

自旋极化扫描隧道显微术*

潘明虎 薛其坤†

(中国科学院物理研究所表面物理国家重点实验室 中国科学院国际量子结构中心 北京 100080)

摘要 自旋极化扫描隧道显微术是一种新兴的表面自旋分辨技术.文章主要介绍了自旋极化的扫描隧道显微镜和扫描隧道谱实现表面自旋分辨的原理以及在各种磁性表面研究中的应用.采用自旋极化技术的扫描隧道显微镜可以测量表面磁结构,其空间分辨可以达到原子尺度,分辨率超过其他磁显微技术.而自旋极化扫描隧道谱不但可以分辨空间精细磁畴结构,而且能研究表面态的交换劈裂.文章作者还进一步提出了利用自旋极化扫描隧道显微镜实现自旋注入的设想.

关键词 自旋极化扫描隧道显微术,表面磁结构,交换劈裂的表面态

SPIN-POLARIZED SCANNING TUNNELING MICROSCOPY AND SPECTROSCOPY

PAN Ming-Hu XUE Qi-Kun†

(State Key Laboratory for Surface Physics and International Center for Quantum Structures, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100080, China)

Abstract Potential applications of spin-polarized scanning tunneling microscopy and spectroscopy (SP-STM/S) are described. We show that SP-STM enables us to measure surface magnetic structure with atomic resolution and is much more sensitive than other magnetic microscopy techniques, while SP-SITS allows spatially resolved mapping of domain structures and reveals the exchange-split surface states of many kinds of surfaces. Furthermore, SP-STM/S can be applied to study spin-injection into semiconductors.

Key words spin-polarized scanning tunneling microscopy/spectroscopy, surface magnetic structure, exchange-split surface state

1 前言

随着近年来磁存储介质存储密度的迅速增长,目前的工艺已经逐渐达到了极限,这迫使人们寻找更高密度的存储介质.随着存储密度的提高,每个存储单元的内部磁结构以及存储单元之间磁排列构型如何,吸引了研究人员的极大关注.为了进一步研究和理解材料的微磁性质,诸如磁畴结构以及样品的形貌和磁畴结构之间相互影响、原子磁矩在低维体系中的排列,迫切需要一种高空间分辨率(原子分辨)的磁探测技术.在过去发展起来的几种磁敏感的显微技术如磁光克尔显微术^[1]、洛仑兹显微术^[2]、极化分析的扫描电子显微术^[3]、扫描近场磁光显微术^[4]以及磁力显微术^[5,6],都不能达到足够高的空间分辨率(如小于10nm).

利用扫描隧道显微术(STM)可以很容易得到空间的原子分辨^[7,8].在20世纪80年代中期,就有人

提出利用圆偏振极化光照射砷化镓针尖或是用铁磁性的针尖产生自旋极化的电流,使得STM对隧道电流的自旋敏感.尽管在隧道结中自旋极化电子隧穿已经是很成熟的实验技术了,但在STM中却很难实现.到了1990年,这项技术才由德国的Wiesendanger小组首次实现^[9,10],直到最近才能够较常规地观察到纳米量级的磁畴结构和磁(自旋)构型.这主要归因于两个方面的突破:(1)应用了隧道谱的技术;(2)使用了具有磁性薄膜镀层的针尖.前者成功地区分了隧道电流中表面形貌和磁结构的信息,而后者减少了由针尖的杂散磁场对样品磁结构的破坏.

在这里我们简单地介绍一下自旋极化扫描隧道显微术和隧道谱的实验方法.然后介绍它在磁性表

* 国家自然科学基金(批准号:60021403,10134030,60128404)和科技部“九七三”计划(批准号:G001CB3095)资助项目

2002-04-27收到初稿,2002-06-18修回

† 通讯联系人. E-mail: qkxue@aphy.iph.y.ac.cn

面上的一些成功应用范例,最后简要地论述一下这种技术在自旋注入研究方面的应用。

2 实验方法

自旋极化扫描隧道显微术和隧道谱(SP-STM和SP-STs)首先是由 Wiesendanger 小组实验成功的.其基本原理如下^[11]:对应于某种磁结构,其电子结构可以表示为自旋相关的局域态密度(DOS) $n_{\uparrow(\downarrow)}$.在一个磁性原子附近,自旋取向不同的多数载流子和少数载流子在费米面处的态密度 n_{\uparrow} 和 n_{\downarrow} 是不同的,因而自旋极化率 $P = (n_{\uparrow} - n_{\downarrow}) / (n_{\uparrow} + n_{\downarrow})$ 不为零.然而对于同种磁性原子, $n_0 = n_{\uparrow} + n_{\downarrow}$ 是相同的,所以非自旋极化的 STM 只对化学元素敏感,对自旋方向不敏感.如果使用自旋极化的 STM 针尖,隧道电流 I 将依赖于针尖和样品之间的相对磁化方向的夹角 θ 、电子结构以及针尖和样品的自旋极化率 P_T 和 P_S .这时,隧道电流可以写成 $I = I_0 + I_p \cos\theta$,其中 I_0 是非自旋极化的常规隧道电流,第二项中 $I_p \sim P_S P_T$ (在小偏压下)是自旋极化隧道电子的贡献, θ 是针尖与样品的磁化方向之间夹角, P_S , P_T 分别是样品和针尖的自旋极化率.显然,当针尖和样品之间磁化方向平行或反平行时,此项对隧道电流的贡献最大,而两者磁化方向垂直时,此项为零.一般来讲, I_0 比 I_p 要大得多,该项对正常 STM 图像贡献不大.但是否能使扫描隧道显微镜对自旋(即磁矩)的分辨达到原子量级呢?对一个周期性结构表面,其隧道电流的变化 ΔI 可以展开为

$$\Delta I(\mathbf{r}_{\parallel}, z, \theta, V) = \sum_{n \neq 0} I_{G_{\parallel}^n}(z, \theta, V) \exp(i \mathbf{G}_{\parallel}^n \cdot \mathbf{r}_{\parallel}), \quad (1)$$

\mathbf{G}_{\parallel}^n 为表面倒易格矢, $I_{G_{\parallel}^n}(z, \theta, V)$ 是展开系数,与针尖和样品间距 z , 夹角 θ 以及偏压 V 有关.由于通过真空势垒的隧道电流,其系数随着增加倒易格矢 \mathbf{G}_{\parallel}^n 长度而指数衰减,因此表面 STM 图像由最小未消失的倒易格矢 \mathbf{G}_{\parallel}^1 决定:

$$\Delta I(\mathbf{r}_{\parallel}, z, \theta, V) \approx I_{G_{\parallel}^1}(\theta, V) \exp(i \mathbf{G}_{\parallel}^1 \cdot \mathbf{r}_{\parallel}) \cdot \exp[-2z \sqrt{2m/\hbar^2 |E_F + eV| + (\mathbf{G}_{\parallel}^1)^2/2}].$$

如果在表面原子结构的基础上叠加自旋排列的超结构,此超结构必然降低了原来的平移对称性,产生更小的倒易格矢.而与之相关的自旋极化电流 I_p 的变化占主要部分, $\Delta I \approx \Delta I_p$.由此可见,自旋极化扫描隧道显微术是可以分辨原子级的自旋结构信息.

原理是如此,然而实际应用起来有许多难点需要克服.如果要使针尖发射自旋极化的电子,首先想到的是针尖是铁磁性金属(如铁、钴、镍及其合金).但是,如果整个针尖用铁磁性金属做,在针尖和样品之间的典型间距为 1nm,针尖影响样品的杂散磁场相当大.可以估计一下,在铁的表面,其杂散磁场为 $B = \mu_0 M_S / 2 \sim 1.1T$.如此大的杂散磁场可以足够改变样品的磁结构.如何避免这一问题呢?实验中使用的是镀有磁性薄膜的非磁性针尖.将腐蚀好的多晶钨针尖在高真空中退火(flash)到 2200K,去掉氧化层.退火将使针尖变钝,针尖的直径约为 $1\mu m$.然后,在高真空中将针尖在 300K 温度下蒸镀上 7 ± 1 原子层(ML)的 Gd 或者 5 ± 1 ML 的 Fe,接着退火到 550K 保持 4 min.该厚度的 Gd 在 $T < 0.7T_C$ 温度下是铁磁性(居里温度 $T_C = 293K$),在 $T < 0.6T_C$ 温度下是垂直磁化.此时针尖上的 Gd 镀层的磁矩择优取向在平行于针尖方向,适用于观察垂直于样品平面的磁信息;而 Fe 镀层磁矩的择优取向垂直于针尖方向,适用于观察在样品平面的磁信息. Wiesendanger 小组早期曾使用二氧化铬(CrO_2)的针尖^[9],原因是 CrO_2 具有很高的自旋极化率($\sim 100\%$).最近的一篇文章发表在 Phys. Rev. Lett. 上的文章,报道了使用反铁磁 Cr 镀层的针尖^[12],其好处是进一步降低了针尖的杂散磁场对样品磁结构的影响.

自旋极化扫描隧道谱(SP-STs)是通过测量隧道电流 I 对偏压 U 的微分 dI/dU 得到的. dI/dU 直接测量针尖下样品的局域态密度.利用锁相技术(lock-in),关闭 STM 的反馈电流,在直流的偏压 U 上加入一个小的交流调制(如 $U_{mod} = 20mV$, $\nu = 325Hz$).偏压 U 从正到负线性变化,得到一系列对应于不同偏压 U 的 dI/dU 值.如果针尖是自旋分辨的,那么所得到的是对应于不同自旋的局域态密度.选取某个适当的偏压 U ,在此偏压下对应于正负自旋的 dI/dU 值(即局域态密度)相差最大,这时的微分电导 dI/dU 的图即为 SP-STs 图.在此图中,完全排除了表面形貌的信息,反映的是自旋相关的局域态密度信息.

Wiesendanger 小组前后花费了约十余年来发展自旋相关扫描隧道显微术和扫描隧道谱这两种实验技术,在几种表面磁结构研究中得到了出色的成果.关于实验仪器和方法的详细叙述见文献[23].与此同时,德国的 Kirschner 小组也做了一些利用自旋极化扫描隧道显微镜观察磁畴结构的工作.例如他们在 $Cd(0001)$ 表面清楚观察到了其磁畴结构以及宽度为

1.1nm 的畴壁^[26,27],在此就不详细叙述了.

常好.

3 几种磁性表面的 SP-STM 和 SP-STs 研究

3.1 Cr(001)

Cr(001)表面存在铁磁有序而体内则是反铁磁结构, Cr(001)表面的磁结构吸引了研究者的注意. 1989年, Blügel 意识到表面缺陷如单原子台阶对表面磁结构的影响, 提出同一个台阶内的磁矩方向相同而近邻的两个平台的磁矩方向相反的磁构型. 这个微观模型在一年后被自旋极化扫描隧道显微术的实验证实^[9,10]. Wiesendanger 小组首先用 CrO₂ 的针尖得到了自旋分辨的 STM 和 STS 图, 次年用镀 Fe 的针尖进一步证实了 Cr(001)表面的磁构型. 此外还观察到表面螺位错周围的自旋阻挫 (spin frustration)^[11], 这导致形成磁畴和畴壁, 并准确地得到畴壁宽度为 120nm. 如图 1 所示, 其中 (a) 是表面形貌; (b) 和 (c) 是 SP-STs 图. 在 (b) 图箭头所示的地方可以看到表面螺位错周围的自旋阻挫.

3.2 Mn/W(110)

Mn 有许多种结构的相. 在室温下稳定的是立方 α 相, 包含了 58 个 Mn 原子. 此外面心立方的 γ 相和体心立方的 δ 相则是在高温下稳定. 在适当的基底上异质外延生长是获得非平衡相结构的一种方法. 在 W 的 (110) 表面生长的 Mn 单原子层具有和下面衬底相同的 bcc 结构和晶格常数, 其磁结构为二维反铁磁结构. Wiesendanger 小组在此表面上用自旋极化的 STM 基本实现了原子尺度的自旋分辨^[12]. 图 2 显示了分别用 (a) 非磁性的 W 针尖和 (b) 磁性的镀 Fe 的针尖得到的 STM 图, 其中插入的小图分别是理论计算的 Mn 原子的形貌 STM 图和考虑了磁基态的自旋构型而得到的 STM 图. 可以看出两者吻合得非

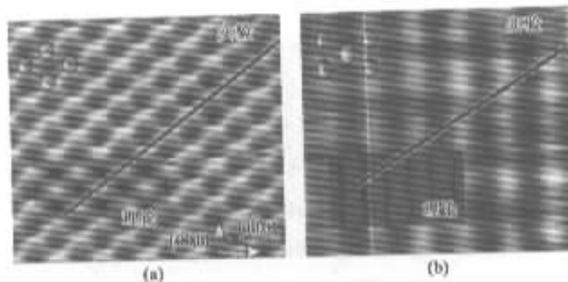


图 2 Mn 单原子层生长在 W(110) 表面

(a) 非磁性的 W 针尖给出的原子分辨 STM 图, 下方插图为理论计算的 Mn 原子的形貌 STM 图 (b) 覆盖有 Fe 镀层的针尖给出的 STM 图, 下方插图中显示的是根据假设的 Mn 原子磁矩构型计算的 STM 图像, 上方插图显示的分别是 Mn 原子层的原子构型和磁矩排列构型, 隧道电流 $I = 40\text{A}$, 偏压 $U = -3\text{mV}$, 图的大小为 $2.7\text{nm} \times 2.2\text{nm}$

3.3 Fe/W(110)

以前的实验^[14,15]发现, 在室温和低覆盖度下, Fe 生长在 W(110) 表面形成一些单原子层高度的 Fe 岛, 当覆盖度大于 1ML, 第二层生长具有强的各向异性, 沿 $[001]$ 方向生长. 而在较高的生长温度下 ($T > 500\text{K}$), Fe 在 W(110) 上的生长是沿台阶生长 (step flow) 模式, 生长成 Fe 带.

图 3 为较高温度下生长的 $1.5 \pm 0.1\text{ML}$ 的 Fe, 它由原子级平滑的平台和单原子高的台阶 (0.224nm) 组成. 单原子层 (ML) 高的 Fe 带和双原子层 (DL) 高的 Fe 带交替出现. 由 Elmers, Hauschild 和 Gradman 等人^[16,17]提出其磁结构如图 3(a) 所示, 双原子层 Fe 的磁化方向在垂直于表面方向, 而单原子层 Fe 的磁化方向则在平面内. 相邻的双原子层的磁化方向反平行排列. 同样是 Wiesendanger 小组的工作^[18]证实了这种结构. 图 3(b) 显示的是分别用 W

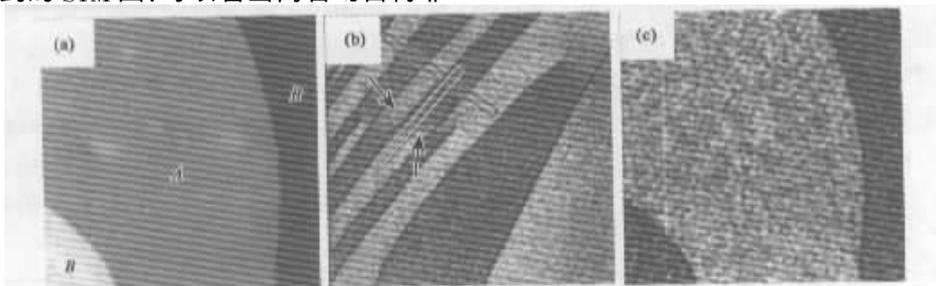


图 1

(a) Cr(001) 表面 $500\text{nm} \times 500\text{nm}$ 的恒电流 STM 图, 针尖为覆盖 Fe 镀层针尖, 隧道电流 $I = 0.18\text{nA}$, 偏压 $U = -60\text{mV}$, 图中可以看到三个不同的平台 (b) Cr(001) 表面的自旋极化 STS 图 ($1\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$), 箭头所指为螺位错周围的自旋阻挫 (c) 是与 (a) 图相同地方的自旋极化 STS 图, 其中的黑白衬度反映的就是磁矩排列方向的信息

针尖和 Gd 针尖在单原子层和双原子层的 Fe 条纹上所作的 dI/dU . 由于要反映的是垂直磁化的双原子层 Fe 条纹, 选用的是 Gd 覆盖层的针尖. 在 $U = +0.68V$ 时, 对应于 DL 的 Fe 条纹的不同磁化方向 (平行或反平行), dI/dU 的值不同. 在此偏压下, 做微分电导 dI/dU 的图 (即 SP-STs 图) (图 3(c)). 可以看出, 相邻 DL 的 Fe 条纹的灰度交替变化, 表明之间存在的是反铁磁性的磁偶极相互作用. 进一步用 SP-STs 的方法, 他们还观察到了单原子层 Fe 条纹的磁畴结构^[19, 20]. 如图 4(b), 使用 Fe 覆盖层的针尖, 可以清晰地看到磁畴和布洛赫畴壁; 图 4(c) 是相应部位的放大图, 可以精确地得到畴壁宽度 $w_{ML} = 0.6 \pm 0.2nm$.

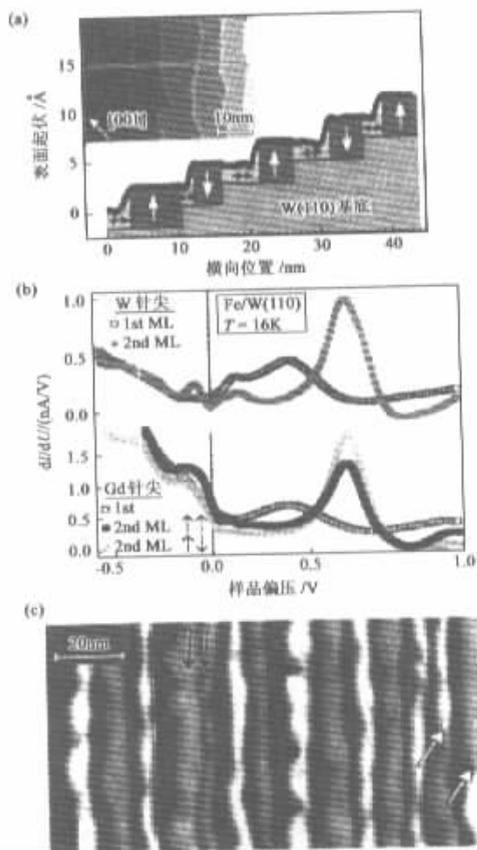


图 3 1.5ML 的 Fe 生长在 W(110) 表面

(a) 是其结构和磁矩构型的示意图, 箭头所指为 Fe 原子层的磁矩排列方向, 插图是其表面的 STM 图, 可以看到每个平台宽度约为 8nm (b) 是分别用 W 针尖和覆盖 Gd 的针尖对 Fe 单原子层和双原子层所做的隧道谱 dI/dU , 对应 Fe 的单原子层和双原子层, 隧道谱分别在 $U = +0.4V$ 和 $+0.68V$ 处有峰, 可以看到对于不同的 Fe 双原子层, Gd 针尖表现出对磁矩方向敏感的隧道谱 (c) 在偏压为 $U = 0.68V$ 所做的 dI/dU 图, 可以看到, 对于相邻的 Fe 双原子层, 黑白灰度交替改变, 显示出其磁矩方向反平行排列, 箭头所示为两个铁磁耦合的双原子层和畴壁

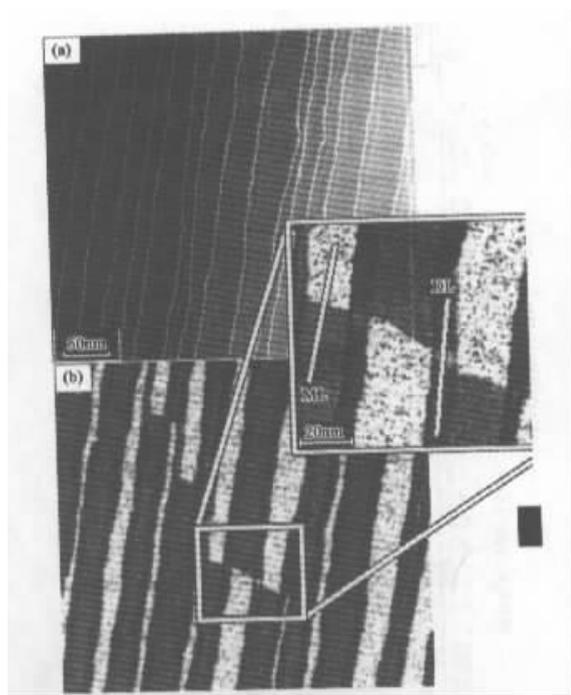


图 4 1.5ML 的 Fe 生长在 W(110) 表面

(a) 为表面形貌图 (b) 为自旋分辨的 STS 图, 清晰地显示出其面内的磁畴结构. 插图显示出原子尺度的单原子层的畴壁宽度为 $w_{ML} = 0.6 \pm 0.2nm$. 隧道电流 $I = 0.8nA$, 偏压 $U = +130mV$

3.4 Gd(0001) 和 Tb(0001) 的表面态

除了应用在观察表面磁结构方面外, 自旋极化扫描隧道谱还用于一些磁性材料的表面电子态的研究. 如稀土金属 Gd(0001) 表面电子态与不同的局域覆盖度之间的关系, Gd 和 Tb 的(0001) 表面电子态的交换劈裂与温度的关系等^[21, 22]. 众所周知, 斯托纳理论认为, 铁磁体的交换劈裂 δ_{ex} 随着温度的上升而减小, 在达到居里温度 T_C 时, 多数自旋子带和少数自旋子带重合, 交换劈裂消失. 然而斯托纳理论适用于准自由电子, 对于窄 d 能带的巡游铁磁体并不很适用. 现在一般认为, 巡游铁磁体的交换劈裂 δ_{ex} 是在达到居里温度还是高于居里温度 T_C 时消失, 取决于电子能带的局域化程度. 在居里点附近, 自旋的长程有序消失, 但短程有序可能仍然存在. 图 5(a) 所显示的是 Tb(0001)/W 表面的 dI/dU 谱. 可以看到分立在费米能级两边的自旋子能带. 图 5(b) 显示了 Tb(0001) 的表面态交换劈裂在小于 T_{CB} (220K) 时仅仅降低了 100meV, 而在 T_{CB} 和 265K 之间降低了 120meV, 高于 265K 时基本保持不变. 由此 Wiesendanger 小组给出了相应的磁结构.

综上所述,自旋极化扫描隧道显微镜和自旋极化扫描隧道谱在纳米尺度磁结构的观察和成像、磁性表面电子态的观察等方面具有空间分辨率高、在原子尺度上可控等诸多优势.同时还可以用来研究正在引人注目的自旋注入问题.该技术在研究纳米结构磁性和自旋电子学等领域有着广泛的应用前景.

参 考 文 献

- [1] Hubert A ,Schäfer R. *Magnetic Domains*. Springer ,1998
- [2] Chapman J N. J. *Phys. D* ,1984 ,17 :623
- [3] Koike K. J. *Electr. Microsc.* ,1994 ,47 :157
- [4] Betzig E ,Trautmann J K. *Appl. Phys. Lett.* ,1992 ,61 :142
- [5] Martin Y ,Wickramasinghe H K. *Appl. Phys. Lett.* ,1987 ,50 :1455
- [6] Dreyer M ,Kleiber M ,Wadas A *et al.* *Phys. Rev. B* ,1999 ,59 :4273
- [7] Binnig G ,Rohrer H. *Helv. Phys. Acta* ,1982 ,55 :726
- [8] Binnig G ,Rohrer H ,Gerber C *et al.* *Phys. Rev. Lett.* ,1983 ,50 :120
- [9] Wiesendanger R ,Güntherodt H-J ,Güntherodt G. *Phys. Rev. Lett.* ,1990 ,65 :247
- [10] Wiesendanger R ,Bürgler D ,Tarrach G. *J. Vac. Sci. Technol. B* ,1991 ,9 :519
- [11] Kleiber M ,Bode M ,Ravlic R *et al.* *Phys. Rev. Lett.* ,2000 ,85 :4606
- [12] Heinze S ,Bode M ,Wiesendanger R. *Science* ,2000 ,288 :1805
- [13] Kubetzka A ,Bode M ,Pietzsch O *et al.* *Phys. Rev. Lett.* ,2002 ,88 :57201
- [14] Elmers H J *et al.* *Phys. Rev. Lett.* ,1994 ,73 :898
- [15] Jensen C ,Reshoft K ,Kohler U. *Appl. Phys. A* ,1996 ,62 :217
- [16] Elmers H J *et al.* *Phys. Rev. Lett.* ,1995 ,75 :2031
- [17] Elmers H J *et al.* *J. Mag. Mag. Mater* ,1998 ,185 :274
- [18] Pietzsch O ,Kubetzka A ,Bode M *et al.* *Phys. Rev. Lett.* ,2000 ,84 :5212
- [19] Pietzsch O ,Kubetzka A ,Bode M *et al.* *Science* ,2001 ,292 :2053
- [20] Pratzner M ,Elmers H J *et al.* *Phys. Rev. Lett.* ,2001 ,87 :127201
- [21] Bode M ,Getzlaff M ,Wiesendanger R. *Phys. Rev. Lett.* ,1998 ,81 :4256
- [22] Bode M ,Getzlaff M ,Wiesendanger R. *Phys. Rev. Lett.* ,1999 ,83 :3017
- [23] Schmidt G *et al.* *Phys. Rev. B* ,2000 ,62 :R4790
- [24] Rashba E I. *Phys. Rev. B* ,2000 ,62 :R16267
- [25] LaBella V P ,Bullock D W *et al.* *Science* ,2001 ,292 :1518
- [26] Wulfhekel W ,Kirschner J. *Appl. Phys. Lett.* ,1999 ,75 :1944
- [27] Ding H F ,Wulfhekel W ,Kirschner J. *Euro. Phys. Lett.* ,2002 ,57 :100

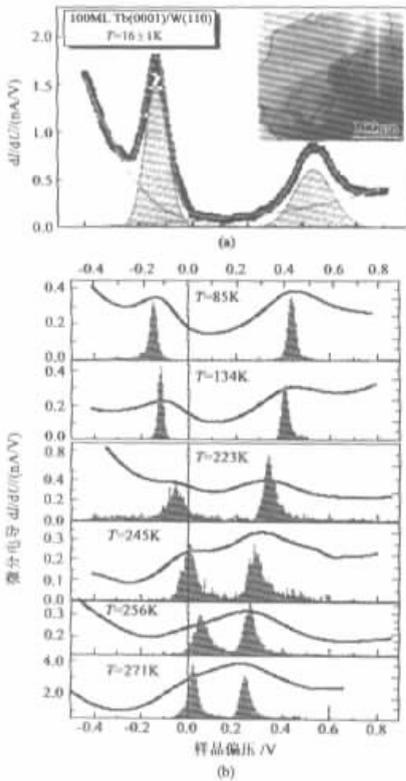


图5 100ML厚的Tb(0001)薄膜生长在W(110)表面
(a)在16K下测量的单个 dI/dU 隧道谱,插图为样品的形貌图;
(b)在不同温度下测量,Tb(0001)表面的隧道谱和相应表面态峰位的变化

4 在自旋注入(spin - injection)上的应用

一个自旋极化的STM针尖实际上就是一个注入自旋的源,而STM所利用的真空隧道效应又避免了金属和半导体接触导致的电阻不匹配,从而极大地降低了自旋注入效率的效应^[23-24],又可以实现小尺度上的自旋注入的精确控制. LaBella等人^[25]利用Ni 110的针尖在GaAs(110)表面上成功地实现了高达92%的自旋注入.使用Ni 110的单晶针尖是利用它高达100%的自旋极化率.由此可见,自旋极化的STM是实现高效率自旋注入的可能途径.

封面说明

激光等离子体推进技术是一种全新的驱动概念,也是激光等离子体逐步走向实际应用的重要标志.封面上显示的是美国宇航局和美国空军联合进行的激光推进火箭的演示实验的照片.照片反映的是火箭模型连续升空的过程.图中一连串的亮点表示火箭模型上升时在不同时刻的位置.右上角的小图是放大的火箭模型的照片.

(中国科学院物理研究所 鲁欣)