>1)</sup> 薛晨阳<sup>1)</sup> 刘俊<sup>1)</sup> 李艳君<sup>2)</sup>

1) (中北大学, 仪器科学与动态测试教育部重点实验室, 太原 030051)

2) (日本大阪大学工学研究科精密科学应用物理学专攻, 大阪 565-0871)

(2013年4月13日收到; 2013年6月4日收到修改稿)

原子间的自旋相互作用力对原子级别磁性纳米构造体的表面磁性质的理解是极为重要的. 磁交换力显微镜是测量表面自旋作用力的重要手段, 但它的缺点一是需要加外部强磁场, 二是不能分离表面形貌和自旋信息, 这就导致材料表面受外部磁场的影响, 而且表面形貌和自旋信息之间相互影响, 使自旋间的相互作用力的检测和成像研究受到限制. 为了解决上述问题, 利用原子力显微镜, 并采用微波照射的方法, 根据铁磁共振原理, 分别独立提取磁性材料表面形貌和自旋信息, 称之为铁磁共振磁交换力显微镜, 理论和实验结果表明此方法可以有效地分离两种信息. 铁磁共振磁交换力显微镜可以促进对原子级磁性材料机能的理解以及磁性相关科学领域的进步, 特别是对自旋电子元件的发展有很大的促进作用, 是新世纪高度信息化社会不可缺少的测量技术.

**关键词:** 原子力显微镜, 磁交换力显微镜, 自旋, 铁磁共振

**PACS:** 07.79.Pk, 07.79.Lh, 07.30.-t, 75.25.-j

**DOI:** 10.7498/aps.62.180704

## 1 引言

自旋电子元件的研究是自旋电子学<sup>[1]</sup>提出以后科学研究的又一热门话题, 它结合了半导体、磁性及光电元件设计, 研究金属、半导体、超导体及异质界面中载体传导等自旋动力学知识. 自旋电子器件的创新设计关键在于对原子级别材料的磁性质的分析<sup>[2]</sup>, 因此, 有必要对实空间原子的自旋排列进行研究. 现阶段对磁性材料表面性质研究用到的主要研究工具有: 自旋极化扫描隧道显微镜 (SP-STM)<sup>[3,4]</sup>、磁力显微镜 (MFM)<sup>[5]</sup> 和由非接触式原子力显微镜 (NC-AFM) 发展而来的磁交换力显微镜 (MExFM)<sup>[6]</sup>, 它们将人类的认知水平提高到了原子级别<sup>[7]</sup>, 同时得到了材料 (导体、半导体和绝缘体) 的表面形貌信息和磁信息 (自旋极性信息). 其中 SP-STM 基于 STM 的工作原理, 虽然其测量结果具有原子级别的分辨率, 能够从单个原子的磁性质测量单个自旋的相互作用力<sup>[8]</sup>, 但其应用范围限于导体和一部分半导体材料; MFM 应用不受材

料类型限制, 磁力显微镜虽然十分适合对铁磁材料进行磁性研究, 但是其分辨率一直达不到原子级别 (通常针尖 - 试样表面距离为 10—20 nm, 水平分辨率为 10—50 nm). 其原因是在其探针感知原子间作用力时, 探针顶端原子和试样表面原子间的长程静电力占了主要部分, 而不能很好地感知原子间的短程力.

另一方面, MExFM 是目前测量磁矩 (或自旋) 间相互作用力的重要手段, 由于它基于 NC-AFM<sup>[9-11]</sup>, 所以它不受偏压和电流的影响, 可以直接应用在绝缘体材料表面, 并且可以直接测得针尖与试样表面原子的磁交换作用力<sup>[6]</sup>. 所以 MExFM 既有 NC-AFM 的原子级分辨率, 也具有测量单个电子的自旋灵敏度的能力. 可检测力在使用弹性系数小的探针、超低温环境 (75 K 或者 5 K)、高品质因子和超高真空环境时, 可以有效提高探测灵敏度<sup>[12]</sup>. MExFM 已经在反铁磁性绝缘体表面、反铁磁性金属表面成功地得到原子级别的磁性信息和原子晶格排列信息<sup>[13]</sup>, 实现了在实空间对单个自旋和高能量灵敏度的原子级分辨率的研究.

\* 国家自然科学基金 (批准号: 61274103) 资助的课题.

† 通讯作者. E-mail: mzmncit@163.com

MExFM 对自旋结构和局域自旋激发的研究以及其他磁化敏感的测量开辟了新的研究领域.

然而, MExFM 有两项主要缺陷: 首先, 它不能直接区分表面形貌和自旋极化信息, 两种信息耦合在一起或者只能提供两种信息中的一种; 其次, 由于在探测过程中有外部强磁场的作用, 对磁性材料表面信息的测量有干扰, 得不到所要测量的磁性材料表面真正的磁性信息. 所以, 不受外部磁场干扰, 不受材料导电性限制, 同时可以直接区分表面形貌信息和磁性信息的测量方法是必不可少且急需的. 基于以上的原因, 急需提出一种新的测量方法来

解决上面提到的问题.

## 2 方案的提出

本研究首次提出利用铁磁共振原理 (ferromagnetic resonance, FMR), 采用微波照射磁性探针的方法来实现磁性探针与试样表面产生铁磁共振效应, 利用锁相放大器分别提取磁性材料表面的表面形貌和自旋磁性信息, 达到分离两种信息的目的. 我们称这种方法为铁磁共振磁交换力显微镜 (FMR-MExFM) 方法, 其基本测量原理如图 1 所示.

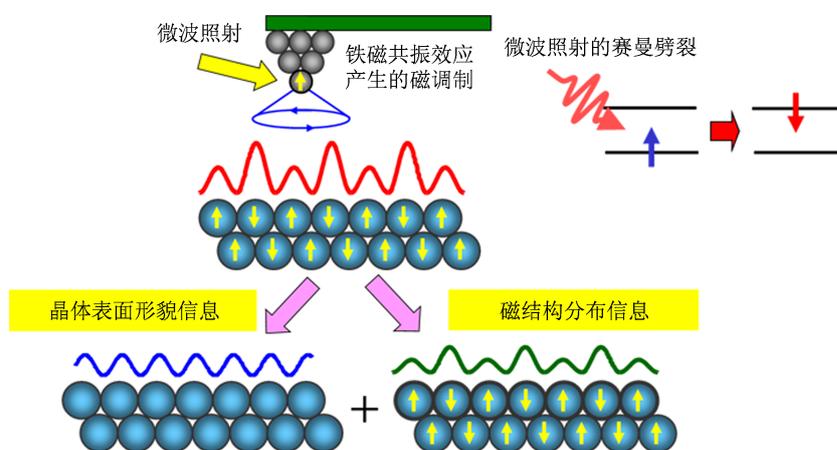


图 1 FMR-MExFM 的工作原理

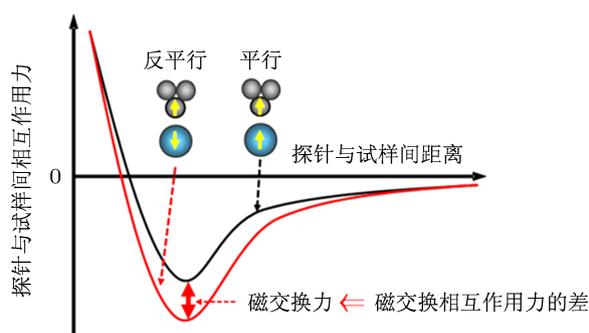


图 2 FMR-MExFM 的力检测原理

FMR-MExFM 之所以能够分离表面形貌信息和自旋信息, 其原因可以用铁磁共振发生时的表面原子与探针的不同作用力<sup>[14]</sup>来解释. 保持针尖样品间距离恒定, 当探针针尖顶端原子磁极与磁场方向一致时, 探针与表面原子自旋磁交换的作用力最大; 当探针针尖顶端原子磁极与磁场方向相反时, 探针与表面原子自旋磁交换的作用力最小. 运用锁

相放大器和软件提取最大作用力和最小作用力的差值 (自旋交换作用力), 运用 AFM 测量原理就得到了表面自旋磁信息, 其自旋交换作用力与针尖 - 表面距离的关系如图 2 所示.

## 3 FMR-MExFM 的原理

### 3.1 铁磁共振理论

本文利用铁磁共振理论研究磁性表面电子自旋的磁交换力, 磁共振是指电荷或者磁矩 (自旋) 在恒定磁场和交变磁场的共同作用下, 当恒定磁场强度与交变磁场满足一定的关系时, 电荷或者磁矩系统从交变磁场吸收能量. 根据塞曼劈裂 (Zeeman splitting), 磁场作用下的能级劈裂  $\Delta E = g\mu_B B$ , 其中  $g$  为 Lande 因子,  $\mu_B$  为磁偶极矩,  $B$  为磁通量密度. 共振发生时,  $\hbar\omega = \Delta E$ , 得到

$$\omega = \frac{g\mu_B B}{\hbar}. \quad (1)$$

此时, 磁化强度  $M = N\mu \frac{e^x - e^{-x}}{e^x + e^{-x}} = N\mu \tanh x \approx$

$\frac{N\mu^2}{k_B T} B$ ,  $N$  为磁化系数,  $k_B$  为玻尔兹曼常数.

交变磁场和静态磁场表示为  $\mathbf{B} = (B_x, B_y, B_z) = (B_1 \cos(\omega t), B_1 \sin(\omega t), B_0)$ .

利用 Bloch 方程:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = \gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{B}) - \mathbf{R}, \quad (2)$$

这里,  $\gamma = \frac{g\mu_B}{\hbar/2\pi}$ ,  $\mathbf{R} = \left( \frac{M_x}{T_2}, \frac{M_y}{T_2}, \frac{M_z - M_0}{T_1} \right)$ , 其中,  $T_1$  为自旋 - 晶格的缓和时间 (spin-lattice relaxation time);  $T_2$  为自旋 - 自旋的缓和时间 (spin-spin relaxation time).

利用坐标变换, 可以求得  $\Delta B$ , 近似可以表示为

$$\Delta B = \frac{2}{\gamma T_2}. \quad (3)$$

这样就确定了自旋缓和时间与共振磁场能量吸收的关系, 可以简单用图 3 表示.

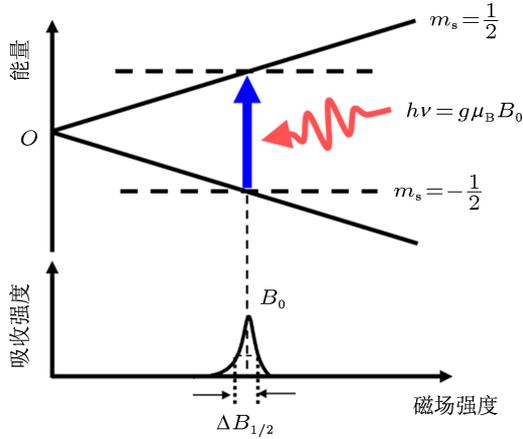


图 3 磁场能量吸收与自旋缓和时间的关系

### 3.2 共振频率的理论确定

本文采用微波照射磁性探针实现磁性探针与磁性试样表面产生铁磁共振效应. 试料的总磁矩可以表示为当旋进 (precession) 周围的静磁场的旋进频率等于横向射频磁场的频率时的能量吸收.

这里, 考虑到共振频率跟试样形状的相互关系, 选择椭圆形的等轴铁磁性物体, 设主轴为正交坐标系  $x, y, z$  轴, 铁磁性体的内部磁场  $B_i$  为

$$B_i = B_{0i} - N_i M_i \quad (i = x, y, z). \quad (4)$$

一次范围内, 由于  $dM_z/dt = 0$  及  $M_z = M$ , 自旋的运动方程式为

$$\frac{dM_x}{dt} = \gamma[\mathbf{M} \times \mathbf{B}_i] = \gamma[B_0 + (N_y - N_z)M]M_y, \quad (5)$$

$$\frac{dM_y}{dt} = -\gamma[B_0 + (N_x - N_z)M]M_x. \quad (6)$$

上述两式中含  $\exp(-i\omega t)$  与时间有关的解的条件为

$$\begin{vmatrix} i\omega & \gamma[B_0 + (N_y - N_z)M] \\ -\gamma[B_0 + (N_x - N_z)M] & i\omega \end{vmatrix} = 0. \quad (7)$$

因此, 当外加磁场为  $B_0$  时, 微波照射下铁磁共振的共振频率为

$$\omega_0^2 = \gamma^2 [B_0 + (N_x - N_z)M][B_0 + (N_y - N_z)M]. \quad (8)$$

磁性体探针与磁性体材料间的动态磁交换力是由探针悬臂梁的共振频率的变化来测定的, 频率变化时, 磁交换力的短程作用力<sup>[15,16]</sup>才能被检测到, 所以共振频率的确定非常关键.

## 4 实验建立

本实验使用自主研制的常温超高真空 FMR-MExFM 系统, 其基于 NC-AFM 的基本测试原理, 使用调频模式 (frequency modulation mode, FM mode), 如图 4 所示. 本系统采用激光束反射的方法检测探针频率变化, 并通过四象限光电二极管把此频率的变化检测出来, 使用锁相环 (PLL) 和自动增益回路 (AGC) 作为反馈环保持探针处于恒幅高频振动 (nanonis system, SPECS Zurich GmbH, Switzerland); 同时锁相环检测的频率变化 ( $\Delta f$ ) 用作另一个反馈环, 保持探针与试样表面的相互作用力梯度 (频率偏移) 恒定 (Specs Zurich GmbH: OC4), 这样就测量出了试样表面的形貌特征; 同时采用微波发生器 (日本 Antitsu 公司) 发生微波, 通过微波照射机构照射磁性探针的表面, 当探针针尖与试样表面产生磁交换作用力时, 使用锁相放大器 (Zurich Instruments: HF2LI) 将此磁信息通过调频模式调制并抽离出来, 得到其相应的振幅和相位信息, 这样就得到了试样表面的磁信息. 通过此系统, 成功实现了试样表面形貌信息和磁信息的分离.

实验所用探针选取 APPNANO 公司的 MAGT-HR 探针, 探针悬臂梁长 225  $\mu\text{m}$ , 弹性系数  $k =$

3.0 N/m, 探针前端曲率半径约为 25 nm, 探针表面蒸镀了一层厚约 30 nm 的 FePt 磁性纳米材料, 这样就保证了探针的表面磁性.

在本实验中, 试料选取部分硬盘材料 (HDD, CoCrPt-SiO<sub>2</sub>). 从硬盘上切割样品 (2 mm × 10 mm),

切割下的样品不同磁道间的分布为, 每个磁道部分 N, S 磁极交替分布, 每级的宽度约为 50 nm, 如图 5 所示. 试料不经特殊处理, 直接放入 FMR-MExFM 主观察室.

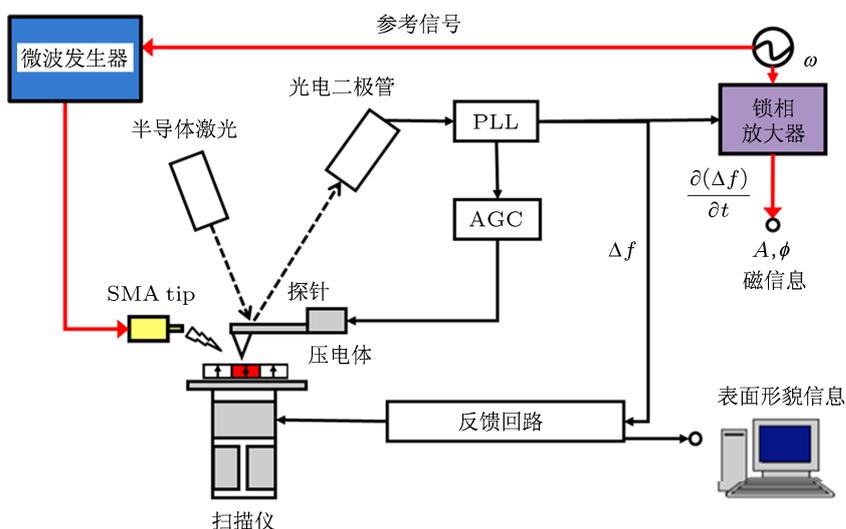


图 4 FMR-MExFM 装置结构

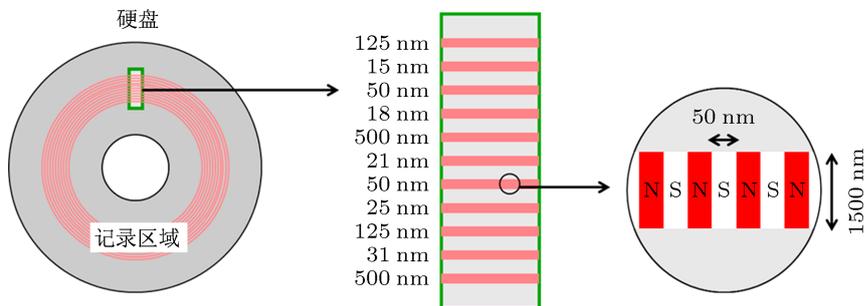


图 5 硬盘切割方法及不同磁道分布示意图

## 5 实验结果与讨论

### 5.1 共振频率的实验确定

总体而言, 微波照射在镀磁性物质的探针上, 随着探针靠近试料表面, 由于表面与探针间的磁性作用和原子间短程化学作用, 探针的频率会发生变化. 此时, 改变微波照射的调制频率, 磁性力会随着微波频率的变化而变化, 当调制频率与磁共振频率一致时, 探针外层的磁性物质受微波的作用发生共振. 利用磁共振频率, 通过调制探针的磁化状态可以得到磁交换力信息, 用锁相放大器抽出探针的频率变化的调制成分, 得到铁磁共振条件下的磁性表

面的磁状态, 同时也就分离出了磁交换力.

在本实验中, 我们使用网络分析仪检测铁磁共振的发生频率. 本次测量中, 网络分析仪的扫描范围从 2 GHz 到 20 GHz, 扫描时间设定为 10 s, 扫描点数为 20001. 图 6 所示为网络分析仪扫描频率与探针频率变化 ( $\Delta f$ ) 的关系实验结果图, 这里截取 2.4 GHz 至 4 GHz 的数据, 其他远离共振频率的点没有表示出来. 在扫描频率约为 2.7 GHz 时, 频率变化有一峰值, 约为 4.03 Hz. 因此可以说, 在微波频率为 2.7 GHz 时, 我们成功地观察到了铁磁共振现象.

当探针靠近磁性表面足够近时, 设定此时探

针的频率变化 (setpoint) 为 2.5 Hz, 应用共振频率为 2.7 GHz 的微波照射探针足够时间后, 关闭微波照射, 此时扫描管  $z$  处于闭环状态, 探针频率的变化约为 2.5 Hz, 说明探针与磁性表面之间没有磁交换力的发生; 此时打开微波照射装置, 扫描管  $z$  处于开环状态, 在微波照射引起的铁磁共振作用下, 探针的频率变化从 2.5 Hz 上升到 2.75 Hz, 此变化  $\delta(\Delta f) = 0.25$  Hz 即为磁交换力作用对应下的频率变化. 实验结果如图 7 所示, “开” 区域为微波照射之前频率的变化, “关” 区域为微波照射探针之后探针频率的变化.

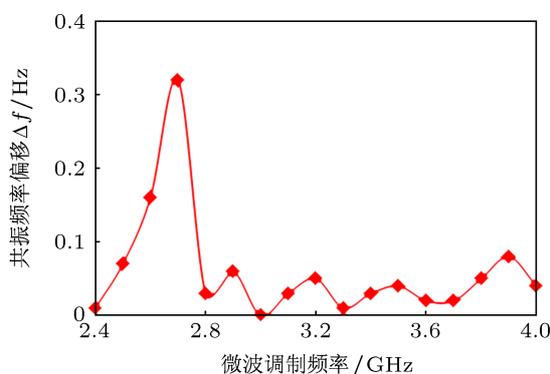


图 6 铁磁共振检测曲线

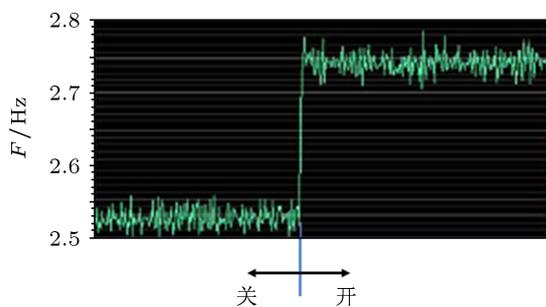


图 7 探针频率变化示意图

为了排除其他因素可能引入的干扰, 使用远离共振频率 (大于 2.8 GHz 或者小于 2.4 GHz) 的微波照射探针, 并且与共振频率为 2.7 GHz 的微波照射进行比较, 并以频率为 5 GHz 的微波照射为例说明 (其他远离共振频率的微波照射结果类似). 图 8 为扫描管  $z$  在照射微波频率在 5 GHz 和 2.7 GHz 照射下随时间变化的关系. 由图 8(a) 可以看到, 当打开微波照射机构时 ( $\omega = 5$  GHz, on 状态), 扫描管  $z$  位移经过 400 s 达到 14 nm; 由图 8(b) 可以看到, 当打开微波照射机构时 ( $\omega$  为 2.7 GHz 的共振频率, on 状态), 扫描管  $z$  位移先经过剧烈震荡, 经过 400 s 后

达到 12 nm. 比较这两个结果可以知道, 共振频率的微波照射探针所引起的频率偏移的变化 (相互作用力的梯度) 对开环扫描管  $z$  的位移的影响在 2 nm 左右, 同时  $z$  位移的漂移影响比远离共振频率的微波照射探针引起的力梯度变化的漂移降低了很多.

通过本实验, 我们确认了使用与磁性探针能发生共振的微波能引起探针和试料表面相互作用力的变化, 换言之, 我们可以通过本方法成功提取试样表面的磁性信息, 排除了其他因素的干扰.

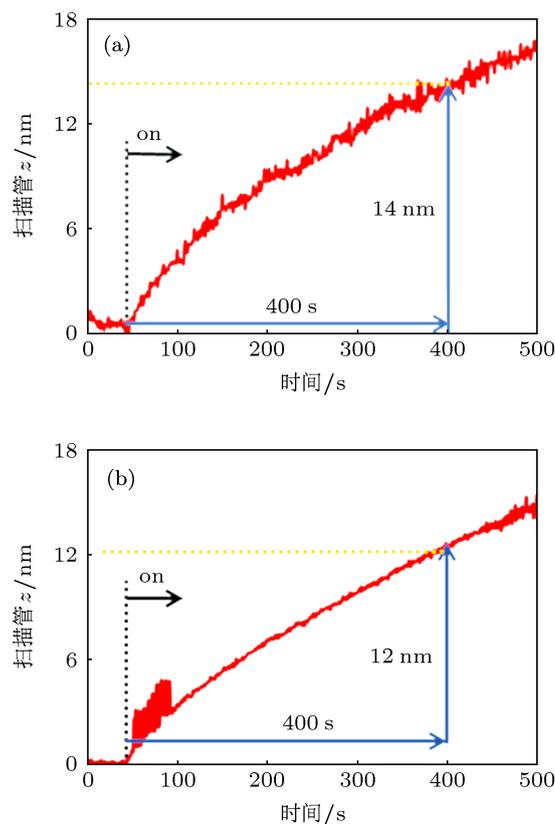


图 8 非共振和共振调制频率对  $z$  位移的影响比较

在以往的研究中, 铁磁共振的研究只提供光谱信息, 缺乏成像能力, 而本研究利用铁磁共振结合 AFM 对材料表面的磁特征进行直观的成像研究, 完成磁交换力的检测和成像. 下面介绍其扫描结果.

## 5.2 硬盘表面磁信息和表面形貌信息的检测

图 9 为利用开发的 FMR-MExFM 系统在磁盘表面的扫描结果, 在本实验中,  $\Delta f = -15$  Hz, 调制频率  $f_{\text{mod}} = 2.7$  GHz, 扫描尺寸为  $350 \text{ nm} \times 350 \text{ nm}$ . 图 9(a) 为硬盘表面磁性信息分布图, 图 9(b) 为硬盘

表面形貌分布图, 图 9(c), (d) 为相应磁性信息图和表面形貌信息图中所示直线的横截面. 由图中可以看到, 磁道 N 极与 S 极的间距约为 50 nm, 高度差约为 4 nm, 这与磁盘磁道的理论值基本一致. 同时, 由表面磁信息分布及其截面图可以看出, 磁道 N 极与 S 极的磁性强度差约为 4.5 Hz (频率变化转化为磁信息前的数值); 在磁信息强度大的区域 (N 极或 S 极), 其中间部分磁强度比边界磁强度低约 1 Hz. 同时, 我们也能清晰地看到磁盘非磁道和磁道表面的吸附物及其磁性变化. 由上述结果可以知道, 我们提出的 FMR-MExFM 成功得到了硬盘表面的磁性信息和表面形貌信息分布, 并达到了纳米级分辨率.

比较本实验结果与文献 [17] 的结果可以知道, 在使用相同材料的情况下, 文献 [17] 运用调频 MFM, 外加交变磁场利用锁相放大器得到了磁性材

料表面的磁性信息, N 极和 S 极的间距约为 50 nm, 相位差约  $180^\circ$ . 但文献 [17] 没有得到 N 极和 S 极的之间形貌和相位的变化. 在本次试验中, 试料表面 N 极和 S 极的间距与文献 [17] 一致, 同时在磁性信息的测量上, 可以清晰地得到 N 极和 S 极的过渡 (锁相信息约 1 Hz). 比较文献 [6] 与本试验结果可以知道, 文献 [6] 中得到了原子分辨率, 同时得到了自旋相同和相反的 Ni 离子与金属针尖间的自旋相互作用力 (两者差值换算后约为 2 pm), 这也几乎是 MExFM 在低温状态下的测量极限. 但是文献 [6] 中的 MExFM 外加强磁场, 使用磁性探针, 在自旋相同或相反的电子测量时, 形貌信息和自旋信息混合在一起, 不能完全分离. 本实验首次提出利用铁磁共振原理, 在不利用外部磁场的情况下, 成功地分离了自旋信息和形貌信息, 但在分辨率上还需要进一步提高到原子分辨率.

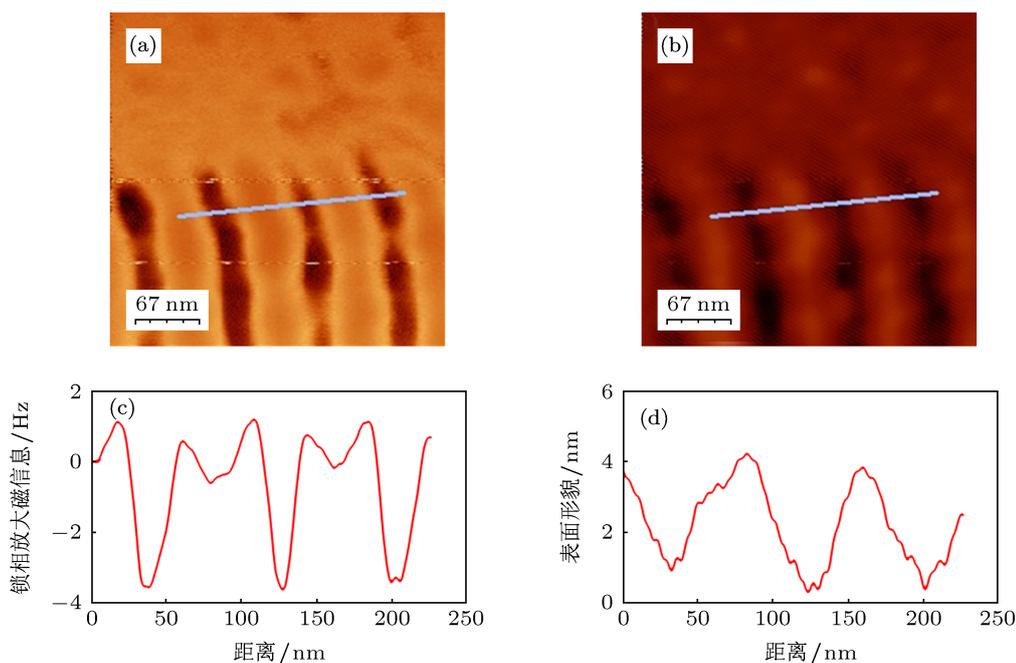


图 9 利用自制 MExFM 取得的硬盘存储磁道的磁性信息和表面形貌分布 (a) 磁性信息分布图; (b) 表面形貌分布图; (c) 磁性信息图所示直线的横截面; (d) 表面形貌图所示直线的横截面

本研究应用铁磁共振原理, 结合 AFM, 已经初步实现了分离磁物质表面的表面形貌和磁信息, 但在以下方面还需要进行进一步研究. 首先, 我们成功地实现利用微波照射探针引起铁磁共振, 但关于微波在真空中的传输和衰减机理方面需要进一步澄清; 其次, 通过研究微波的衰减规律, 我们就能准确确定探针和微波探头的最佳相对位置和距离, 并且能够得到最佳的铁磁共振效应; 再次, 本系统在

分辨率方面还需要进一步提高, 期望不久的将来达到原子分辨率.

## 6 结论

针对以前的 MExFM 不能分离表面形貌信息和磁性信息的缺点, 本文提出了基于铁磁共振效应的磁交换力显微镜, 并在理论和实验上验证了本方

法的科学性和可行性. 在成功探测铁磁共振现象后, 利用本测量方法成功地实现了初步分离磁物质表面的表面形貌和磁信息的目的. FMR-MExFM 使得

磁信息的测量不受外部磁场干扰, 可以直接区分形貌信息和磁信息, 还可以促进对原子级磁性材料机能的理理解以及磁性相关科学领域的进步.

- 
- [1] Gary A P 1998 *Science* **282** 1660
  - [2] Wolf S A, Awschalo D D, Buhrman R A, Daughton J M, Molnar S V, Roukes M L, Chtchelkanova A Y, Treger D M 2001 *Science* **294** 1488
  - [3] Heinze S, Bode M, Kubetzka A, Pietzsch O, Nie X, Blugel S, Wiesendanger R 2000 *Science* **288** 1805
  - [4] Wiesendanger R, Gunthorodt H J, Guntherodt G, Gambino R J, Ruf R 1990 *Phys. Rev. Lett.* **65** 247
  - [5] Hartmann U A 1999 *Annu. Rev. Mater. Res.* **29** 53
  - [6] Kaiser U, Schwarz A, Wiesendanger R 2007 *Nature* **446** 522
  - [7] Schmidt R, Lazo C, Kaiser U, Schwarz A, Heinze S, Wiesendanger R 2011 *Phys. Rev. Lett.* **106** 257
  - [8] Lazo C, Heinze S 2011 *Phys. Rev. B* **84** 144428
  - [9] Giessibl F J 1995 *Science* **267** 68
  - [10] Giessibl F J 2003 *Rev. Mod. Phys.* **75** 949
  - [11] Sugawara Y, Ohta M, Ueyama H, Morita S 1995 *Science* **270** 1646
  - [12] Wiesendanger R 2009 *Rev. Mod. Phys.* **81** 1495
  - [13] Meier F, Zhou L, Wiebe J, Wiesendanger R 2008 *Science* **320** 82
  - [14] Ashino M, Schwarz A, Behnke T, Wiesendanger R 2004 *Phys. Rev. Lett.* **93** 136101
  - [15] Meier F, Zhou L, Wiebe J, Wiesendanger R 2008 *Science* **320** 82
  - [16] Schmidt R, Lazo C, Holscher H, Pi U H, Caciuc V, Schwarz A, Wiesendanger R, Heinze S 2009 *Nano Lett.* **9** 200
  - [17] Saito H, Ito R, Egawa G, Li Z, Yoshimura S 2011 *J. Appl. Phys.* **109** 07E330

# Magnetic exchange force microscopy using ferromagnetic resonance \*

Xue Hui<sup>1)</sup> Ma Zong-Min<sup>1)2)†</sup> Shi Yun-Bo<sup>1)</sup> Tang Jun<sup>1)</sup> Xue Chen-Yang<sup>1)</sup>  
Liu Jun<sup>1)</sup> Li Yan-Jun<sup>2)</sup>

1) (*Key Laboratory of Instrumentation Science and Dynamic Measurement, North University of China, Ministry of Education, Taiyuan 030051, China*)

2) (*Department of Applied Physics, Osaka University, Suita, Yamada-Oka, Osaka 565-0871, Japan*)

( Received 13 April 2013; revised manuscript received 4 June 2013 )

## Abstract

Electron spin is very important for investigating magnetic properties of nano-structure surface on the atomic scale. Magnetic exchange force microscope (MExFM) which is a significant method of measuring exchange force of electron spin, is adopted. However, the external magnetic field is necessary for the MExFM, which will damage the structure of the sample surface; further, cross-talk between topography and spin information becomes serious for separating the two signals in MExFM measurement. These shortcomings will restrict the application of MExFM. In order to solve these problems, we develop a new method to separate the topography from the spin information using ferromagnetic resonance by microwave radiation combined MExFM and atomic force microscopy. We demonstrate that the topography and spin information can be completely separated from each other using this method theoretically and experimentally. MExFM using ferromagnetic resonance effect is very useful for developing spintronic devices and new-generation magnetic materials.

**Keywords:** atomic force microscope, magnetic exchange force microscope, spin, ferromagnetic resonance

**PACS:** 07.79.Pk, 07.79.Lh, 07.30.-t, 75.25.-j

**DOI:** 10.7498/aps.62.180704

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 61274103).

† Corresponding author. E-mail: mzmncit@163.com