

# 眼见为实(下):隐身之反铁磁畴

刘俊明<sup>†</sup>

(南京大学物理学院 固体微结构物理国家重点实验室 南京 210093)

2020-03-04收到

<sup>†</sup> email: liujm@nju.edu.cn

DOI: 10.7693/wl20200508

不见反铁磁

谁将物理绘成图, 万种金红枉画无。

毕竟瑶颜瞧不见, 半凭巧手半求粗。

## 1 引子

上篇所描绘的磁畴成像方法, 虽然有些方法所搭载的工具很强大, 比如洛伦兹成像搭载的TEM、桑巴成像搭载的SEM等, 都与电子显微镜有关, 但这些方法的基本机制都可以在经典电磁学框架下描述, 也因此这些成像的衬度只是决定于成像位点附近的磁矩或杂散场(矢量, 有大小和方向)。分辨率问题可以各显神通, 但这些成像技术一个根本

性的缺憾是: 对材料组成不敏感。

磁性, 众所周知, 主要来源于含d轨道电子的过渡金属离子。而万千材料可以是各种元素组合而成, 磁成像与探测成分组成联动, 才是材料表征技术的正统。要做到这一点, 需借力于量子效应, 即成像原理要有量子过程介入其中, 因为只有量子过程发送出来的信号才带有组成元素电子结构本身的信息。当然, 物理学中有很多普通质

谱技术可以确定材料化学组成。只是, 质谱技术与磁性不是一一对应的, 要将磁性与化学组成元素联系起来, 非电子结构探测莫属。

由此, 不难理解, 为什么光电子能谱, 特别是X射线光电子谱在磁成像中具有举足轻重的意义。材料学者都明白: X射线光电子谱(XPS)就是组成敏感的探测技术。此时, 如果再赋予X射线以磁探测的功能, 具有组成敏感的磁畴探测技术即万事俱备。下面, 我们将详细介绍这个强大的技术。

## 2 X射线吸收

就材料的元素(离子)敏感探测而言, 现在最通用的即是X射线吸收谱(X-ray absorption spectroscopy, XAS)。XAS盛名之下, 这一系列衍生了很多产品, 但最基本的原理较为简单, 如图1(a)所示:

(1) 将一束单色性很好的X射线光速轰击材料, 会有吸收、反射或者透射发生。探测透射(或反射)的X光子, 称为X射线吸收光谱。也可探测被那些吸收光子激发出来的光电子(如Auger电子等)和荧光, 称为光电子能谱。X射线入射到材料, 可以激发非常多的信号, 用于各种探测。

(2) 吸收光子进入离子结构的内

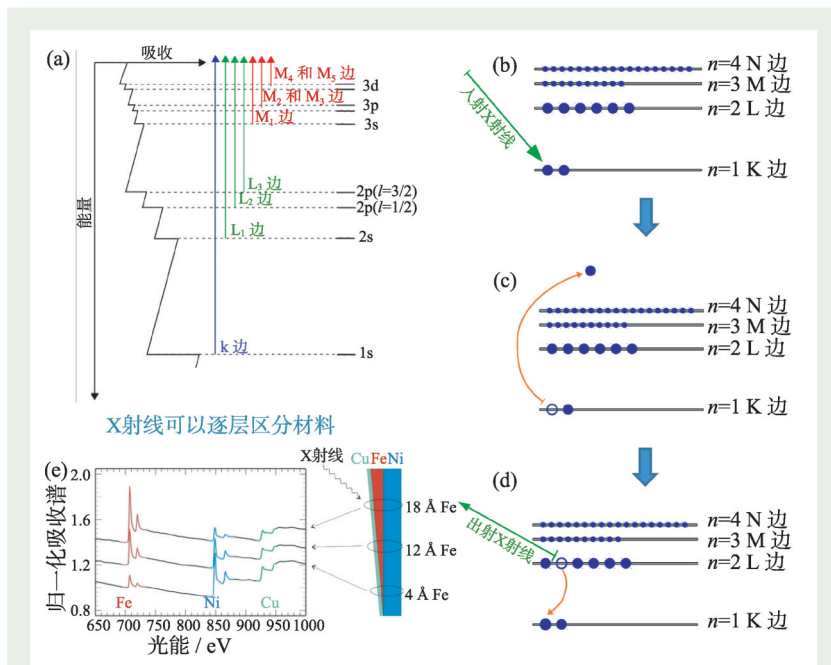


图1 (a)XAS中吸收边的电子能级图像, 图中不同能级带边如K边、L边、M边分别对应1s电子、2s/2p电子和3s/3p/3d电子<sup>[1]</sup>; (b—d)示意性的XAS过程, 展示了吸收谱的产生原理<sup>[2]</sup>; (c)针对Cu/Fe/Ni组成的楔形金属多层结构, 得到的不同激发X射线吸收峰实验曲线<sup>[3, 4]</sup>

层, 将内层中某个能级的电子激发出来。这些电子被激发到材料费米面之上的未占据能级(即空能级)处。这样的激发成功概率最大, 因此会发生所谓共振吸收, 表现为吸收谱峰。

(3) 电子被激发后, 原来能级处留下一个空穴。这一空穴不能稳定存在, 在很短时间(fs)内就会被上一能级中的某个电子自发跃迁而填充, 同时放出一个光子或激发一个诸如 Auger 电子, 如图 1(b—d)所示。这种荧光或光电子, 也可被探测, 如低能电子显微术(LEEM)、光电子发射显微术(PEEM)等等。

很显然, 不同离子的某一深能级(比如 2p 轨道的 L 带边)与费米面处未占据态之间的能级差  $\Delta$  是确定的。只要利用合适的单色器(衍射晶体), 就可连续调整入射 X 射线光子能量, X 射线共振吸收发生在光子能量与  $\Delta$  相等时。通过判定吸收峰对应什么离子, 即可实现样品成分探测。吸收示踪未必有唯一性, 但具体到某种材料, 所包括离子种类只有几种, 这种示踪基本是唯一的, 是一种根植于能带结构的质谱标记。

图 1(e) 是一个 XAS 实验实例, 建立了激发谱与元素之间的一一对应关系。这里, 不同能级吸收边分别对应不同电子, 如图 1(a) 所示。图 1(e) 中不同的激发 X 射线吸收峰对应着不同元素。峰的高低, 则对应样品中不同元素的多少。可以看到, X 射线入射位置不同, 获得的 Fe/Ni/Cu 吸收峰位置不变, 但强度明显不同。也就是说, XAS 不但可以确定吸收峰对应的元素, 同时还是位置敏感的, 还可探测样品不同位置的组成。

图 1 是 XAS 最简单直接的示意原理, 此外还有很多拓展与深化,

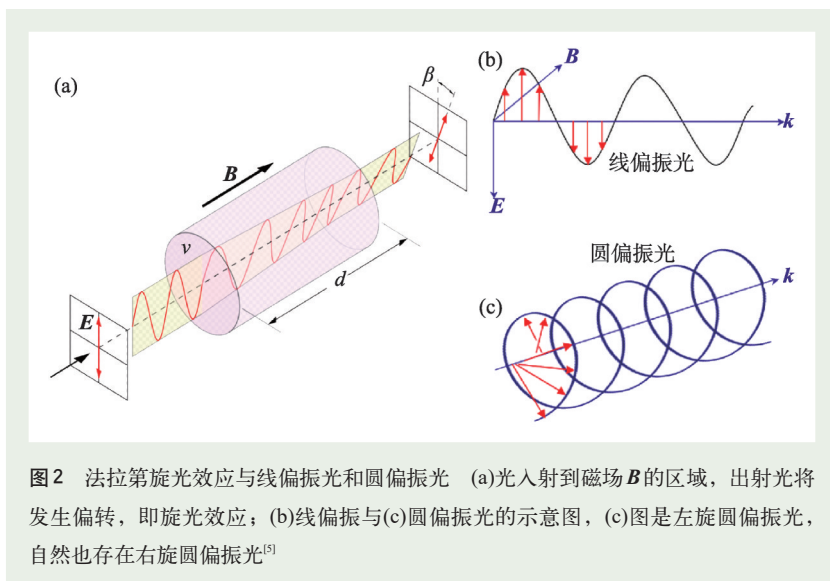


图2 法拉第旋光效应与线偏振光和圆偏振光 (a)光入射到磁场  $B$  的区域, 出射光将发生偏转, 即旋光效应; (b)线偏振与(c)圆偏振光的示意图, (c)图是左旋圆偏振光, 自然也存在右旋圆偏振光<sup>[5]</sup>

其细节与具体能级结构和所在晶体占位相关, 包括电荷类型、自旋角动量、轨道角动量和更高级的相互作用。因此, XAS 表现为一种强有力的电荷、自旋、轨道和组成敏感的谱学技术。如果不涉及这些细节, XAS 的主体功能和特点已一目了然。

不过, 既然是一种通过激发元素深层电子的探测技术, 要获得高度可靠的数据, 就需要有足够的剂量。对一般实验而言, 实验室级别的 X 光管原则上也能进行测量, 只是费时费力。作为成像技术, 还有实现空间分辨的要求, 那就需要高亮度的 X 射线源, 即同步辐射光源。因此大量 XAS 测量都基于各国同步辐射平台而进行<sup>[5]</sup>。

### 3 X 射线磁圆双色谱仪

#### 3.1 经典物理图像

利用光来探测磁性, 最古老的效应是早年法拉第发现的线性偏振光被磁场作用而发生偏转的效应, 即法拉第效应, 如图 2(a) 所示。只要存在沿光波传播方向的磁场  $B$  (或磁矩  $M$ ) 分量, 穿过的线偏振光就将

发生偏转, 即旋光。从电磁学角度最粗糙的理解是: 磁场  $B$  或磁矩  $M$  是一轴矢量(赝矢量), 按照右手螺旋法则, 以  $B/M$  为轴存在环形虚拟或分子电流。电流与光子偏振电场  $E$  相互作用, 即朴素的自旋—轨道耦合物理图像, 导致光子偏振方向以  $B/M$  为轴右旋, 如图 2 所示。

一般情况下, 磁场  $B$  较小时, 偏转角度与  $B$  成正比关系。很显然, 如果偏振光通过磁性材料(即有磁矩  $M$ ), 也会发生此类旋光效应。磁光克尔即属法拉第效应之一种, 只是克尔效应是表面反射过程。X 射线是广义光波, 所以 X 射线入射到磁性材料中, 其透射或反射自然也都会出现旋光效应。

实际光源, 一般都是圆偏振光, 产生线偏振并非很方便。几何光学知识告诉我们, 任何线偏振光可看成是左旋圆偏振和右旋圆偏振的叠加, 而这两个圆偏振之间的振幅相同、螺旋性(helicity)不同、相位不同。所谓法拉第效应, 实际上就是在磁场  $B$ /磁矩  $M$  作用下, 左旋圆偏振光与右旋圆偏振光各自以不同速度(差别很小)传播, 类似于介质中的圆双折射。速度不同, 对光

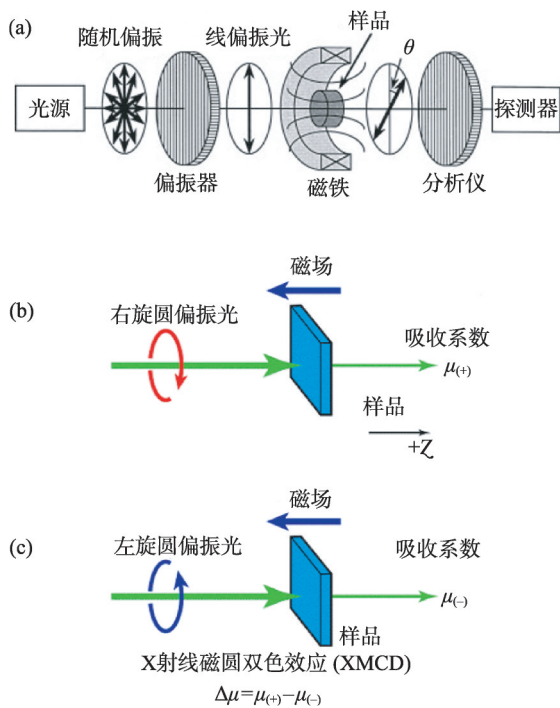


图3 法拉第效应的现代版 (a)线偏振光旋光效应的实验演示<sup>[6]</sup>; (b)右旋圆偏振光和(c)左旋圆偏振光通过磁性样品时, 表象上表现出磁圆双色效应, 造成不同的吸收效果。其中吸收系数 $\mu_{(+)}$ 和 $\mu_{(-)}$ 的差值 $\Delta\mu = \mu_{(+)} - \mu_{(-)}$ 即是样品磁性的信号指针, 在低磁场下与 $B$ 成正比<sup>[7]</sup>

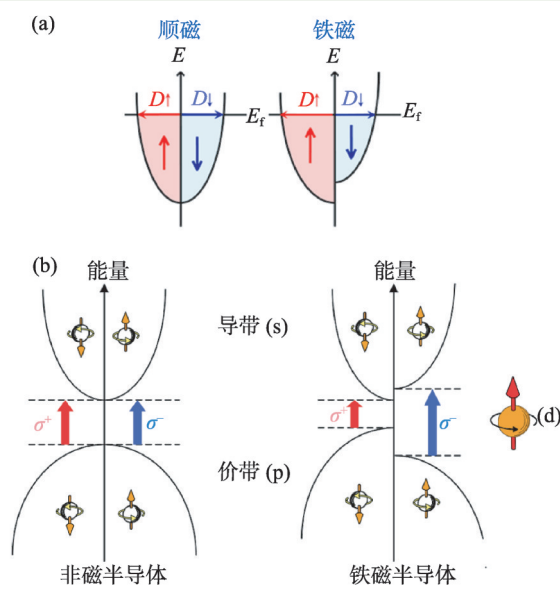


图4 (a)非磁/顺磁金属与铁磁金属的能带结构<sup>[8]</sup>; (b)非磁半导体和铁磁半导体的能带结构的简单示意图, 没有牵涉到轨道细节结构<sup>[9]</sup>

而言即颜色不同, 所以法拉第效应可比拟为光的颜色变化效应, 即圆双色效应 (circular dichroism, CD), 等效于线性偏振光的取向旋转。

上述效应用到磁性材料中, 如果存在沿光传播方向的磁矩  $M$ , 就会发生“磁+圆+双色”效应, 合称“磁圆双色 (magnetic circular dichroism, MCD)”。再加上光波是 X 射线, 最后就得到我们经常听说、但感觉似是而非的“X 射线磁圆双色效应 (X-ray magnetic circular dichroism, XMCD)”。

为了便于理解, 在图 3 展示了实验测量的大致原理。图 3(a) 是针对线性偏振光的法拉第旋光, 偏转角大小反映了磁场  $B$  的大小。图 3(b) 和 (c) 则显示左旋和右旋圆偏振光入射到磁性样品后被吸收的差别, 以吸收系数  $\mu_{(+)}$  和  $\mu_{(-)}$  及其差值  $\Delta\mu =$

$\mu_{(+)} - \mu_{(-)}$  来表示。  $\Delta\mu$ 、 $\mu_{(+)}$  和  $\mu_{(-)}$  都与  $B$  大致成比例变化, 因此都可以作为衡量样品磁性的物理量。

### 3.2 量子物理图像

到目前为止, 理解磁圆双色效应, 都是基于经典物理效应, 还没有触及量子物理的细节。

众所周知, 磁性材料, 无论是磁性金属还是磁性半导体 (大带隙磁性绝缘体很少), 其磁矩实际上是自旋向上子带和自旋向下子带的态密度之差, 如图 4(a) 和 (b) 所示, 分别对应金属和半导体。这里, 以铁磁 Fe 金属为例加以说明, 其 XMCD 测量结果如图 5(a) 所示, 其中样品 (阴影长方形) 磁矩方向用箭头标注出来。

1987 年 G. Schutz 发展 XMCD 谱学时, 对微观量子机制有些讨论。针对磁性离子, 光子被吸收后传递能量, 将 2p 轨道的  $L_2$  和  $L_3$  能级电子激发, 激发强度与 d 轨道的未占据态  $N$  相关。d 轨道总共可容纳 10 个电子, 因此费米面下价带占据态就是  $(10-N)$  个。考虑到磁性离子的自旋矩实际上就是上下自旋占据态之差, 要探测自旋矩大小, 就需考虑上下自旋相关的 X 射线吸收过程, 如图 5(b-i) 所示。需要用左旋和右旋圆偏振光子测量, 分别对应上下自旋。这些左、右旋光子入射到磁性材料中时, 会将其角动量转移给激发的电子, 从而实现自旋相关过程的光电子探测。

对应于左右旋圆偏振光子, 被激发的电子由于自旋-轨道耦合, 就带有了光子的自旋或轨道角动量, 它们分别来自  $L_2$  (自旋上) 或  $L_3$  (自旋下) 能级, 角动量方向相反。按照量子力学规则, 这些激发过程不允许自旋发生翻转, 因此只



能分别被激发到费米面处自旋上或自旋下的d轨道未占据态,如图5(b-ii)和(b-iii)所示。简单说,这些电子就带有了自旋或轨道角动量的选择印记。

为理解简单起见,将电子激发和填充过程粗略写成:

(1) 左旋光(左旋角动量)→激发2p轨道 $L_2$ 电子(设为上自旋)→填充d轨道上自旋态;

(2) 右旋光(右旋角动量)→激发2p轨道 $L_3$ 电子(设为下自旋)→填充d轨道下自旋态。

需要强调的是,磁性材料的磁矩即为d轨道上下自旋态的态密度之差,费米面之下的价带中“上自旋”占据态比“下自旋”占据态剪度高,费米面处未占据的“上自旋”空态就少。所以,左旋光激发的、能够填充到d轨道的电子数就比右旋光激发的、能够填充到d轨道的电子数少,这就是图3(b)所示的右旋光比左旋光吸收更强(差别大约有20%左右)的原因,结果如图5(a)所示。磁矩与波矢同向时, $L_3$ 吸收峰比 $L_2$ 吸收峰高。反向时, $L_3$ 吸收下降, $L_2$ 吸收增强。图5(b)很好地演示了这一微观机制,而理论实验均表明:探测到的光电子谱强度正比于光子自旋与材料磁矩之夹角 $\theta$ 的余弦 $\cos\theta$ (奇函数)。

XMCD技术就讲到这里,现在开始讨论磁畴成像这一核心问题。

#### 4 光电子发射显微术

将上述的XMCD技术嫁接到一台光电子显微镜上,成为一种磁性成像技术,就可以用于显示磁畴了。在所有光电子显微术中,最简单的就是光电子发射显微术(photoelectron emission microscopy, PEEM)。PEEM的发明年代早,甚至比LEEM

都早,光路跟LEEM差不多。图6(a)是一台标准PEEM的配置: X射线入射到处于真空中的样品表面,经历光吸收激发出来的光电子经过物镜聚焦和磁透镜引导进入光电倍增管和荧光屏上,形成图像。当然,这中间需要将X射线入射光斑固定在样品表面,改变入射光子能量,最后才能形成完整的磁畴图像。有些情况下,也可将入射光聚焦后实施空间扫描,遍及整个样品。针对一个NiFe合金薄膜进行XMCD—PEEM成像,其铁磁畴结构随外加磁场的演化图显示于6(b)。可以看到,铁磁畴具有很好的衬度,空间分辨率也较高,畴分辨率能达到100 nm量级甚至更好。

XMCD—PEEM自1990年代投入使用以来,已经成为研究磁畴及其动力学过程的标准技术。为何这一技术能够脱颖而出呢?至少有如下几个优点:

(1) 使用方便、成像剪剪高。

XMCD磁畴成像,即便只使用左旋或右旋圆偏振光子,即可得到磁畴衬度,虽然衬度不高。由第3

章阐述的量子机制即可知,单一圆偏振光子吸收光谱对磁矩方向同样是有响应的。图7(a)所示即为沉积在Cu(001)衬底上的Co/Ni双层膜的左旋光电子图像(+)和右旋光电子图像(-)。这里,图像是将光子能量固定在Ni- $L_3$ 带边处获得的。当然,如果取磁圆双色图像,其衬度会更清晰明了,如图7(a-iii)所示。

(2) 方便研究磁各向异性和重构磁畴三维形态。

对XMCD—PEEM进行适当改进,可以调控样品表面相对入射X射线波矢之间几何方位,则能够重构磁畴的三维形态或研究磁各向异性行为。图7(b)显示了沉积于W(001)上Fe薄膜中的磁畴图像,请注意两幅图像分别是在入射光水平和垂直两个不同方向获得的,图中箭头指出局域磁矩方向。

(3) 组成和磁畴同步测量。

X射线光电子能谱能够探测样品的组成,并与磁畴对应起来,这是所有基于杂散场成像技术都无法企及的。图7(c)所示为一FeNi/Cu/Co三层膜中的磁畴与组成元素的对

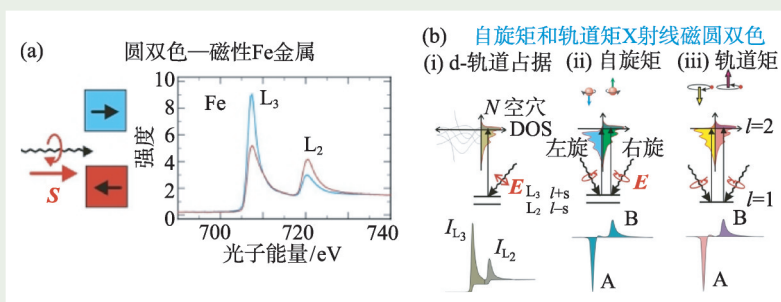


图5 XMCD谱和XAS中光电子吸收转移机制示意图 (a)磁性Fe金属右旋圆偏振的XMCD谱: 浅蓝色和红色代表Fe样品中磁矩的方向,对应的 $L_2$ 和 $L_3$ 能级激发谱剪剪高度不同; (b)以(a)图所示的L边吸收为例讨论XMCD的机理: (i)线偏振的激发谱。电子携带自旋矩和轨道矩,以d轨道单电子模型为例。如果考虑2p深能级与空带之间的光电子动量转移,考虑2p能级因为自旋-轨道耦合发生劈裂,形成 $L_2$ 和 $L_3$ 能级,电子激发的量子过程就可以细致分析清楚; (ii)对于自旋矩,左旋光激发的光电子自旋角动量与材料磁矩反向、相对强度乃负值(A),而右旋光激发的光电子自旋角动量与材料磁矩同向、相对强度为正值(B)<sup>[3]</sup>

应关系图像，以及这些畴各自随外加磁场变化而演化的规律。做到这一点当然不难，因为只要将X射线光子能量固定在某个元素(离子)的某个能级位置即可。

顺便提一下，PEEM显微术本质上是利用低能光电子，因此获得的XMCD信号对外场激励和对样品磁性都比较敏感。这种敏感性便于研究材料的各种本征性质和外场调控。这种优势，很多其他成像技术往往难以实现，因此显得弥足珍贵。

最后，需要指出的是，PEEM成像技术是基于X射线吸收的光电子谱，因此这是一个只能探测样品

表面2-3 nm深度磁信号的技术(样品更深区域，光电子很难激发出来)。从这个角度看是一个缺憾的。的确，与XMCD—PEEM对应，也有透射型光电子能谱，称之为磁X射线透射显微术(Magnetic X-ray Transmission Microscopy, M-XTM)。不过，M-XTM主要用于观测生物样品或者薄膜样品。其成像功能和分辨率与PEEM相当或略高，只是使用不多，在此不再赘述。

### 5 反铁磁畴

行文到此，可以大概归纳一下：所有已经铺排开来的磁畴成像

技术，大致可归类于样品中存在有效磁矩产生的磁感应强度(磁场) $B$ 。磁场 $B$ 要么施加洛伦兹力于运动电荷而成像，如电子显微术；要么施加法拉第效应(旋光)，如X射线成像。虽然每种成像方法的技术细节可能已经到了炉火纯净的地步，但如果将 $B$ 撤掉，那一切都将归于沉寂，当然就别谈磁畴成像了。

问题是，磁性材料中存在数目最多的一大类材料——反铁磁材料。严格意义上，反铁磁态磁矩 $M=0$ 。正因为这一缺憾，反铁磁材料虽然成员众多，但被Neel发现后半个多世纪中几无用处，虽然反铁磁物理风生水起。因为反铁磁态与铁磁态不同，前者身份很多，可称百变之神，而后者要简单和单纯得多。这一“无用”标签，直到巨磁电阻GMR效应问世才停止，其中反铁磁材料用于磁电阻存储异质结和隧道结中的磁性钉扎层。

关于反铁磁材料如何从“无用”到大行其道，可参考科普文章《反铁磁器件在路上》<sup>[13]</sup>一探究竟。由此，我们明白，反铁磁体也是有反铁磁畴的、反铁磁畴也是可以翻转的、反铁磁器件也是需要深入理解和调控反铁磁畴及其动力学的，如此等等。图8(a)所示为一个反铁磁点阵，自旋取向的变化将对材料的电子结构、输运特性，甚至是众多拓扑非平庸的性质都有很大影响。其中，反铁磁畴翻转 $90^\circ$ 能够导致各向异性磁电阻和隧穿磁电阻效应，已经被实验所证实。由此，其自旋电子学应用设计也多见报道，如图8(b)所示的反铁磁阻变存储即为一例。

既然必须要研究反铁磁畴及其动力学，包括反铁磁畴翻转，特别是目前关注的 $90^\circ$ 翻转(因为 $180^\circ$ 翻转相当于原地打圈，没有意义)，而目前

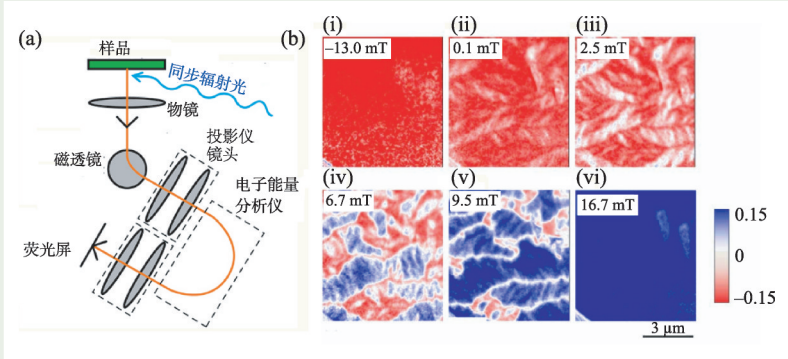


图6 (a)标准的光电子发射显微镜PEEM的构造示意图<sup>[10]</sup>；(b)一系列铁磁畴图片，是NiFe铁合金薄膜中铁磁畴随外加磁场演化的XMCD图像。颜色变化代表Fe的 $L_3$ 带边处的XMCD信号大小。可以看到，随着外加磁场增大，样品由初始单畴态出现新畴的成核生长和形态演化，最后达到沿磁场方向的单畴态<sup>[11]</sup>

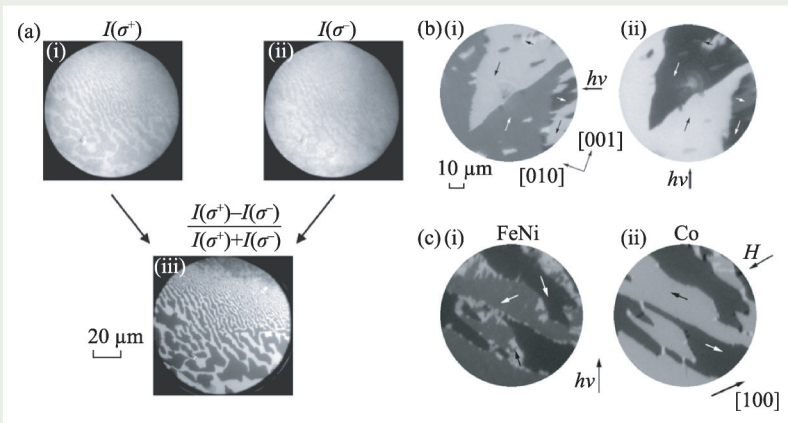


图7 XMCD—PEEM显微术的不同优势 (a)高衬度和分辨率；(b)三维重构的可能性；(c)材料组成与磁畴成像对应<sup>[12]</sup>

通用的磁畴成像技术又看不到反铁磁畴，那怎么办？物理学家再一次走到了making impossible possible的路口！

如前所述，与铁磁畴组态比较单一不同，反铁磁畴具有异常丰富的畴形态与结构，因此反铁磁畴的花样要复杂得多，可不是一个简单的模样。从这个意义上，反铁磁畴的成像，即便有某个类似于磁矩之类的特征量，也变得复杂亦或丰富得多。图8(c)展示了部分反铁磁畴及畴壁的分类与特征表述，其多样性已经让人头晕目眩。

## 6 X射线磁线性二色成像

在X射线吸收谱中，深能级芯自旋被激发到3d轨道空态的物理对铁磁和反铁磁是类似的，被激发的、带角动量的电子填充的空轨道也必须具有同样的角动量。所以，X射线共振吸收对铁磁体和反铁磁体是类似的，如图9(a)所示。图中LaFeO<sub>3</sub>和CoO是反铁磁体，其L边X射线吸收与对应的铁磁体Fe、Co类似。也就是说，X射线吸收更多是一种质谱类技术而其次才是磁谱类技术。

然而，如果我们采用线偏振X光入射到样品中，其吸收谱却会有可能携带自旋结构信息。这种可能性源于X射线磁线性二色谱(X-ray magnetic linear dichroism, XMLD)的物理基础，它与XMCD完全不同：

(1) 线偏振光含有电场矢量 $E$ 。注意，这里的电场矢量具有两重对称轴，而不像圆偏振光的电场随着波矢传播而不断旋转变化的特性将对磁性离子周围电荷分布形成调控，从而提供探测机会。事实上，当光子入射到样品中时，电场 $E$ 将是探测离子局域静电场分布的敏感探针。当离子周围电荷分布存

在因电场 $E$ 引起的各向异性变化时，测量吸收谱的性质将能描绘出离子局域静电势的空间形貌。

(2) 当该离子是磁性离子时，特定自旋取向亦能够借助自旋—轨道

耦合效应，改变局域轨道形状，即改变局域静电势分布。

(3) 由局域静电势分布的变化可以确定自旋的空间方向。因为入射光子的电场是两重交变的，这一方

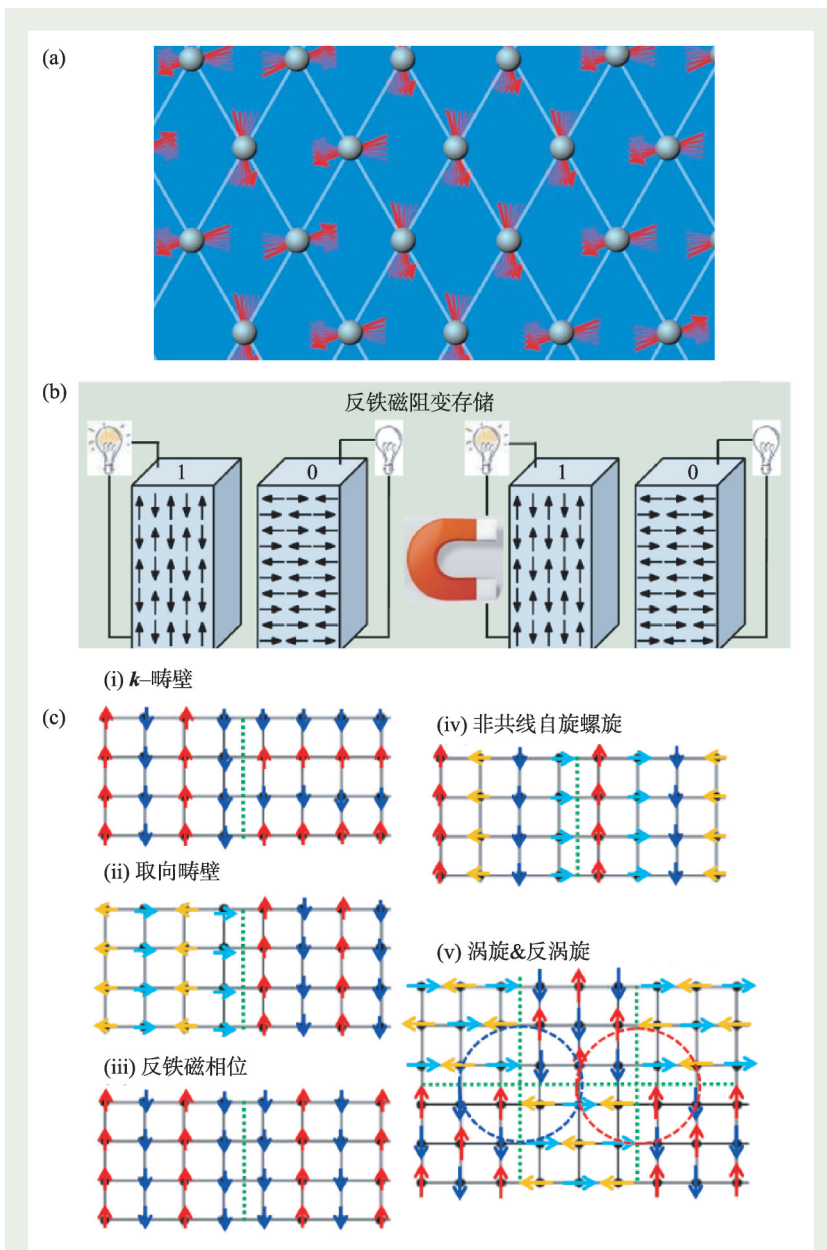


图8 (a) 反铁磁结构中自旋取向变化引发的物理性质变化是反铁磁自旋电子学的物理基础；(b) 设想中的反铁磁存储器原理：反铁磁结构中，自旋翻转速率可达THz，比铁磁快数千倍；反铁磁畴没有杂散场，器件单元可以做得更小；反铁磁亦有各向异性磁电、庞磁电阻、隧穿磁电阻效应；(c) 反铁磁畴组态的大致划分：(i) 畴壁处反铁磁波矢 $k$ 的方向发生变化，定义为 $k$ 畴壁；(ii) 畴壁处反铁磁自旋排列取向变化，定义了取向畴壁；(iii) 畴壁处反铁磁相位变化；(iv) 畴壁处非共线自旋螺旋方向的变化；(v) 反铁磁涡旋—反涡旋对组成反铁磁畴和畴壁<sup>[14]</sup>



法只能得到自旋轴取向，而不能确定局域自旋的具体方向，所以是个夹生饭。

从这一意义上看，这一方法将至少能够被用来探测反铁磁轴向，虽然无法探测自旋构型细节。对于 $90^\circ$ 的共线反铁磁畴，这一方法可以产生足够衬度。但是，具体到是哪一类共线反铁磁，这一方法无从辨别。另外，对非共线反铁磁序，因为没有唯一的自旋轴，这一方法当然也无法进行成像。

最近，这一线性磁二色吸收谱被用来对 $90^\circ$ 反铁磁畴进行成像。从对称性角度看，共线反铁磁自旋轴翻转 $90^\circ$ 导致的吸收谱差别最

大，能提供足够的成像衬度，结果如图9(b)所示。这里，将样品转 $90^\circ$ 或者施加外场使得反铁磁畴翻转 $90^\circ$ ，吸收谱的变化一目了然。如果将入射光束聚焦，然后扫描样品不同区域，将得到吸收谱空间变化图像，此乃共线反铁磁 $90^\circ$ 畴结构的线性磁二色成像技术，如图9(c)所示。可以看到，自旋轴水平和垂直两种取向的反铁磁畴交错在一起，形成了难得的反铁磁畴结构像。

## 7 反铁磁畴成像

对比图9(c)中 $90^\circ$ 反铁磁畴结构和图8(c)所展示的各种反铁磁畴结

构，我们马上就要失望了。这种线性二色吸收成像技术最多也就能部分攻克图8(c-ii)所示的取向反铁磁畴结构成像，对其他各类畴结构无能为力。而为了得到图9(c)的畴成像，已费九牛二虎之力！看起来，还得另辟蹊径、另谋出路。

能不能找到蹊径和出路呢？很难，挑战巨大！但无论如何，物理学家尝试了各种方法，系统地归纳、分析反铁磁畴成像的方法，以供后来者前赴后继或风生水起，是值得称赞的。美国Rutger大学S. W. Cheong和吴伟达教授，联合瑞士苏黎世大学的多铁性物理名家Manfred Fiebig、法国劳埃-朗之万研究院中子衍射学者Laurent Chapon等人，尝试完成了这一工作，算是为后来者作了些许铺垫。这几位知名的学者，最近以“Seeing is believing: visualization of antiferromagnetic domains”为题，在*npj Quantum Materials*<sup>[14]</sup>上发表了他们潜心多年的心得体会。若有兴趣，可在原文了解其中蹊跷或细节。

总体而言，因为没有可以探测的磁场 $B$ 或磁矩 $M$ ，反铁磁畴成像只得仰仗那些自旋与电荷(包括偶极子)、晶格、轨道等自由度之间的耦合效应。这些效应当然比初级序参量( $B/M$ )要弱，所以成像的衬度和量化就难以令人满意。但这里，至少可以用“有胜于无”来开始归类这些成像方法：

(1) 光学成像技术：二次谐波方法(second harmonic generation, SHG)。SHG本身是一项古老的技术，用于探测电极性材料中的极化相关效应。对多铁性材料稍有了解的读者会明白，很多反铁磁材料具有空间反转破缺的对称性，属于极性反铁磁体。立足于反铁磁序与晶体电极

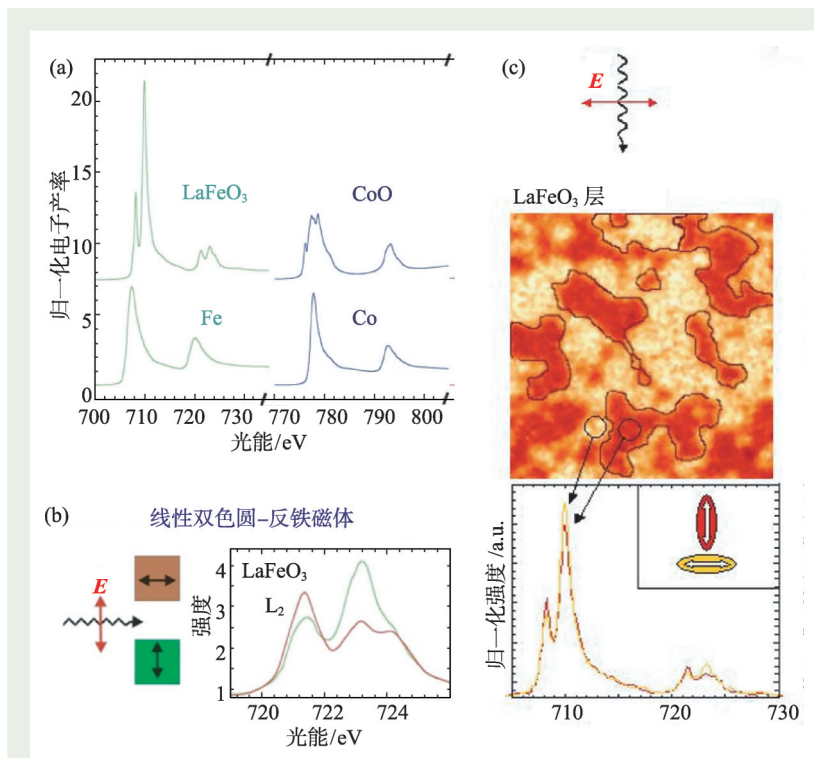


图9 (a) 铁磁体系(Fe、Co)和反铁磁体系(LaFeO<sub>3</sub>、CoO)的X射线吸收谱(XAS)比较。可以看到，大致的共振吸收峰位由离子种类决定，与具体磁结构关系不大。反铁磁体系吸收峰出现细节结构源于反铁磁绝缘体中价带电子受晶场和 $t_{2g}$ 轨道局域性影响；(b)应用线性偏振磁二色效应观测到的吸收峰强度变化。以反铁磁LaFeO<sub>3</sub>为例：假定线偏振X光由左向右入射到样品中，光子的电场沿垂直方向，样品的反铁磁排列分别取水平和垂直方向。此时，Fe的L<sub>2</sub>带边吸收峰如图所示，显示出吸收谱对反铁磁自旋取向敏感；(c)基于此，如果将入射X射线聚焦后对样品逐点扫描，即可得到 $90^\circ$ 反铁磁畴结构的衬度。此即为相互垂直的反铁磁畴结构成像<sup>[1]</sup>

性之间的耦合,即可通过SHG来探测反铁磁畴。

事实上,SHG成像技术早在1990年代就用于多铁性 $\text{Cr}_2\text{O}_3$ 体系的反铁磁成像。因为铁电畴与反铁磁畴是内禀耦合在一起的,从而提供了反铁磁畴成像的可能性。2000年前后,Manfred Fiebig用更先进的SHG技术,对多铁性六角稀土锰氧化物反铁磁畴成像,堪称这一问题的名篇<sup>[15]</sup>。

(2)扫描成像技术:包括自旋极化扫描隧道显微术(spin-polarized scanning tunneling microscopy, SP-STM)和磁力探针显微术(magnetic force microscopy, MFM)。显然,在合适样品条件下,这两类磁畴显微术都可以付诸应用。不过,已经有很多科普文章和应用论文涉及于此,本文不再对此赘述。

(3)基于同步辐射的显微术:包括本文已详细描述的X射线磁线性二色光电子发射显微术(XMLD-PEEM)和最近发展起来的相干软X射线相衬显微术(X-ray Bragg diffraction

phase contrast microscopy, XBPM),后者特别适合具有反相畴结构的反铁磁畴壁成像。

(4)所有用于铁磁畴成像的显微术,包括同时成像(parallel imaging)如洛伦兹显微术,或者扫描成像(scan imaging)如MFM和SP-STM,只要空间分辨率足够高,如达到 $\sim 1\text{ nm}$ 或最少 $\sim 10\text{ nm}$ ,灵敏度足够好,原则上都可以用于反铁磁成像。极端情况下,如果分辨率能够达到单自旋探测,用于反铁磁畴成像将是小菜一碟。事实上,任何反铁磁序都有有限的反铁磁波长(波长),只要成像技术空间分辨率接近这一波长,就可以应用。例如,针对波长较长的诸如自旋波类反铁磁序(螺旋序、手性序等非共线序等),非零的局域剩余磁矩不可避免,这些技术用于成像绰绰有余。

## 8 结语

到目前为止,有关反铁磁畴成像的主要技术和新的发展趋势,在

“Seeing is believing: visualization of antiferromagnetic domains”一文中都有梳理和展望。但是,就自然科学而言,impossible就是impossible。当试图去making it possible时,那只是另辟蹊径、弯道超车、委曲求全之路。而这些尝试,正是现代科学技术解决重大科技问题挑战的价值之一。

回到反铁磁畴成像的本源意义,也就是说,不能只是追求超高分辨率,因为分辨率高到单个自旋时,界定铁磁和反铁磁就失去了意义。既然初级序参量如 $B/M$ 不能利用,就只好退而求其次去追求那些二阶甚至三阶耦合效应。例如,用光学方法,即基于交变电磁场与反铁磁的各种耦合关联;用电学方法,即基于磁电耦合效应;用力学效应,即基于磁弹耦合行为。随着探测技术向更高、更快、更强方向蹒跚而行,未来对反铁磁畴的成像总归是可行的,而这一领域无疑将是热点和前沿。

## 参考文献

- [1] [https://en.wikipedia.org/wiki/X-ray\\_absorption\\_spectroscopy](https://en.wikipedia.org/wiki/X-ray_absorption_spectroscopy)
- [2] Introduction to X-ray Absorption Spectroscopy. <https://www.bnl.gov/ps/userguide/lectures/Lecture-4-Ravel.pdf>
- [3] Magnetic Dichroism Spectroscopy and Microscopy. <https://www-ssl.slac.stanford.edu/stohr/xmcd.htm>
- [4] [https://en.wikipedia.org/wiki/Absorption\\_spectroscopy](https://en.wikipedia.org/wiki/Absorption_spectroscopy)
- [5] <https://en.wikipedia.org/wiki/>
- [6] Miur N. Physics and Fundamental Theory. Comprehensive Semiconductor Science and Technology, 2011
- [7] <http://www.spring8.or.jp/wkg/BL39XU/solution/>
- [8] <https://www.nims.go.jp/mmu/tutorials/img/uev7qc000001zyq.gif>
- [9] Ando K. Science, 2006, 312(5782): 1883
- [10] Photoelectron Emission Microscopy. <https://www.slri.or.th/en/bl32b-peem.html>
- [11] Kronast F, Schlichting J, Radu F *et al.* Surface and Interface Analysis, 2010, 42(10-11): 1532
- [12] Kuch W. Magnetic Imaging. Lect. Notes Phys., 2006, 697: 275
- [13] 反铁磁器件在路上. [https://mp.weixin.qq.com/s?\\_biz=MzU1MTc1MDA1OA==&mid=2247484190&idx=1&sn=45665b743121fee153d6ed2c1bdf33c6&scene=21#wechat\\_redirect](https://mp.weixin.qq.com/s?_biz=MzU1MTc1MDA1OA==&mid=2247484190&idx=1&sn=45665b743121fee153d6ed2c1bdf33c6&scene=21#wechat_redirect)
- [14] Cheong S, Fiebig M, Wu W *et al.* npj Quantum Mater., 2020, 5: 3
- [15] Fiebig M, Lottermoser T, Fröhlich D *et al.* Nature, 2002, 419: 818





ZHUOLING MECHATRONICS  
FOR VACUUM · FOR CRYOGENICS

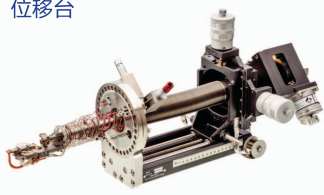
# 卓凌机电

您身边的真空低温产品与服务提供商

卓凌机电依托市场需求，  
提供高品质的真空低温产品已经超过 50000 项，  
是真空低温领域全方位整合服务的供应商。

代理品牌：VG 及普发真空，中国区代理

位移台



氦质谱检漏仪



分子泵



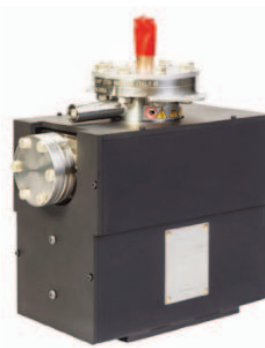
腔体



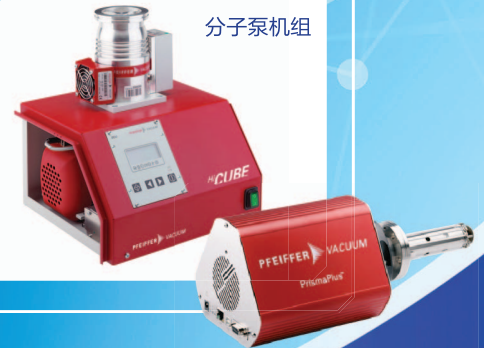
磁力杆



离子泵 / 吸气泵



分子泵机组



VAT 阀门



残余气体分析仪

我们还提供检漏仪租赁及检漏服务，  
以及各种真空泵、规管、四极质谱的租赁服务。



安徽卓凌机电技术有限责任公司

您身边的真空低温产品与服务提供商

上海办公室 鲍美玲 15324491919 meiling.bao@zlvacuum.com  
合肥办公室 杜劲松 15324491122 jsdu@zlvacuum.com

网址: www.zlvacuum.com  
地址: 东湖高新合肥创新中心 13 栋 403 室