

电子自旋共振扫描隧道显微镜*

郭 阳¹ 李健梅¹ 陆兴华^{1,2,†}

(1 中国科学院物理研究所 北京 100190)

(2 量子物质科学协同创新中心 北京 100190)

2014-11-30收到

† email: xhlu@aphy.iphy.ac.cn

DOI: 10.7693/wl20150305

Electron spin resonance scanning tunneling microscope

GUO Yang¹ LI Jian-Mei¹ LU Xing-Hua^{1,2,†}

(1 Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China)

(2 Collaborative Innovation Center of Quantum Matter, Beijing 100190, China)

摘 要 单电子自旋极有可能发展成为未来信息学的基础。以电子自旋为核心的新型单分子或单原子器件将最终成为基本信息单元，基于单电子的自旋态将有可能构筑未来量子计算机的量子比特。但是，如何实现对单个电子自旋及其相干态和纠缠态的测量和控制，目前仍然是一个很大的挑战。作为调控单个电子自旋的重要实验手段，电子自旋共振扫描隧道显微镜的发展一直备受关注。文章简要介绍了电子自旋共振扫描隧道显微镜的基本概念，阐述了其发展历史和最新进展，归纳了机理探索的研究成果，论述了该设备研发面临的挑战与对策，并对未来的发展和应用做了展望。

关键词 电子自旋共振，扫描隧道显微镜

Abstract It is highly expected that the future informatics will be based on the spins of individual electrons. The development of elementary information unit will eventually leads to novel single-molecule or single-atom devices based on electron spins; the quantum computer in the future can be constructed with single electron spins as the basic quantum bits. However, it is still a great challenge in detection and manipulation of a single electron spin, as well as its coherence and entanglement. As an ideal experimental tool for such tasks, the development of electron spin resonance scanning tunneling microscope (ESR-STM) has attracted great attention for decades. This paper briefly introduces the basic concept of ESR-STM. The development history of this instrument and recent progresses are reviewed. The underlying mechanism is explored and summarized. The challenges and possible solutions are discussed. Finally, the prospect of future direction and applications are presented.

Keywords electron spin resonance, scanning tunneling microscope

* 国家自然科学基金(批准号: 10974245, 61027011)、国家重点基础研究发展计划(批准号: 2012CB933002, 2010CB923001)、中国科学院战略性先导科技专项(B类)(批准号: XDB07030100)资助项目

1 引言

根据反映半导体微电子学发展规律的摩尔定律的预测,信息存储单元的尺寸不断缩小,在不久的将来将达到几个纳米以下。传统的磁畴信息单元最终将有可能被以电子自旋为核心的新型单分子或单原子器件所取代。由于单个电子是最小的自旋载体,对单个电子的自旋状态进行直接的探测和操纵可以极大地提高自旋电子学的空间分辨率和信息密度。同时,单个电子的自旋态又是最基本的量子态,是一种理想的量子比特载体。在量子计算研究领域中,以单个电子自旋态制备量子比特一直被人们寄予厚望^[1]。电子自旋极有可能发展成为未来信息学的基础。如何实现对单个电子自旋进行测量和控制,以及如何对其相干性进行调控,目前已成为国际研究的热点之一。

电子自旋共振(ESR)是研究电子自旋最常用的实验手段之一。在一定的磁场下,原本简并的电子自旋态会发生塞曼劈裂,形成一个两能级系统,对能量匹配的微波产生共振吸收,形成ESR频谱。通过对ESR频谱的分析,可以了解原子及分子中电子的自旋特征,测量电子自旋与原子核自旋的相互作用,标记生物自旋探针,分析化学环境等。然而,在传统的ESR实验中,样品中的自旋中心的数量至少要达到 10^{10} 以上,才能得到较清晰的信号或较高的信噪比,因而ESR无法直

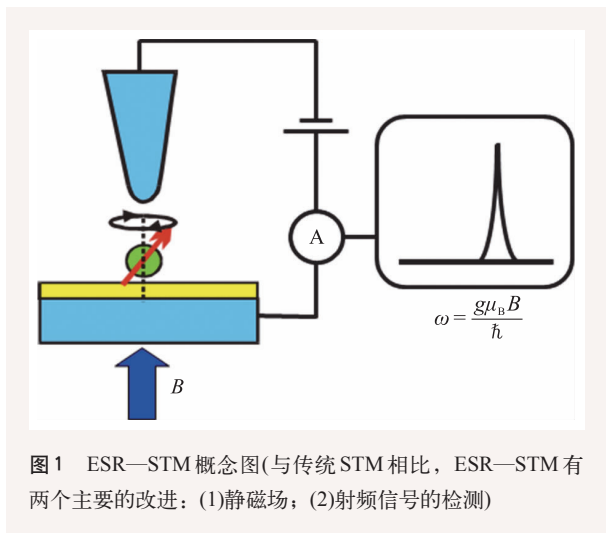
接应用到单个自旋量子态的调控研究中。

扫描隧道显微镜(STM)是从上世纪80年代发展起来的一种表面物理实验技术,具有原子级空间分辨率^[2],能进行电子局域态密度探测^[3, 4]和原子操控^[5, 6]。这些独特的功能吸引着众多科学家将其扩展到其他技术领域,以期革命性地提高其他探测手段的空间灵敏度和操控自由度。如STM与抽运—探测技术结合的超快时间分辨扫描隧道显微镜^[7, 8],与X射线技术结合的化学元素分辨扫描隧道显微镜^[9, 10]等。就单个自旋的探测而言,当前已经有多种基于扫描隧道显微镜的技术,包括单自旋近藤效应^[11]、非弹性隧穿自旋翻转谱^[12]、自旋极化扫描隧道显微镜(SP—STM)^[13]以及电子自旋共振扫描隧道显微镜(ESR—STM)^[14]。其中ESR—STM因其具有独特的对自旋相干特性测量的能力而尤其引人注目。相干/退相干时间是量子信息和量子计算的重要概念之一,准确地理解自旋量子态的相干效应及退相干机制是最终实现量子关联和量子纠缠的基础,退相干时间的测量和调控是实现量子信息和量子计算的关键步骤。电子自旋共振扫描隧道显微镜通过对隧穿电流信号的频谱分析,有可能实现对单个自旋退相干时间的探测。结合扫描隧道显微镜的原子级空间分辨率和原子分子搬运功能,还可以实现对单个自旋结构的原子级空间原位操纵,构建纳米尺度的多自旋量子体系,因而它是研究自旋量子态的理想实验手段。它的实现和应用对自旋量子信息的测量和控制,发展自旋物理学等方面具有重要的意义。

下面将主要介绍电子自旋共振扫描隧道显微镜的基本概念、研究进展、机理探索,以及面临的挑战和对策。

2 ESR—STM的基本概念

1989年,ESR—STM概念的提出^[14],为实现单电子自旋的分辨和相干性测量提供了可能。与传统的扫描隧道显微镜相比,ESR—STM有两个主要的改进。如图1所示,首先是在样品上施加



静磁场 B ；其次是隧穿电流中交流信号的检测。静磁场的存在使得电子能级发生塞曼劈裂，未配对的电子磁矩会在磁场下产生拉莫尔进动，频率 $\omega = g\mu_B B/\hbar$ (g 是未配对电子的朗道 g 因子， μ_B 是玻尔磁子， \hbar 是普朗克常数)。这种自旋进动会对隧穿电流进行调制，使得隧穿电流里出现具有拉莫尔频率的交流信号。通常情况下，磁场强度在几百 Gs 左右，对应交流信号频率在几百 MHz 到几个 GHz 之间。通过滤波电路和电流放大器，可以将交流信号分离出来，并通过频谱仪进行分析。与传统的 ESR 实验类似，频谱信号分析不仅可以得到朗道 g 因子的数值，而且还可以得到自旋的退相干时间。通过谱线的数目及分布情况，可以研究多个自旋相互作用的情况。如果存在核自旋与电子自旋的耦合，还可以得到核自旋的信息。

3 研究进展

自上世纪 80 年代末开始，利用 STM 的高空间分辨率实现单个自旋量子信息的原位操控，就已成为许多国际上前沿的研究小组的追求和梦想。尽管研制过程遇到了各种技术难题，但关键的突破已经实现。1989 年，美国 IBM 公司研究分部的 Manassen 等人首次利用 STM 技术在氧化的 Si(111) 表面观察到了单个顺磁自旋的进动^[14]。他们利用两块永磁体在样品附近产生了约 170 Gs 的静磁场，通过调整两磁体距离，还可以对磁场强度进行控制。结果在 484 MHz 附近观察到一个信号，并且发现这个信号是局域的。探针移开后，信号消失，返回原位置后，信号重新出现，信号空间分辨率在 1 nm (如图 2(a) 所示)。1993 年，他们重复了这个实验，显示该信号有较高的可信度，而且发现信号谱线宽度和频移随磁场的增强而增大^[15]。2000 年，他

们在 Si(111) 表面蒸镀 Fe 原子，得到 FeSi₂ 团簇，采用锁相技术进一步提高了信噪比，通过观察 FeSi₂ 团簇中 Fe 的电子自旋进动信号，测出该环境下 Fe 原子的朗道 g 因子为 2.07^[16]。

2002 年，Durkan 等人在含自由基的单分子体系中得到了信噪比更高的测量结果^[17]。他们选择了在传统 ESR 实验中作为信号标记的 BDPA 分子 (α, γ -bisdiphenylene- β -phenylallyl)。这种分子自由基团内的电子的总自旋角动量 $S=1/2$ ，轨道角动量 $L=0$ ， g 因子为 2 ± 0.1 ，总核自旋 $I=0$ ，体系比较简单，易于进行实验观测和分析。他们将 BDPA 分子团簇吸附到高定向热解石墨 (HOPG) 的表面，施加磁场后，在隧穿电流的频谱里观察到了对应的电子自旋共振信号。图 2(b) 显示了该分子的 ESR—STM 信号的频谱，磁场强度为 210 Gs，信号中心频率为 585.2 MHz。值得注意的是，这是目前为止实验上获得的最为清晰的 ESR—STM 信号。图 2(b) 中的插图为 4 个 BDPA 分子的 STM 表面形貌图。2007 年，Messina 等人在吸附于 Au (111) 表面的 DPPH 分子 (1, 1-diphenyl-2-picrylhydrazyl) 和 BDPA 分子上也得到了类似的实验结果^[18]。

通过超精细相互作用，核自旋可以与电子自旋相耦合，使得电子自旋共振信号发生劈裂。劈裂后的信号峰数目取决于起作用的核自旋量子数，信号峰的频率间隔取决于超精细作用的强弱 (通常为 10 MHz 量级)。因此，利用超精细相互作用就有可能获得原子核的相关信息，增强对化学

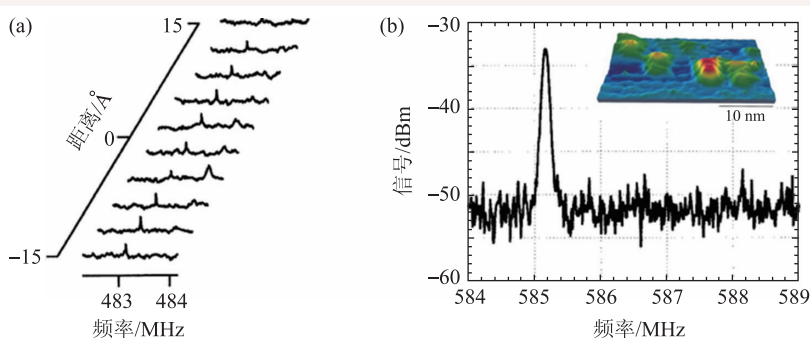


图 2 (a)氧化的 Si(111) 表面单个顺磁自旋的 ESR—STM 信号，磁场强度为 172 Gs，信号中心频率在 483.8 MHz 处，中心频率在 483.2 MHz 的信号没有空间分辨，为伪信号 (引自文献 [14]，copyright 1989 APS)；(b) 石墨表面 BDPA 分子的 ESR—STM 信号，磁场强度为 210 Gs。插图为 4 个 BDPA 分子的 STM 表面形貌图 (引自文献 [17]，copyright 2002 AIP)

元素的分辨能力。2004年，Durkan等人利用ESR—STM研究了吸附在热解石墨上的TEMPO分子(4-hydroxy-2, 2, 6, 6-tetramethylpiperidine-1-oxyl)团簇的信号^[19]。TEMPO分子具有电子自旋角动量 $S=1/2$ ，轨道角动量 $L=0$ ，总核自旋 $I=1$ 。超精细相互作用使得电子自旋能级劈裂为3个($2 \cdot I + 1 = 3$)。他们在隧穿电流频谱图中观察到了3个信号峰，频率间隔分别为29 MHz和27.5 MHz。这一结果和传统ESR实验结果吻合得非常好。

2009年，Sainoo等人实现了对Si(111)表面不同吸附原子的ESR谱学分辨^[20]。他们首先对Si样品进行氧化，在氧化过程中，氧气分子会逐渐与Si(111)表面的悬挂键结合。STM图像显示，此时表面上会出现三种不同吸附构型的Si原子，它们的区别在于吸附位置不同与氧气原子的空间距离不同。他们利用热漂移补偿技术增加了测量时间，观察到三种不同构型的Si原子的ESR谱图，并能在空间上将两个邻近的吸附原子分辨出来，实现了自旋的原子级空间分辨。

相比于传统ESR实验，ESR—STM的谱线宽度要小两个数量级。这种现象的一种可能解释是，传统ESR实验探测的是宏观体系所有自旋的响应，但这些自旋所处的局域环境都略有不同，从而导致谱线峰值出现明显的展宽。Komeda与

Manassen曾对Si表面多次ESR—STM实验测得的大量谱线进行统计分析，发现谱线中心频率的分布与传统ESR实验测得的谱线线型一致^[21]，很好地验证了这一解释。由此可见，通过ESR—STM实验测量单个自旋的谱线有望显著提高g因子的测量精度。

这些研究结果展示了ESR—STM对单个自旋分辨的能力，为ESR—STM的进一步发展奠定了基础。

4 机理探索

尽管实验上已经通过隧穿电流观察到了单个自旋引起的拉莫尔进动信号，但是产生这一信号的物理机理一直还没有一个令人信服的解释。目前对ESR—STM实验现象的解释大体可归纳为两种物理机理，其中一种是基于自旋轨道耦合^[22-28]，另一种则是基于直接交换作用^[29-33]。

基于自旋轨道耦合的理论认为，局域自旋和样品表面的巡游电子之间通过自旋轨道耦合发生相互作用。如图3(a)所示，通过与局域自旋的相互作用，巡游电子可以由自旋向上的量子态跃迁到自旋向下的量子态。这种跃迁导致样品的局域电子态密度发生调制，从而在隧穿电流中产生交流信号^[22]。也有人认为，自旋轨道相互作用在隧穿结产生振荡的电荷密度，并激发振荡的电场^[26, 27]。该振荡电场调制了隧穿势垒，使得隧穿电流中出现交流信号。但是，已报道的最强的ESR—STM信号来自石墨表面的BDPA分子^[17]，而这种分子上的自由基团与表面之间并没有强的自旋轨道耦合作用。

基于直接交换作用的理论则指出，隧穿电子和进动的局域自旋电子之间会发生直接交换作用^[29]。考虑到典型的隧穿电流强度在纳安量级，在局域自旋进动的单个周期内(纳秒量级)，隧穿电子的数目仅有数十个。根据统计涨落理论，这些有限数目的隧穿电子的自旋之和不会严格为零，从而形成一个微弱的自旋极化状态。尽管这一自旋极化率非常微弱，它在自旋进动周期的时间尺度内

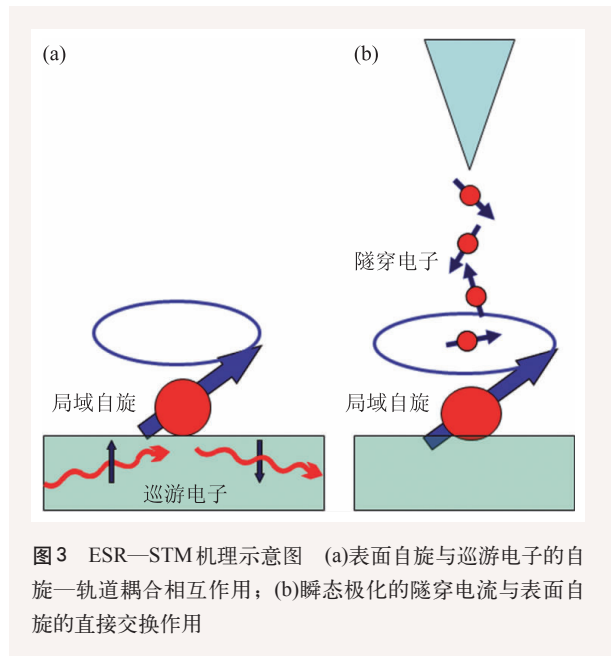


图3 ESR—STM机理示意图 (a)表面自旋与巡游电子的自旋—轨道耦合相互作用；(b)瞬态极化的隧穿电流与表面自旋的直接交换作用

是稳定的。在自旋极化电流的情况下，电子的隧穿几率与局域自旋的极化方向相关，局域自旋在一个周期内运动一周，就使得隧道电流产生一个周期的扰动。这个扰动最终在隧穿电流中形成对应于拉莫尔频率的交流信号(如图3(b)所示)。这一理论的局域性在于，理论模拟得出隧穿电子的相干时间是局域电子进动周期的几倍到十几倍，那么，频谱宽度应该在几十兆赫兹到几百兆赫兹，而目前的实验结果只有几兆赫兹。因此，该理论还有很多待完善和验证的地方。

另外还有一些其他的理论，但都不能完美地解释所有的实验结果。这些理论存在争论的一个重要原因在于没有足够的实验数据可供分析。到目前为止，信噪比较高的实验结果仅在 Manassen 及 Durkan 两个实验小组出现过，其他实验小组还没有重复过这一实验现象。导致这一情况的主要原因可能在于由单个自旋激发的射频信号极其微弱(~ 10 pA)，且衰减迅速，信号测量极其困难。其次，ESR—STM所研究过的体系还非常有限，仅包括氧化硅表面、硅表面铁原子和带自由基的分子。更重要的是，所有目前已发表的实验结果均是在室温条件下获得的，没有充分利用低温实验条件下电子学噪声低、相干时间长等优点。有限的实验结果导致了理论发展的不完善，反过来也影响了理论研究对实验的指导作用。因此，目前ESR—STM发展的一个首要问题是要进一步完善实验探测手段，丰富研究内容，从而结合理论揭示其工作机理。

5 挑战与对策

提高ESR—STM实验的信噪比是目前这一课题研究面临的严峻挑战。从1989年ESR—STM的第一次实验报道以来，仍有很多研究者对相关实验结果持怀疑态度。主要原因就在于实验信号仍不够清晰，甚至断断续续。目前为止，绝大多数实验中射频电流信号都非常微弱，只有 -135 dBm，最好的实验结果也仅有 -125 dBm。

提高实验信噪比最关键的环节在于交流射频

信号的放大。ESR信号的主要特点是有较强的真空辐射(类似收音机和手机信号)。为了避免信号的消逝，必须在STM针尖隧穿结附近安置一个前置射频信号放大器。为减少热噪声并提高STM的稳定性，进一步的实验应在超高真空及液氦低温下进行。这就要求前置射频信号放大器必须能在超高真空与液氦(4.2 K)低温下工作，并能耐 200°C 的烘烤温度。为了不影响扫描隧道显微镜的低温工作环境，放大器的总功耗还应控制在毫瓦量级。尽管目前已有一些商业化的射频信号放大器能在低温下工作，但是如何将它们进一步小型化，消除出气率和减少功耗，仍需要进行不懈地探索和尝试。图4展示了我们测试的一个前置射频信号放大器在低温下的增益曲线。该放大器在0.1—1.1 GHz的范围内具有稳定的25 dB的增益。

改进实验技术方法也是提高实验信噪比的重要途径。Manassen等人曾通过磁场调制和锁相放大器实现对相位敏感的ESR信号的探测^[34]。他们在恒定的磁场上加一个交流振荡成分，以便于对磁场进行调制，再将对应的电流频谱信号输入到锁相放大器中，以微分形式记录下ESR谱信号。这种方法可以锁定磁场调制频率的信号，对在实验中不时出现的假信号可以很好地进行抑制，从而提高了实验信噪比。

一个有意思的实验设想是，利用自旋极化的隧穿电流来探测ESR—STM的信号。Kozhushner等人曾提出，电子自旋共振信号只有在出现极

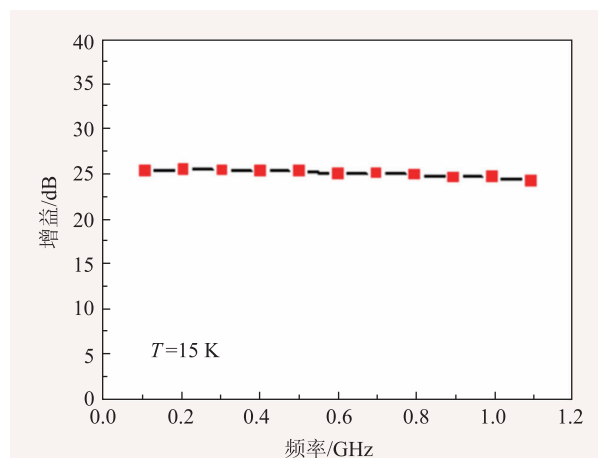


图4 低温射频前置电流放大器增益曲线

化电流的情况下才能测得^[35]。我们研究发现^[36]，利用自旋极化的STM针尖，隧道电流中将必然出现具有拉莫尔频率的交流振荡成分， $I(t) = I_0[1 + P \sin \theta \cos(\omega_0 t)]$ ，其中 I_0 为隧穿电流的直流成分， P 为针尖的横向极化率， θ 为布洛赫球模型中的自旋态极角。图5展示了对应的布洛赫球模型和隧穿电流的时间函数 $I(t)$ 曲线。在这种情况下，ESR信号直接起源于未配对电子自旋的拉莫尔进动。ESR信号的强度和针尖横向极化率成正比，当针尖横向极化率为0时，隧穿电流里的交流成分消失。在这一框架体系下，传统的ESR—STM中针尖是非极化的，本不应该产生交流振荡信号。实验中测得的信号可能来源于由统计涨落效应引起的瞬态自旋极化率，大致在0.01的量级。而一个典型的自旋极化针尖的极化率大致在0.2—0.3左右，并且这个极化率对于同一个自旋极化针尖是稳定可靠的。可以预期，利用自旋极化的STM针尖测量的ESR信号强度将比已有的实验高出一个数量级，信噪比将有大幅度提高。

自旋极化的针尖往往带有一定的磁场，但这一影响可以通过磁场调制加以消除。通过调节磁场大小并测量射频信号峰值频率的变化可以准确测定 g 因子。这一方法可以消除外界环境磁场的涨落及针尖磁场的影响，提高 g 因子的测量精度。高精度的 g 因子可以更加准确地反映局域环境的信息，在物理化学和医学研究中均有较广泛的应用。

在实际的样品体系中，单个自旋会受到各种环境的影响，例如自旋—轨道耦合，自旋—声子耦合以及电子自旋与核自旋的超精细相互作用等等。这些相互作用都会导致自旋偏离原来的量子进动态，表现出自旋量子态的衰减现象。这种自旋量子态的衰减过程称为自旋弛豫，衰减的特征时间为自旋量子态的寿命。自旋弛豫通常有两种，即纵向自旋弛豫和横向自旋弛豫。纵向自旋弛豫是自旋态从初态演化到热平衡态的过程，在这个过程中有能量转移，对应时间常数 T_1 。横向自旋弛豫也称为自旋—自旋弛豫，对由大量自旋组成的系综来说，横向自旋弛豫一般会导致自旋系综的总横向磁矩发生指数衰减，对应时间常数 T_2 。对于进动中的单个自旋，横向自旋弛豫可以通过自旋态的随机相位跳变来表征。在横向自旋弛豫中，不伴随能量转移过程。通过探测自旋弛豫时间 T_1 和 T_2 ，我们可以得到关于自旋—衬底相互作用，自旋—自旋相互作用，自旋—电流相互作用和自旋相干/退相干的相关信息。对于量子计算而言，一个量子态的弛豫时间长短是判断这个量子态质量的关键指标之一。对于一个典型的自旋共振系统，纵向自旋弛豫时间要远远大于横向自旋弛豫时间，这就意味着自旋共振态的寿命主要由横向自旋弛豫时间决定，自旋共振信号共振峰的展宽也就主要由 T_2 决定。 T_1 的测量必须通过其他办法。我们提出了通过直接观察纵向自旋弛豫过程来测量 T_1 的方法，即在ESR—STM实验中，通过施加脉冲微波场或脉冲磁场的方式来观察纵向自旋弛豫过程。施加脉冲微波场是传统ESR实验中对量子自旋态进行操纵的常规手段，在ESR—STM实验中，脉冲微波场可以通过靠近隧穿结的电磁线圈或金属细线（一般直径为10 μm 左右）来产生。如果我们使用布洛赫球模型来描述微波场的作用，则需要施加频率和自旋进动频率相

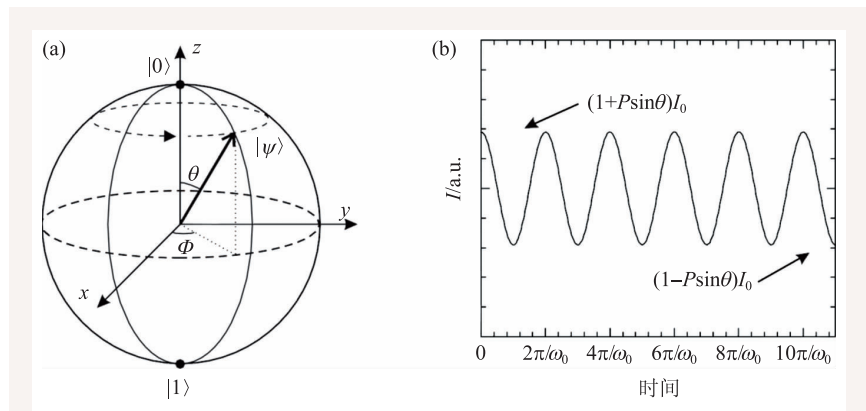


图5 (a)单自旋拉莫尔进动的布洛赫球模型；(b)隧穿电流的时间函数 $I(t)$ 曲线， I_0 是隧穿电流的直流成分。交流成分 I 以拉莫尔频率振荡，其幅度取决于针尖的横向极化率 P 和自旋态极角 θ (引自文献[36])

豫过程来测量 T_1 的方法，即在ESR—STM实验中，通过施加脉冲微波场或脉冲磁场的方式来观察纵向自旋弛豫过程。施加脉冲微波场是传统ESR实验中对量子自旋态进行操纵的常规手段，在ESR—STM实验中，脉冲微波场可以通过靠近隧穿结的电磁线圈或金属细线（一般直径为10 μm 左右）来产生。如果我们使用布洛赫球模型来描述微波场的作用，则需要施加频率和自旋进动频率相

匹配且脉冲宽度为 $\pi/2$ 的微波场，就可以将自旋态从布洛赫球的 xy 平面抽运到 z 轴。在这个过程中，自旋态极角 θ 会从 $\pi/2$ 变化到0。由隧穿电流公式可知，ESR射频信号和 θ 的正弦值成正比，即脉冲微波场会抑制ESR射频信号。关闭微波电磁场之后，被激发的自旋态会通过局域环境发生相互作用而失去能量，重新演化回平衡态，对应时间常数 T_1 。在这个过程中，自旋态极角 θ 重新回到 $\pi/2$ ，ESR信号随之恢复(如图6(a)所示)。除微波电磁场外，我们也可以考虑通过

脉冲强磁场来改变自旋系统的热平衡和极角 θ 。在热平衡态下，极角 θ 由玻尔兹曼分布决定， $\tan^2 \frac{\theta}{2} = e^{-\Delta E/2kT}$ ，其中 $\Delta E = g\mu_B \hbar / 2m_e$ 是塞曼能量， k 是玻尔兹曼常数， T 是样品温度。在4 K低温和1 T磁场的实验条件下，极角 θ 约为 87° 。在200 Gs的典型磁场下，极角 θ 约为 89.9° 。可见，在这种条件下，进动信号的变化过小，极易淹没在噪声里。一种可行的方案是利用极低温强磁场扫描隧道显微镜，它通过使用氦三(He-III)和稀释制冷机可以实现几十mK的低温，用大型超导线圈可得到大于10 T的磁场。考虑50 mK的温度和5 T磁场条件，可以计算出极角 θ 约为 8° ，完全可以进行 T_1 的测量。

与纵向自旋弛豫不同，单个自旋的横向自旋弛豫是由进动过程中相位的随机跳变来表征的。我们用 $\varphi(t)$ 描述随机相位跳变，反映到隧穿电流的表示式中，即为 $I = I_0 [1 + P \sin \theta \cos(\omega_0 t + \varphi(t))]$ 。假设相位跳变是彼此独立的，则相邻两次相位跳变的间隔 τ 的概率分布为 $\sigma(\tau) = e^{-\tau/T_2} / T_2$ 。通过计算电流信号的自相关函数，可以得出电流信号在拉莫尔进动频率附近的功率谱密度函数 $S(\omega) = \frac{\lambda}{\lambda^2 + (\omega - \omega_0)^2} I_0^2 P^2 \sin^2 \theta$ (如图6(b)所示)。这样的功率谱密度可以直接用频谱分析仪测量。该共振峰的线型是洛伦兹型，半高宽为 2λ ， $\lambda = 1/T_2$ 。共

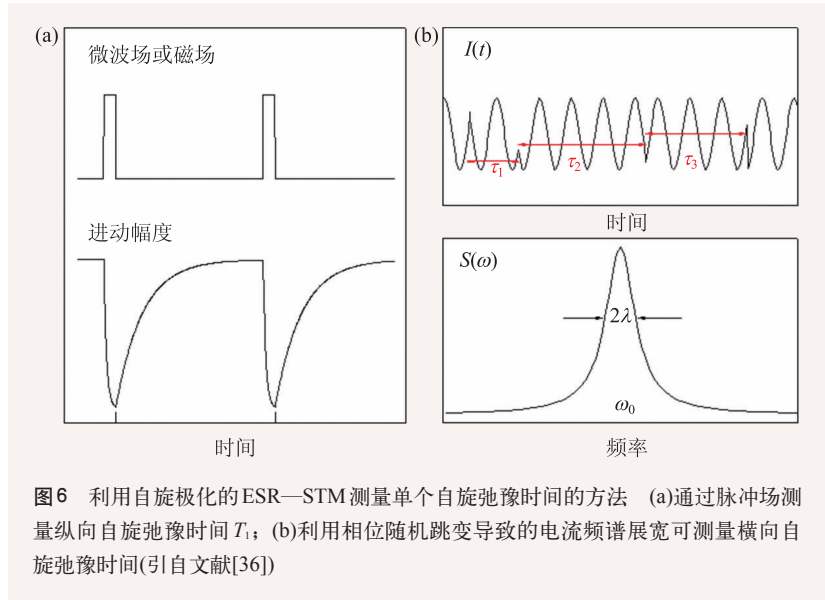


图6 利用自旋极化的ESR—STM测量单个自旋弛豫时间的方法 (a)通过脉冲场测量纵向自旋弛豫时间 T_1 ; (b)利用相位随机跳变导致的电流频谱展宽可测量横向自旋弛豫时间(引自文献[36])

振峰的强度取决于隧穿电流强度 I_0 、针尖极化率 P 和由磁场与温度决定的自旋态的极角 θ 。严格地讲，纵向自旋弛豫对共振峰展宽也有贡献，但是在大多数实际的自旋共振系统中，纵向自旋弛豫时间 T_1 要远大于 T_2 。所以，共振峰的半高宽主要是由横向自旋弛豫决定，纵向自旋弛豫对测量出的谱线形状的影响基本可以忽略。

横向自旋弛豫的来源之一是自旋极化的隧穿电流。极化的隧穿电子和进动的自旋发生相互作用，在弹性隧穿条件下，这种相互作用不会伴随着两者之间的能量交换，而只会引起拉莫尔进动的相位跳跃，从而导致横向自旋弛豫。这种相互作用的周期与隧穿电流强度成反比，由此引起的共振峰展宽可以写为 $\lambda = \alpha_s I / e$ ，其中系数 α_s 表示隧穿电子与进动自旋发生相互作用的概率。通过调制隧穿电流强度，测量谱线展宽随隧穿电流强度变化的系数，可以得到准确的 α_s 值， $\alpha_s = e d\lambda / dI$ 。对于典型的实验条件，隧穿电流强度约为1 nA，共振峰半高宽约为300 kHz，我们可以推测出 α_s 大约在 10^{-5} 的量级。

值得关注的是，2014年澳大利亚的研究组报道了一种新的探测自旋拉莫尔进动的方法^[37]。他们通过电极将微波场加到STM隧穿结上，当微波频率与自旋拉莫尔进动频率一致时，隧道电流微分谱在零偏压(费米面)处出现增强现象。通过微波扫

频,他们得到了该信号的频谱分布。实验结果与超精细作用引起的自旋劈裂效应相吻合,且具有亚纳米级的空间分辨。这一实验方法的优势在于避免了射频电流放大器的使用,而微波场的导入则是一件相对比较容易实现的任务。遗憾的是,该实验装备中没有连续可控的磁场,随磁场变化的实验曲线数据点仅有两个。尽管如此,这一实验方法的提出很有可能迅速推动ESR—STM领域的发展。

6 展望

ESR—STM的发展,在电子自旋测量灵敏度上跨越了10个数量级,研究对象从统计性宏观集

体提高到了单个微观原子和分子,极大地提高了人类对单个自旋量子结构的测量和控制能力,有望帮助人类深刻理解电子自旋动力学过程。随着实验方法的进一步完善,ESR—STM也将逐步应用到其他领域。例如,高温超导机制的最新研究表明,高温超导与材料的磁学性质有着密切的关系,高温超导机制的最后揭示离不开对材料中电子自旋结构的彻底理解。利用ESR—STM研究高温超导材料中电子自旋结构,将为揭示高温超导机制提供一个无法替代的研究视角。当然,完善实验方法并彻底理解相关机理仍是当前的主要任务,也是将ESR—STM应用到相关前沿研究领域的重要前提。为此我们将拭目以待。

参考文献

- [1] Nielsen M A, Chuang I L. Quantum Computer and Quantum Information. Cambridge: Cambridge University Press, 2000
- [2] Binnig G, Rohrer H, Gerber C *et al.* Phys. Rev. Lett., 1983, 50: 120
- [3] Becker R S, Golovchenko J A, Hamann D R *et al.* Phys. Rev. Lett., 1985, 55: 2032
- [4] Hamers R J, Tromp R M, Demuth J E. Phys. Rev. Lett., 1986, 56: 1972
- [5] Eigler D M, Schweizer E K. Nature, 1990, 344: 524
- [6] Crommie M F, Lutz C P, Eigler D M. Science, 1993, 262: 218
- [7] Terada Y, Yoshida S, Takeuchi O *et al.* Nature Photo., 2010, 4: 869
- [8] Yoshida S, Aizawa Y, Wang Z *et al.* Nature Nano., 2014, 9: 588
- [9] Rose V, Chien T Y, Freeland J W *et al.* Jour. Appl. Phys., 2012, 111: 07E304
- [10] Shirato N, Cummings M, Kersell H *et al.* Nano. Lett., 2014, 14: 6499
- [11] Madhavan V V, Chen W, Jamneala T *et al.* Science, 1998, 280: 567
- [12] Heinrich A J, Gupta J A, Lutz C P *et al.* Science, 2004, 306: 466
- [13] Heinze S, Bode M, Kubetzka A *et al.* Science, 2000, 288: 1805
- [14] Manassen Y, Hamers R J, Demuth J E *et al.* Phys. Rev. Lett., 1989, 62: 2531
- [15] Manassen Y, Ter-Ovanesyan E, Shachal D *et al.* Phys. Rev. B, 1993, 48: 4887
- [16] Manassen Y, Mukhopadhyay I, Rao N R *et al.* Phys. Rev. B, 2000, 61: 16223
- [17] Durkan C, Welland M E. Appl. Phys. Lett., 2002, 80: 458
- [18] Gorini L, Fabrizio M, Mannini M *et al.* Inorg. Chim. Acta, 2008, 361: 4089
- [19] Durkan C. Contemp. Phys., 2004, 45: 1
- [20] Sainoo Y, Isshiki H, Shahed S M F *et al.* Appl. Phys. Lett., 2009, 95: 082504
- [21] Komeda T, Manassen Y. Appl. Phys. Lett., 2008, 92: 212506
- [22] Shachal D, Manassen Y. Phys. Rev. B, 1992, 46: 4795
- [23] Zhu J X, Balatsky A V. Phys. Rev. Lett., 2002, 89: 286802
- [24] Mozyrsky D, Fedichkin L, Gurvitz S A *et al.* Phys. Rev. B, 2002, 66: 161313
- [25] Muniz R B, Mills D L. Phys. Rev. B, 2003, 68: 224414
- [26] Levitov L S, Rashba E I. Phys. Rev. B, 2003, 67: 115324
- [27] Bulaevskii L N, Hruska M, Ortiz G *et al.* Phys. Rev. B, 2003, 68: 125415
- [28] Caso A, Horovitz B, Arrachea L *et al.* Phys. Rev. B, 2014, 89: 075412
- [29] Balatsky A V, Manassen Y, Salem R *et al.* Phil. Mag. B, 2002, 82: 1291
- [30] Balatsky A V, Manassen Y, Salem R *et al.* Phys. Rev. B, 2002, 66: 195416
- [31] Nussinov Z, Crommie M F, Balatsky A V *et al.* Phys. Rev. B, 2003, 68: 085402
- [32] Balatsky A V, Fransson J, Mozyrsky D *et al.* Phys. Rev. B, 2006, 73: 184429
- [33] Manassen Y, Averbukh M, Morgenstern M *et al.* Sur. Sci., 2014, 623: 47
- [34] Manassen Y. J. Magn. Reson., 1997, 126: 133
- [35] Kozhushner M A, Shub B R, Muryasov R R *et al.* JETP Lett., 1998, 67: 508
- [36] Guo X D, Dong L, Guo Y *et al.* Chin. Phys. Lett., 2013, 30: 017601
- [37] Mullegger S, Tebi S, Das A K *et al.* Phys. Rev. Lett., 2014, 113: 133001