

分类号 _____

密级 _____

UDC _____

编号 _____

中国科学院研究生院 博士学位论文

Si(111)衬底上 Co 低维磁性纳米结构的制备及磁性研究

房 亚 鹏

指导教师

成昭华 研究员

中国科学院物理研究所

申请学位级别 理学博士 学科专业名称 凝聚态物理

论文提交日期 _____ 论文答辩日期 _____

培养单位 中国科学院物理研究所

学位授予单位 中国科学院研究生院

答辩委员会主席 _____

摘要

本论文采用分子束外延(MBE)的方法在 Si(111)衬底上制备了 Co 纳米点, 准一维纳米线和薄膜。利用原位扫描隧道显微镜 (STM), 磁力显微镜 (MFM), 磁光克尔效应 (MOKE) 磁强计和非原位面内转角磁光克尔效应 (ROTMOKE) 磁强计对低维 Co 纳米结构分别进行了形貌和磁性的表征, 并利用一致转动模型和自关联函数研究了低维磁性纳米结构的反磁化机制和表面形貌引起的磁各向异性。主要包括:

1. 我们在 4° 斜切 Pb/Si(111) 衬底上利用分子束外延方法制备了 Co 准一维纳米链集合。在原位扫描隧道显微镜和磁光克尔磁力计的帮助下, 我们发现随着覆盖度从 1.7 个原子单层厚增加到 6.7 个原子单层厚, Co 纳米点在沿着线方向发生了融合并且单轴磁各向异性也随之增强。原位磁力显微镜显示对于 6.7 个原子单层厚的 Co 准一维纳米链, 其磁畴结果呈条纹状, 且伴随着 Néel 型畴壁。从平均畴壁宽度我们可以计算有效的单轴磁各向异性能为 $6.1 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ 。
2. 我们在 Pb/Si(111) 衬底上利用表面台阶的修饰作用制备了准一维 Co 纳米链集合和二维 Co 纳米点集合。利用原位扫描隧道显微镜和变温磁光克尔磁强计, 我们研究了这两种 Co 纳米结构的形貌与磁性。结果显示台阶不但能增加 Co 纳米点的均匀性而且能通过引入单轴磁各向异性增强体系的临界温度 T_c 。蒙特卡罗计算表明这种铁磁耦合主要来源于 Co 纳米点间的偶极相互作用且台阶诱导的 Co 纳米结构维度的降低能增强体系的临界温度。
3. 我们在 Si(111) 衬底上用斜入射的方式制备出了 Co(111) 薄膜。面内转角磁光克尔测量表明在六重对称磁晶各向异性上我们在垂直于 Co 入射面方向上引入了单轴磁各向异性。基于一致转动模型的反磁化机制模拟表明单轴磁各向异性能为 $K_u = 1.7 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ 。这与通过表面形貌自关联函数算出来的值 $K_u = 1.1 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ 一致, 且说明引入的面内单轴磁各向异性来源于由斜入射导致的表面形貌改变。

关键词: 磁性纳米点, 准一维磁性纳米线, 磁性薄膜, 磁各向异性, 反磁化机制,

蒙特卡洛，自关联函数，磁力显微镜

Abstract

In this article, we used molecular beam epitaxy (MBE) to fabricate Co nanodots, quasi-one-dimensional nanochains and films on Si(111) substrates. By using *in situ* scanning tunneling microscope (STM), magnetic force microscope (MFM), magneto-optical Kerr effect magnetometer (MOKE) and *ex situ* rotate magneto-optical Kerr effect magnetometer (ROTMOKE), we investigated the morphology and magnetic properties of the low dimensional Co nanostructures. Besides, we used coherent rotation model and self-correlation function to investigate the magnetization reversal mechanism and the morphology induced magnetic anisotropy. The main results are as follows:

1. The ferromagnetic quasi-one-dimensional Co nanochains have been doped on 4°-miscut Pb/Si(111) substrates by molecular beam epitaxy (MBE). With increasing the coverage from 1.7 to 6.7 monolayers, *in situ* scanning tunneling microscope (STM) and magneto-optical Kerr effect (MOKE) magnetometer present a percolation of the Co nanodots along the chains and an enhanced uniaxial magnetic anisotropy. *In situ* magnetic force microscopy (MFM) demonstrates that the magnetic domain structure of the quasi-one-dimensional Co nanochains is stripe type separated by Néel domain walls. The effective uniaxial magnetic anisotropy is calculated to be $6.1 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ in terms of average domain wall width.
2. We fabricated quasi-one-dimensional Co nanochains assembly and two-dimensional Co nanodots assembly on Pb/Si(111) substrates by step decoration. Using *in situ* scanning tunneling microscopy and magneto-optical Kerr effect measurements, we investigated the morphology and magnetic properties of these two kinds of Co nanodots assemblies. The results suggest that the steps can not only improve the uniformity of the Co nanodots, but also increase the critical temperature T_c by introducing an in-plane uniaxial magnetic anisotropy. Monte Carlo simulation suggests that the ferromagnetism is mainly originated from the

dipolar interactions and the critical temperature T_c can be enhanced via the step tuned dimensionality variation of the nanodots assemblies.

3. We report an investigation on magnetic anisotropy of Co/Si(111) films deposited at oblique incidence. An in-plane uniaxial magnetic anisotropy (UMA) with the easy axis perpendicular to the incident flux plane was observed to superimpose on six-fold magnetocrystalline anisotropy of Co films. We built a total energy model to investigate the magnetization reversal mechanism around hard axis. The simulated value of UMA is $K_u=1.7\times 10^5$ erg/cm³, which is consistent with $K_{\text{shape}}=1.1\times 10^5$ erg/cm³ calculated from scanning tunneling microscope image. This good agreement suggests the in-plane UMA is mainly originated from the shape of the oblique deposited Co stripes.

Key words: magnetic nanodots, quasi-one-dimensional magnetic nanochains, magnetic films, magnetic anisotropy, magnetization reversal mechanism, Monte Carlo, self-correlation function, magnetic force microscope

目 录

摘 要	I
Abstract	III
目 录	V
第一章 绪 论	1
1.1 磁性纳米结构和基本物理参量	1
1.2 磁性纳米结构中的磁反转模式与模型	10
1.3 磁性纳米结构中的磁畴结构	18
1.4 磁性纳米结构的制备与表征	22
1.5 本论文选题背景	32
1.6 参考文献:	40
第二章 Pb/Si 衬底上准一维 Co 纳米链的单轴磁各向异性与磁畴结构	45
2.1 引言	45
2.2 Co 磁性纳米链的制备	46
2.3 Co 纳米链形貌与磁性表征和分析	47
2.4 结论	51
2.5 参考文献	52
第三章 台阶诱导 Pb/Si (111) 衬底上 Co 纳米点集合均匀性与偶极铁磁性的增强	55
3.1 引言	55
3.2 Co 纳米点集合与纳米链集合的制备	56
3.3 Co 纳米点集合与 Co 纳米线集合形貌与磁性表征和分析	56
3.4 二维 Co 纳米点集合与准一维 Co 纳米链集合的 Monte Carlo 模拟	59
3.6 参考文献	64
第四章 在 Si (111) 衬底上斜入射沉积 Co 薄膜的表面形貌与磁各向异性	67
4.1 引言	67
4.2 Si(111)衬底上斜入射 Co 薄膜的制备	68
4.3 Co(111)薄膜的磁性表征	69
4.4 Co(111)薄膜表面形貌的自关联函数计算	72
4.5 结论	73

4.6 正负两方向 Co(111)薄膜的斜入射制备	74
4.7 正负两方向 Co(111)薄膜形貌与磁性表征和分析	74
4.8 结论	75
4.9 参考文献	76
4.10 附录	78
第五章 结论	85
博士期间发表及待发表的文章	86
致 谢	87

第一章 绪论

纳米材料与技术是 20 世纪 80 年代诞生, 并迅速发展起来的交叉, 前沿科学领域。它研究尺寸在纳米量级范围内的物质的制备, 性质, 表征及应用。随着现代工业与生活对器件不断小型化的要求, 也随着在小尺度下材料与器件表现出来的特有的新奇特性质, 纳米材料与技术对未来的科技, 经济和社会发展将会产生重大影响。而在众多纳米材料中, 磁性纳米材料无疑有着独特的重要地位, 它与信息化, 自动化, 机电一体化, 国防, 国民经济的方方面面紧密相关。其中, 磁记录材料至今仍是信息工业的主体, 磁记录工业的产值超过 1 千亿美元。磁性薄膜, 磁性液体在吸波隐身, 防尘密封, 扬声器, 阻尼器件和磁印刷等方面有着很广阔的应用。而将磁性纳米颗粒作为载体, 定向投放药物, 定靶消除肿瘤更是当前生物医学的热门研究课题。接下来, 我们将从低维磁性纳米结构的一些基本物理参量出发, 逐步讨论低维磁性纳米结构中的反磁化行为, 磁畴与畴壁结构和低维磁性纳米结构的制备与表征。最后给出本论文的选题背景和主要开展的工作。

1.1 磁性纳米结构和基本物理参量

当材料的尺寸小到可以和电子的费米波长 λ_F 相比较时, ($\lambda_F = 2\pi/k_F$, k_F 为费米波矢), 由于空间受限而导致电子能级的变化将非常明显, 并能引起材料丰富的物理、化学性质变化。而这一空间受限尺寸一般为 1~100 nm 范围内。那么, 按材料在三维空间的维度受限来进行分类的话, 纳米材料可以分为三类: 零维, 指在空间三维尺度均在纳米尺度, 电子受到三维限制, 如纳米尺度颗粒, 原子团簇等; 一维, 指在空间两维处于纳米尺度, 电子受到两维限制, 如纳米线、纳米棒、纳米管等; 二维, 指在三维空间中有一维在纳米尺度, 电子受到一维限制, 如超薄膜、多层膜、超晶格等。当然, 由于磁性材料中存在着磁有序, 除了上述简单的分类外, 磁性材料还有其特有的能量与磁特征长度。

1.1.1 磁各向异性

磁各向异性描述的是磁矩在材料空间上的分布。由其起源, 可分为形状各向异性, 表面各向异性, 磁晶各向异性和应力各向异性。

形状各向异性

形状各向异性起源于自旋-自旋之间的偶极相互作用，根据自旋对模型可以得出相互作用强度为 $l = -\frac{3}{4\pi\mu_0} \frac{\mu_B^2}{r^3}$ ，与偶极相互作用形式相同，因此自旋-自旋之间的偶极相互作用可以导致磁各向异性。在低维磁性材料中，如超薄膜，纳米线等，形状各向异性非常重要。

该相互作用对应的能量称为退磁场能 E_D ，其能量表达式为：

$$E_D = -\mu_0 \int N M dM \quad (1.1.1)$$

其中 N 为退磁因子，当样品均匀磁化时 N 只与形状有关。这种由形状导致的磁各向异性称为形状各向异性 K 。特别地，对磁性薄膜而言 $K = -2\pi M^2$ ，易轴方向为面内¹⁻³；对磁性纳米线而言 $K = -\pi M^2$ ，其易轴方向一般为沿着线方向⁴⁻⁶。

表面各向异性

表面各向异性主要来源于表面对称性降低。由于表面对称性的降低导致表面自旋的交换作用与内部不同，因此表面自旋将处于与体内不同的环境。研究表明这种效应不仅存在于表面的最外层，往往会延伸数个原子层。这往往是由于表面好几层的晶格发生了变化的原因。表面能量项可表述为：

$$E_s = \frac{1}{2} K_s \int (\vec{n} \cdot \vec{m})^2 dS \quad (1.1.2)$$

其中 $\vec{m}$ 为磁化强度的单位矢量， $\vec{n}$ 为表面法线方向的单位矢量。由 Néel 自旋对模型可以得出 K_s 反比于薄膜的厚度 d ^{7,8}，其易轴方向一般为垂直于表面。

在超薄膜体系中，由于垂直于膜面的表面各向异性和沿着膜面的退磁场间的相互竞争，经常会观察到磁矩的自旋重取向⁹⁻¹¹。

磁晶各向异性

磁晶各向异性起源于自旋-轨道耦合^{12,13}，与电子轨道和晶体结构相关联。其自旋-轨道耦合的哈密顿量为：

$$V_{so} = \zeta \vec{L} \cdot \vec{S} \quad (1.1.3)$$

其中 $\vec{L}$ 为轨道角动量， ζ 为自旋-轨道耦合强度。根据微扰理论，可以对自旋-轨

道能量进行讨论：

A. 三维立方晶系

考虑二阶微扰

$$\Delta E^2 = \gamma_a \left(\frac{\zeta^2}{\Delta E} \right) (S_x^2 + S_y^2 + S_z^2) \quad (1.1.4)$$

可以看出在二阶微扰下，三维立方晶系的自旋-轨道耦合不产生各向异性。

我们考虑更高阶的微扰：

$$\Delta E^4 = \left(\frac{\zeta^4}{(\Delta E)^3} \right) [(\gamma_c - 2\gamma_b)(S_x^2 S_y^2 + S_y^2 S_z^2 + S_z^2 S_x^2) + \gamma_a(S_x^2 + S_y^2 + S_z^2)] \quad (1.1.5)$$

可以看出对于三维立方晶系，在四阶微扰下出现磁晶各向异性。

B. 二维平面对称

考虑具有平面对称的二维薄膜情况，其二阶微扰能量为：

$$\Delta E^2 = \left(\frac{\zeta^2}{\Delta E} \right) [(\gamma_d - 2\gamma_e)S_z^2 + \gamma_a(S_x^2 + S_y^2 + S_z^2)] \quad (1.1.6)$$

如果 $(\gamma_d - 2\gamma_e) > 0$ ， $\Delta E^2 > 0$ ，则磁矩平行于膜面；如果 $(\gamma_d - 2\gamma_e) < 0$ ， $\Delta E^2 < 0$ ，则磁矩垂直于膜面。

C. 单轴各向异性

对于单轴各向异性的材料也可以用微扰理论进行讨论。考虑二阶微扰：

$$\Delta E^2 = \left(\frac{\zeta^2}{\Delta E} \right) [(\gamma_b - \gamma_a)S_z^2 + \gamma_a(S_x^2 + S_y^2 + S_z^2)] \quad (1.1.7)$$

可以看出对于单轴各向异性的材料，在考虑二阶微扰理论时将出现磁晶各向异性。

应力各向异性

当磁性纳米材料中，特别是磁性薄膜，出现应力场的分布时，则应力对磁化强度的方向会产生影响，使得磁化强度在方向上存在各向异性。这种由于应力而导致的磁各向异性称为应力各向异性。如在 Ni/Cu (100) 体系¹⁴，Co/Mo (110)¹⁵ 和 Co/W (110)¹⁶ 体系中，由于材料与单晶衬底存在晶格常数的不匹配，从而导致反常的自旋重取向或高阶的磁各向异性。

感生各向异性

感生各向异性也常发生在磁性薄膜中，在 1956–1960 曾一度成为研究的热点。实验发现，对于坡莫合金薄膜，如果以斜入射的方式沉积或加外场时沉积则在膜内产生类似于单轴磁晶各向异性的各向异性¹⁷⁻²⁰，通常称为可旋转的各向异性。这个问题在当时引起了极大的研究兴趣，但并没有对现象的本质进行充分阐述。另外一个有趣的现象是多晶坡莫合金薄膜，由许多晶轴无规则取向的小晶粒组成，这些小晶粒具有局部的立方各向异性，其易磁化轴无规则取向，同时薄膜还有一个整体的单轴各向异性。这种无规则各向异性的产生，都会导致显著的不同行为。整体的单轴各向异性企图使每个磁畴中磁化强度保持在单轴各向异性决定的易磁化轴上，而无规则各向异性却试图使每个晶粒的磁化强度向不同方向倾斜，这两种作用相互竞争，会出现一些特殊的各向异性，因此这种方法也常用来得到人工各向异性。

磁弹性各向异性

磁弹性各向异性是由磁致伸缩效应引起的，即磁体被磁化时，沿磁化方向产生收缩或伸长的效应。另外当磁畴沿不同方向磁化时，可能沿不同方向磁化的两个磁畴的交界处与晶格不匹配从而产生附加能，这项能量称为磁弹性能。一般说来，磁弹性能的表达式略微复杂，且较多存在于 FeMnGa ²¹, NiMnGa ^{22, 23} 等体系，而在我们所讨论的纳米体系中作用不是很大，通常被忽略。

1.1.2 磁性纳米体系的能量

对于磁性纳米材料的研究其中很重要的一个问题就是如何理解磁性纳米材料的磁滞现象。当尺度处于纳米量级的磁性材料可以和临界尺寸相比拟时，纳米体系的静态磁性行为将与块材明显不同；另一方面，当纳米材料的尺寸足够小时，热扰动就会起很重要的作用，动态磁化过程将会成为纳米磁性材料的一大重要特征。这一小节将对体系的能量、磁各向异性能及磁化反转模式作简单介绍。

考虑处于纳米尺度上的单畴粒子体系，其磁化强度 $\vec{M}(\vec{r})$ 的分布取决于铁磁系统的自由能 $E(\vec{r})$ 分布，考虑几种不同的能量项对其进行求解。对于该体系单位体积内的自由能为：

$$E = E_X + E_A + E_D + E_Z \quad (1.1.8)$$

其中 E_X 为交换作用能, E_A 为磁晶各向异性能, E_D 为退磁能, E_Z 为与外场的相互作用能, 又称 Zeeman 能。

交换作用能 E_X

交换作用能的本质起源于原子中电子—电子的库仑相互交换作用, 纯属量子效应。电子自旋之间的相互作用利于自旋趋于平行或反平行排列, 如果采用海森堡模型, 交换作用的哈密顿量为:

$$H_X = -2 \sum_{i>j} A_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad (1.1.9)$$

并假设交换积分的强度相等则交换作用能为:

$$E_X = -2JS^2 \sum_{i>j} \cos \varphi^2 \quad (1.1.10)$$

磁晶各向异性能 E_A

磁晶各向异性能起源于电子的自旋—轨道相互耦合作用, 通过自旋—轨道耦合作用使自旋沿某些特定的晶轴方向从优取向, 因此对一特定的晶体沿空间中某些方向磁化时比其它方向容易, 这个能量差别就是磁晶各向异性能 E_A 。

1. 单轴各向异性

对于单轴各向异性的体系, 其各向异性能通常表示为:

$$E_A = K_1 \sin^2 \theta + K_2 \sin^4 \theta \quad (1.1.11)$$

K_1 和 K_2 是磁晶各向异性常数, 与温度有关, 其数值由实验决定, 通常 $K_1 \ll K_2$ 而且均可正可负, 大多数六角晶体 c 轴为易磁化轴, 对应于 $K_1 > 0$; 某些材料 $K_1 < 0$, c 轴为难磁化轴, 垂直于 c 轴的平面为易磁化平面。

2. 立方各向异性

在立方晶体的场合, 如果定义 x, y, z 沿晶轴方向, 则各向异性能的表达式为:

$$E_K = K_1 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + K_2 \alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2 \quad (1.1.12)$$

其中 K_1, K_2 为磁晶各向异性常数, 其值可正可负, 与温度有关由实验确定。

退磁能 E_D

如果考虑经典的磁偶极相互作用，退磁能起源于静磁性质。磁性材料被磁化以后会在磁性材料内部产生退磁场强度 H_d ，退磁场 H_d 的方向总是与外场 H 和磁化强度 M 相反，因此称之为退磁场。退磁场强度 H_d 的计算是一个很复杂的问题，理论上只能对某些特殊形状的样品求解，至于任意形状的样品则只能从实验中进行测定，不能从理论上严格计算。退磁场 H_d 通常与材料的内禀参数例如磁化强度及外部参量如形状有关，一般写为：

$$H_d = -NM \quad (1.1.13)$$

其中 N 为退磁因子，当样品不是均匀磁化时，退磁场与样品尺寸及磁化强度有关；当样品均匀磁化时，退磁因子只与样品形状有关。对于均匀磁化的椭球体，退磁场能的其表达式为：

$$E_D = -\frac{1}{2}\mu_0 M \cdot H_D = \frac{M^2}{2\mu_0} (N_x \alpha_x^2 + N_y \alpha_y^2 + N_z \alpha_z^2) \quad (1.1.14)$$

可见磁化强度沿不同方向时退磁能也不同，这种由形状引起的能量各向异性称为形状各向异性。这里给出几种特殊形状样品的退磁因子：

1. 旋转椭球体，三个主轴分别为： a ， b ， c ，沿三个方向的退磁因子分别为：

N_a ， N_b ， N_c ，可分为两种情况

- A. 长椭球体，即 $a = b < c$ ，沿 c 轴磁化时， c 轴上退磁因子为 N_c

$$N_c = \frac{1}{k^2 - 1} \left[\frac{k}{\sqrt{k^2 - 1}} \ln(k + \sqrt{k^2 - 1}) - 1 \right], \quad k = c/a$$

$$\text{若 } k \gg 1 \text{ 时, } N_c = \frac{1}{k^2} [\ln(2k) - 1]$$

- B. 扁椭球体，即 $a = b > c$ ，仍沿 c 轴磁化，该方向的退磁因子 N_c ：

$$N_c = \frac{k^2}{1 - k^2} \left[\frac{1}{k\sqrt{k^2 - 1}} \sin^{-1} \sqrt{1 - k^2} - 1 \right], \quad k = c/a$$

$$\text{若 } k \ll 1 \text{ 时, } N_c = \frac{\pi k}{4} \left[1 - \frac{2k}{\pi} \right]$$

2. 球体： $a = b = c$ ，则退磁因子为 $N_a = N_b = N_c = 1/3$
3. 细长圆棒： $c/a \gg 1$ ，则在长轴 c 方向的退磁场很弱，退磁因子

$$N_a = N_b = 1/2, \quad N_c = 0$$

4. 无限大圆片, 即 $a = b \gg c$, 则在 a, b 轴上的退磁因子 $N_a = N_b = 0$, $N_c = 1$

由此可见, 对于不同形状的均匀磁化铁磁体, 在不同方向上的退磁因子明显不同, 因此在不同方向的退磁场能也不同。这种由于形状而导致的不同方向上的各向异性, 称为形状各向异性。

外磁场能 E_H

外磁场能就是磁化强度与外场的相互作用能, 也称为 Zeeman 能, 其表达式为:

$$E_H = -H \cdot M \cos \phi \quad (1.1.15)$$

其中 ϕ 为磁化强度与外的磁场夹角。

对于处于外场中的磁性材料体系, 通常考虑交换能 E_X 、各向异性能 E_A 、偶极相互作用能 E_d 和外场能 E_H , 对以上的总能量求极小值, 便可得到体系磁化强度的分布。

1.1.3 磁性纳米体系中的特征长度

在上一节中我们介绍了磁性纳米体系中的几种能量及它们的表达式。其中交换相互作用能直接来源于电子间的量子相互作用, 作用力最强, 在 0.1eV/atom 的量级。而静磁相互作用能, 包括退磁能和外磁场能, 要弱些, 约为 0.1meV/atom 。最弱的是磁晶各向异性能, 约为 $10\mu\text{eV/atom}$ 。但是在磁有序的描述中, 后两者却非常重要。它们决定了磁性体系中的特征长度。

交换长度

交换长度是交换能与静磁能相互竞争的结果, 当长度小于交换长度 l_{ex} 时, 原子之间的交换作用在起主导作用。

$$l_{ex} = \frac{\sqrt{A}}{M_S} \quad (1.1.16)$$

畴壁宽度

磁畴宽度是交换作用和磁各向异性相互竞争的作用：

$$\delta_w = \sqrt{\frac{A}{K}} \quad (1.1.17)$$

正如上述表达式所表示的，这两个特征长度描述的是交换相互作用分别和静磁能还有磁各向异性之间的竞争关系。那么如果将静磁能和磁晶各向异性相互比较的话，我们可以得到品质因子 Q 。

品质因子 Q

$$Q = \frac{K}{2\pi M_s^2} \quad (1.1.18)$$

有了上述特征长度，我们就可以对低维磁性纳米体系中的一些特征量进行定义和描述了。

1. 超薄膜与表面各向异性

当薄膜的厚度小于交换长度时，我们可以看到在这样一个体系中，交换相互作用是起主导作用的。也就是说，在垂直于薄膜的方向上自旋由于强的相互作用而一致排列。整个薄膜体系在这个方向上可以看成是一个巨大的单自旋。这种厚度下的薄膜，我们通常称之为超薄膜²⁴⁻²⁷。

在一个薄膜体系中，考虑一个强的垂直各向异性导致自旋都垂直于膜面。在交换相互作用能和退磁场能下，整个体系的能量可以写为：

$$E = A \left(\frac{d\theta}{dZ} \right)^2 + 2\pi M_s^2 \cos^2 \theta$$

在适当的边界条件²⁸下把上式对 θ 作微分，并求极小值，得：

$$A \frac{d^2 \theta}{dZ^2} - \pi M_s^2 \sin 2\theta = 0$$

θ 的一个近似解为：

$$\theta = \theta_0 e^{-Z/l_{ex}}$$

这表明在强的垂直各向异性下，自旋在一个很薄的厚度内可以看成是一致排列，且垂直于膜面。但是当薄膜的厚度达到或超过 l_{ex} 时，自旋的排列会发生

明显的扭曲。

2. 畴壁宽度与几何尺寸

考虑一个 fcc Co 的圆形盘，在圆盘中心的地方，由于尺寸效应不明显，畴壁（Néel 畴壁）非常窄；而在圆盘的边缘处，整个体系为了克服表面磁荷，畴壁则比较宽²⁹⁻³⁴。这种畴壁叫做几何受限畴壁，如图 1-1。

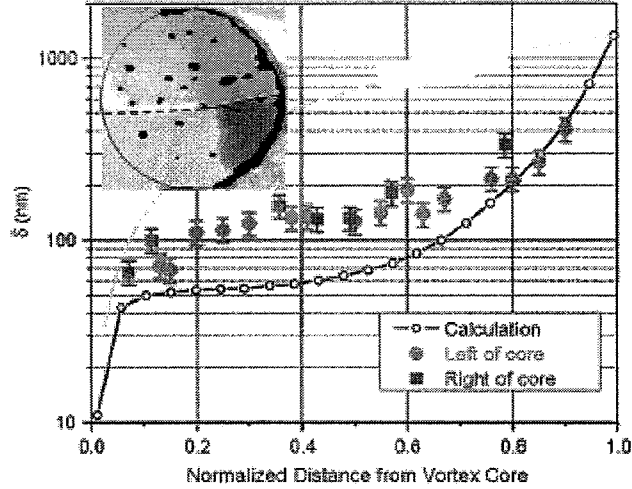


图 1.1.1 1.7μm fcc Co 盘畴壁宽度随着中心距离变化曲线²⁹

畴壁宽度可以由下面的式子来定义³⁵：

$$\delta_{DW} = \Delta\theta \left(\frac{\partial\theta}{\partial x} \right)_0^{-1}$$

其中 $\Delta\theta$ 是磁畴在径向上角度的变化量， $\left(\frac{\partial\theta}{\partial x} \right)_0$ 是垂直于畴壁方向上角度变化的斜率。

上述介绍的两个特征长度则与磁性纳米结构的单畴态十分相关³⁶⁻³⁸：

$$\frac{r_c}{l_{ex}} \approx 2.121 \quad (\text{weak anisotropy})$$

$$\frac{r_c}{l_{ex}} \approx 9Q \quad (\text{strong anisotropy})$$

其中 $Q = \frac{K}{2\pi M_s^2}$ 就是上面提到的品质因子。

表 I 介绍了几种球形材料的临界半径³⁵：

Table 1. Critical radius for single domain spherical particles for selected materials. Values of A and M_s at room temperature taken from table 11, values for the magnetic anisotropy constant K taken from [238] except [239]^a and [240, 241]^b; the reference in the last column refers to the experimental critical radius r_c . $Q = K/(2\pi M_s^2)$ is the quality factor.

Material	Anisotropy	$10^6 K$ (erg cm ⁻³)	l_{ex} (nm)	l_{dx} (nm)	Q	r_c (nm)	r_c^{exp} (nm)	Reference
bcc Fe	Weak	0.481	3.3	20.3	0.026	6.9	10	[242]
fcc Co	Weak	-1.2 ^a	4.8	15.8	0.091	10.1		
hcp Co	Strong	4.12	4.7	8.3	0.324	13.7	4	[243]
fcc Ni	Weak	-0.056	7.6	39.2	0.038	16.2	10	[244]
fcc Ni ₈₀ Fe ₂₀	Weak	0.0027 ^b	5.1	199	0.00065	10.8		

1.2 磁性纳米结构中的磁反转模式与模型

利用磁性纳米体系中的能量表达式来计算和理解磁性纳米结构中的磁反转是非常重要和常用的理论分析方式。下面，我们将分别介绍磁反转的模式和常用的模型。

1.2.1 磁化反转模式

假设磁性粒子体系，其自发磁化强度分布为 $\vec{M}(\vec{r})$ ，如果对该粒子体系加一外场 $\vec{H}$ ，磁化强度 $\vec{M}(\vec{r})$ 与外场 $\vec{H}$ 相互作用使体系能量发生改变，进而导致磁化强度分布改变。当磁场增大至某一值时，磁化强度将发生翻转而靠近外场 $\vec{H}$ 的方向，称此过程为准静态反磁化过程。磁性粒子体系的磁性参数例如剩余磁化强度 M_r 、矫顽力 H_C 以及磁滞回线的形状都由反磁化机理决定。理论分析和实验证明，对于尺寸较大的磁性粒子其磁化翻转过程通过畴壁位移实现；在小于临界半径也就是对于单畴状态的粒子体系中反磁化过程是通过不可逆转动过程(一致转动或非一致转动)实现；当粒子尺寸在某一范围内时出现明显的弛豫现象；当粒子尺寸小至一定程度时则出现超顺磁性。特别的，粒子尺寸对于磁性参数—矫顽力和磁化翻转过程有很重要的关系，大致可以用图 1-2 表示。当 $D > D_{crit}$ 时，粒子为多畴，其反磁化过程为畴壁位移过程， H_C 相对较小；当 $D < D_{crit}$ 时粒子为单畴，但 $d_{crit} < D < D_{crit}$ 时，粒子反磁化过程为非均匀转动， H_C 随粒子直径的减小而增大；当 $d_h < D < d_{crit}$ 时为均匀转动， H_C 达到最大值；当 $D < d_h$ 时， H_C 随粒子直径的减小而急剧降低，这是由于热激发导致超顺磁性所致。下面将对不同直径的纳米粒子体系的反磁化模式作简单介绍。基本方法是根据前面的对体系能量的介绍，对磁性粒子体系计算总能，并对体系求变分，保证体系能量最小，从而

求出体系的磁化强度分布 $\vec{M}(\vec{r})$ 及进行不可逆翻转时的矫顽力 H_C 。

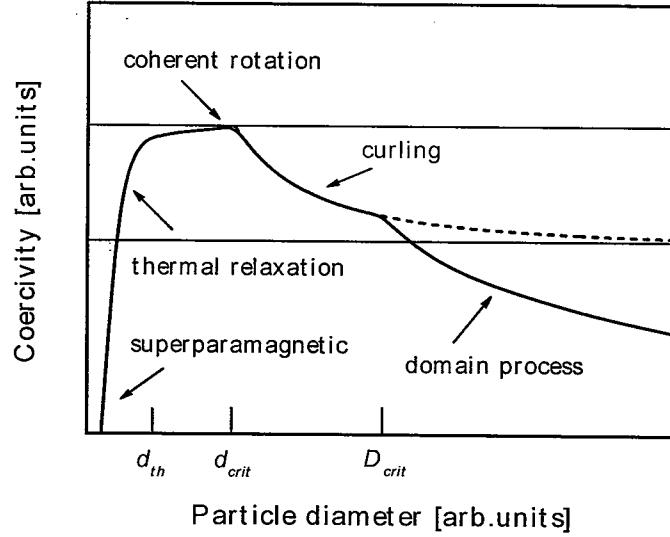


图 1.1.2 磁性粒子的翻转模式及矫顽力 H_C 随粒子直径之间的变化关系^{39,40i}

一致转动 (Coherent Rotation)

一致转动模式：在外场作用下磁化强度 M_S 发生改变时，单畴粒子内部的磁化强度均匀分布且转角处处相同，各磁矩同步转动，称为一致转动或同调转动。如图 1.2.1，对于椭球粒子并且磁场沿粒子易磁化轴方向，并且忽略表面各向异性，则 Brown 方程可以简化为：

$$\begin{cases} \left[\frac{2K_1}{M_S} + H_a + (N_x - N_z)M_S \right] m_x = 0 \\ \left[\frac{2K_1}{M_S} + H_a + (N_y - N_z)M_S \right] m_y = 0 \end{cases} \quad (1.2.1)$$

上式用来描述椭球粒子一致转动的过程，可以给出一致转动时反磁化过程的反转场：

$$H_n = \frac{2K_1}{M_S} - (N_z - N_x)M_S \quad (1.2.2)$$

对于球型粒子反磁化场为：

$$H_n = \frac{2K_1}{M_S} \quad (1.2.3)$$

上面讨论的情况为磁场与易磁化轴平行的情况，Stoner-Wohlfarth 模型对于磁场与易磁化轴的夹角为任意值的一般情况进行了详细讨论。Stoner-Wohlfarth 模型开始作为一种模型，也就是说它是磁化强度在空间分布的一种假设，后来证明是 Brown 方程的一个本征函数，它对应于真实的能量极小，与磁畴理论中为了比较能量极小而提出的磁化强度某个分布不同，因此一种本征模式。

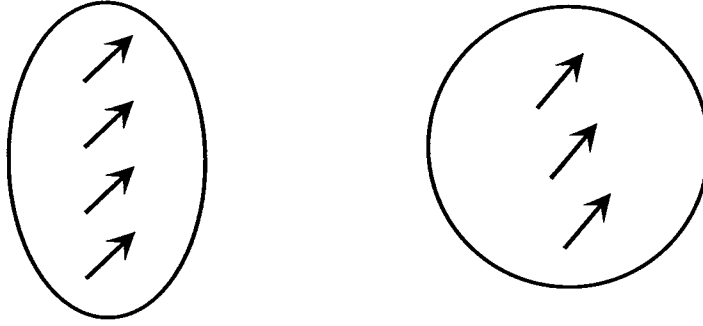


图 1.2.1 单畴粒子一致转动时的自旋分布示意图

涡旋式转动 (Magnetization Curling)

涡旋式磁化反转模式：图 1.2.2 所示，这种模式作为本征模式只适用于旋转椭球，Brown 从微分方程出发，对球体和无限长圆柱体推测了一个特解；而 Frei 等人从磁化强度的某个特殊函数出发，也几乎同时相互独立的得到了相同的解。但是并没有区分反磁化本征模式与模型之间的差别，更为严格的讲，涡旋式磁化反转模式是 Brown 方程的一个本征函数，因此是一种本征模式，不应该将其与提出的各种模型放在同等水平上处理，这里从微分方程的角度对涡旋式磁化反转模式及其反磁化场进行讨论。

对涡旋式磁化反转模式其体系的能量可写为：

$$E = \int \left[A(\nabla m)^2 + \left(K_1 + \frac{1}{2} \mu_0 M_s (H - DM_s) \right) m^2 \right] dV \quad (1.2.4)$$

用变分法对体系能量求极小值，并考虑边界条件 $\vec{n} \cdot \nabla m = 0$ ，即可得到下面的微分方程：

$$-2A \nabla^2 m + [2K_1 + \mu_0 M_s (H - DM_s)] m = 0 \quad (1.2.5)$$

求解上面的微分方程可以得到涡旋式磁化翻转模式的反磁化场为：

$$H_n = \frac{2K_1}{\mu_0 M_s} - N_z M_s + \frac{cA}{\mu_0 M_s R^2} \quad (1.2.6)$$

其中 D 为退磁因子, c 为与形状有关的因子, 从球体到无限长圆柱体 $6.678 \leq c \leq 8.666$, 下面对这两种情况进行讨论。

1. 无限长圆柱体

其成核场为:

$$H_n = \frac{2K_1}{\mu_0 M_s} + \frac{cA}{\mu_0 M_s R^2} \quad (1.2.7)$$

2. 球形粒子

其成核场简化为为:

$$H_n = \frac{2K_1}{\mu_0 M_s} - \frac{1}{3} M_s + \frac{cA}{\mu_0 M_s R^2} \quad (1.2.8)$$

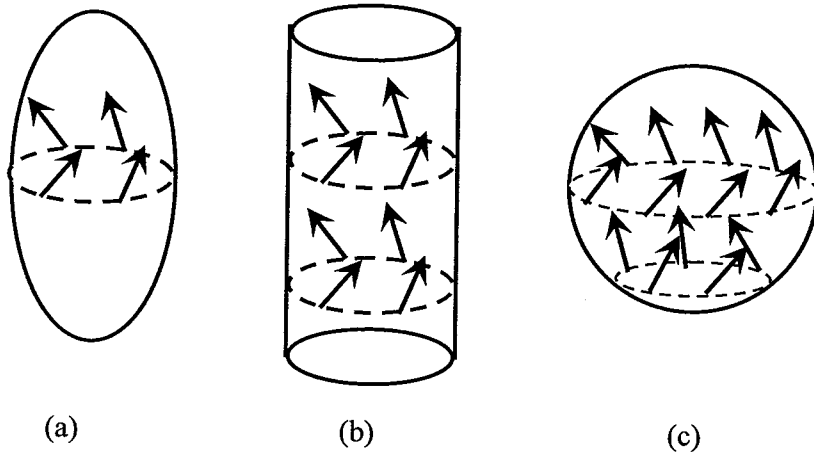


图 1.2.2 涡旋式磁化翻转模式 (a) 椭球体 (b) 无限长圆柱体 (c) 球形粒子

折曲式转动(Magnetization Buckling)⁴¹

上面讨论到一致转动和涡旋式转动都是本征模式, 其中一致转动完全没有考虑交换作用, 另外 Aharoni 和 Strikman 预言还存在第三中本征模式—折曲式转动。这种模式在某一截面上近似为一致转动, 而在垂直界面的方向上则沿螺旋式。文献中报道在无限长圆柱体中这种模式更容易发生, 也就是说无限长圆柱体当尺寸小于某个临界值时发生一致转动, 当尺寸大于临界值时发生折曲式转动。

后来 Aharoni 对于椭球体进一步计算确定了三种模式的存在范围极限⁴², 如

图 1.2.3 所示，给出了可能发生的模式与伸长椭球的半径与轴比的关系。纵轴为归一化半径，横轴为轴比 m 的倒数，可以看出对于 m 等于或小于 4.6:1 时只能发生涡旋式转动或一致转动，对于 m 更大的情况，不排除上述三种模式。

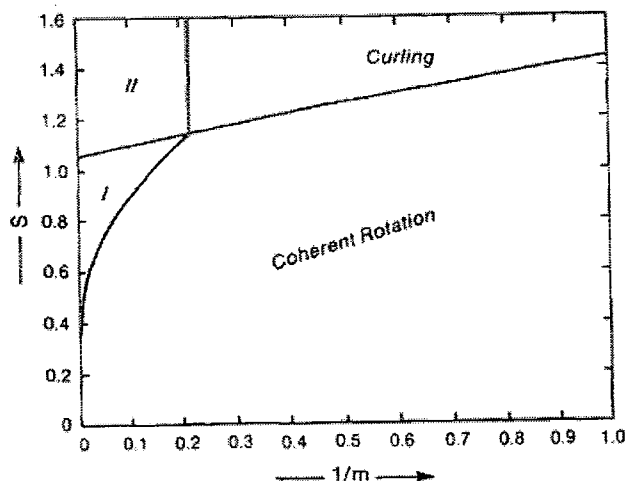


图 1.2.3 旋转椭球体的磁化反转模式与对比半径 S 和轴比 m 的关系⁴²

(区域 I 可能产生折曲式转动或者一致转动；在区域 II 中可能产生折曲式转动或者涡旋式转动)

上面讨论了三种磁化反转模式发生的范围，另外矫顽力与粒子半径和磁化反转模式密切相关，图 1.2.4¹给出了上述磁化反转模式中，矫顽力与粒子半径的关系⁴³。

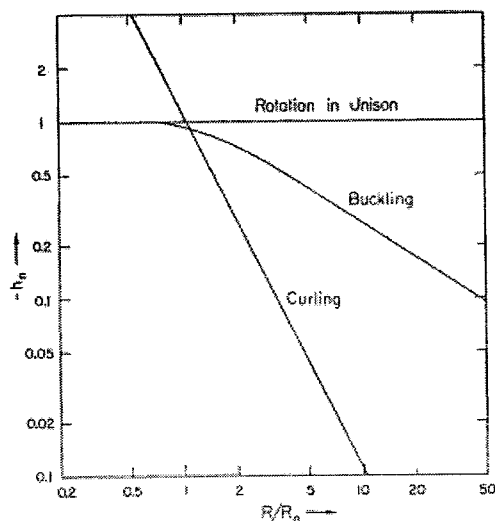


图 1.2.4 三种本征磁化反转模式的矫顽力 H_c 于半径之间的关系⁴³

1.2.2 磁化反转模型

上面从微分方程的角度出发，得出了三种本征磁化反转模式，还有两种比较经典的磁化反转模型：Stoner-Wohlfarth 模型和球链模型，下面对这两种模型进行简单讨论。

Stoner-Wohlfarth 模型

假设椭球形的单畴粒子具有单轴各向异性，下面我们将对椭球单畴粒子的一致转动反磁化模式作一讨论，图 1.2.5 为椭球粒子的磁化反转过程示意图。这里假设由磁晶各向异性导致的易磁化轴沿椭球长轴方向。考虑到单畴粒子体系的能量：

$$E = E_x + E_A + E_D + E_Z \quad (1.2.9)$$

对于一致转动，交换能 $E_x = 0$ ，而且由磁晶各向异性导致的易磁化轴和形状各向异性导致的易磁化轴均沿椭球长轴方向，因此有效的各向异性常数为二者之和即： $K = K_A + K_D$ ，因此体系能量为：

$$E = K \sin^2 \varphi - \mu_0 M_s H \cos(\theta - \varphi) \quad (1.2.10)$$

保证体系处于稳定状态，需满足

$$\begin{cases} \frac{\partial E}{\partial \varphi} = 0 \\ \frac{\partial^2 E}{\partial \varphi^2} > 0 \end{cases} \quad (1.2.11)$$

根据(1.2.10)式，可得

$$\begin{cases} \frac{\partial E}{\partial \varphi} = K \sin 2\varphi - \mu_0 M_s H \sin(\theta - \varphi) = 0 \\ \frac{\partial^2 E}{\partial \varphi^2} = 2K \cos 2\varphi + \mu_0 M_s H \cos(\theta - \varphi) > 0 \end{cases} \quad (1.2.12)$$

求解上述方程，即可得到磁场与易磁化轴为任意夹角时的磁滞回线、矫顽力和剩磁等。这里我们只讨论 $\theta = 0^\circ, 90^\circ$ 的特殊情况。

1. $\theta = 0^\circ$ 时，式(1.2.12)可简化为：

$$\begin{cases} K \sin 2\varphi - \mu_0 M_s H \sin \varphi = 0 \\ 2K \cos 2\varphi + \mu_0 M_s H \cos \varphi > 0 \end{cases} \quad (1.2.13)$$

可以解出 $\sin \varphi = 0$ 或 $\cos \varphi = -\frac{\mu_0 M_s H}{2K}$ ，若保证 $\frac{\partial^2 E}{\partial \varphi^2} > 0$ ，需 $\left| \frac{\mu_0 M_s H}{2K} \right| \leq 1$ 即

当外场满足 $-\frac{\mu_0 M_s H}{2K} \leq H \leq \frac{\mu_0 M_s H}{2K}$ 时，磁化强度沿 $\pm M_s$ 方向；当 $H \leq -\frac{\mu_0 M_s H}{2K}$ 或 $H \geq \frac{\mu_0 M_s H}{2K}$ 时，磁化强度发生不可逆转动，磁滞回线的形状为矩形，把 $H = \frac{\mu_0 M_s H}{2K}$ 称为不可逆转动的临界场 H_k 。

2. $\theta=90^\circ$ 时，式(1.2.12)可简化为：

$$\begin{cases} K \sin 2\varphi - \mu_0 M_s H \cos \varphi = 0 \\ 2K \cos 2\varphi + \mu_0 M_s H \sin \varphi > 0 \end{cases} \quad (1.2.13)$$

可以解出 $\cos \varphi = 0$ 或 $\sin \varphi = \frac{\mu_0 M_s H}{2K}$ ，当 $\left| \frac{\mu_0 M_s H}{2K} \right| \leq 1$ 时，磁化强度分布为：

$$M = M_s \cos(\theta - \varphi) = M_s \sin \varphi = \frac{H}{H_k}；\text{ 当 } \left| \frac{\mu_0 M_s H}{2K} \right| \geq 1 \text{ 时，磁化强度沿 } \pm M_s \text{ 方向，}$$

因此整个过程均是可逆的，没有磁滞。

这是我们对 $\theta=0^\circ, 90^\circ$ 时粒子一致转动时得到的磁性参数，就是我们常见的 Stoner-Wohlfarth 模型，其中磁各向异性常数 K 可以是磁晶各向异性、形状各向异性、应力各向异性或几种各向异性的和。

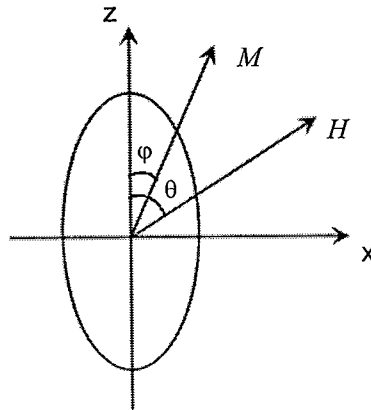


图 1.2.5 椭球形单畴粒子一致转动的磁化反转过程示意图

球链模型

从历史上讲,磁化强度的扇形模型计算是计算非一致转动的反磁化过程度的首次尝试,其目的在于解释为什么 Stoner-Wohlfarth 模型于某些材料的实验结果不符。文献中报道当时通用电气公司开发了一种长微粒子制作的永磁体,实验表明这种磁性颗粒近似为一个线性的“球链”,各球点之间点接触不存在交换相互作用,仅存在静磁相互作用。因此对于此种情况提出了一种模型,认为每一个球中磁化强度一致转动,而不同球中磁化强度的转角可以不同,此模型称为“非对称扇形”模型,其实对称扇形只不过是普通极小化的一个特例,对于具有单轴各向异性且易磁化轴沿球链方向的情况进行了详细研究。

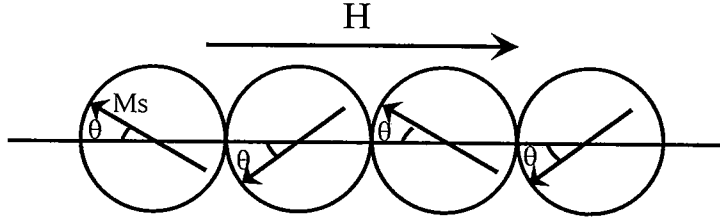


图 1.2.6 对称扇形模型球链模型的磁化反转过程示意图

假设有 n 个磁性颗粒组成一个链,两相邻球点无交换作用,体系能量除磁场能外,只有各球间的磁矩相互作用。任意两个球间的磁矩的互作用能为:

$$E_{ij} = \frac{\mu_i \mu_j}{r_{ij}^3} [\cos(\theta_i - \theta_j) - 3 \cos \theta_i \cos \theta_j] \quad (1.2.14)$$

其中, $\mu_i = \mu_j = \mu$ 为每个球的磁矩。 r_{ij} 为两球间的距离。 θ_i 、 θ_j 分别表示 $\vec{\mu}_i$ 和 $\vec{\mu}_j$ 与 r_{ij} 之间的夹角,夹角满足 $\theta_i = -\theta_{i+1}$

总能量 E_n 为:

$$E_n = \sum_{i \neq j} E_{is} = \frac{\mu^2}{a^3} n L_n (\cos 2\theta - 3 \cos^2 \theta) + \frac{\mu^2}{a^3} n M_n (1 - 3 \cos^2 \theta) \quad (1.2.15)$$

其中, a 为球的直径, L_n 和 M_n 与链中的粒子数 n 有关,由下式确定:

$$L_n = \sum_{j=1}^{\frac{n-1}{2} < j \leq \frac{n+1}{2}} \frac{n - (2j-1)}{n(2j-1)^3}, \quad M_n = \sum_{j=1}^{\frac{n-2}{2} < j \leq \frac{n}{2}} \frac{n-2j}{n(2j)^3}, \quad L_n + M_n = K \quad (1.2.16)$$

L_n 是按相隔为 0, 2, 4 ... 个球的磁矩求和; M_n 是按相隔为 1, 3, 5 ... 个球的

磁矩求和。总能量为：

$$E = E_n + n\mu H \cos \theta \quad (1.2.17)$$

由 $\frac{\partial E}{\partial \theta} = 0$ ，并令 $\theta = 0$ 便得矫顽力：

$$H_C = \frac{\mu}{a^3} (6K_n - 4L_n) = \frac{\pi M_S}{6} (6K_n - 4L_n) \quad (1.2.18)$$

可以看出根据球链模型计算出的沿径向方向的矫顽力 H_C 正比于饱和磁化强度，横向矫顽力 $H_{C\perp} = 0$ 。

1.3 磁性纳米结构中的磁畴结构

在前面我们主要讨论了铁磁体内的四种能量，即：交换能，磁晶各向异性能，退磁能和磁弹性能。而上一节中，在这四种能量的基础上，我们讨论了单畴磁系统的磁反转行为。然而，对于大多数情况下，单畴很难达到。根据热力学基本定律，稳定的磁状态一定是对应于铁磁体内总自由能的极小值状态。若铁磁体无外磁场或外加应力的作用，且交换能和磁晶各向异性能取最小，则自发磁化矢量只能分布在铁磁体的一个易磁化方向。由于磁体表面磁荷会产生退磁能，为了更进一步降低系统能量，就会产生分畴现象。然而，另一方面，虽然分畴降低了退磁能，但随之而来的增加了一项能量-磁畴壁能，限制了无限分畴。退磁能和畴壁能的相互竞争决定了材料中磁畴的形状和大小。

1.3.1 磁畴结构

下面我们将介绍几种常见的典型磁畴结构。

1. 条状畴

对于 $\frac{K_u}{K_d} = \frac{K_u}{2\pi M_S^2} > 1$ ，且为垂直各向异性的薄膜，磁膜中会出现二相畴，包括

迷宫畴，段状畴，磁泡畴。它们统称为条状畴。如图 1.3.1(a)所示⁴⁴。

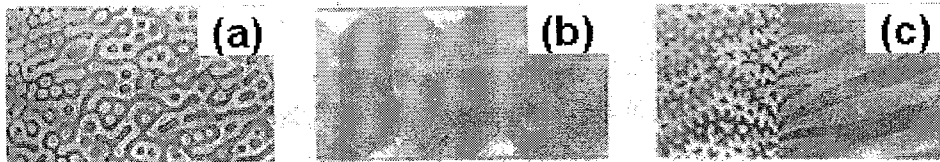


图 1.3.1 几种典型的磁畴结构⁴⁴

Kooy 和 Enz 计算了条状畴的退磁能⁴⁵:

$$E_d = 2\pi M_s^2 D \left(\frac{M}{M_s} \right)^2 + \frac{2\sqrt{\mu}}{1+\sqrt{\mu}} \frac{8}{\pi^2} \frac{D}{\alpha} \sum_{n=1}^{\infty} n^{-3} \sin^2 \left[\frac{n\pi}{2} \left(1 + \frac{M}{M_s} \right) \right] [1 - \exp(-2\pi n \alpha)] \quad (1.3.1)$$

其中 $\frac{M}{M_s} = \frac{W_1 - W_2}{W_1 + W_2}$, W_1 , W_2 分别为黑白磁畴宽度, D 是样品厚度,

$$\alpha = \frac{D\sqrt{\mu}}{W_1 + W_2}.$$

当外场等于 0 时, $W_1 = W_2 = W$, $\frac{M}{M_s} = 0$, 且 $D \gg W$ 时, 退磁能为

$$E_d = 1.71 \times 10^{-7} M_s^2 W.$$

根据总能量最小, 可以得到稳定状态下, 磁畴宽度为 $W = \sqrt{\frac{\gamma D \times 10^7}{1.71 M_s}}$ 。可见,

条状畴宽度 W 与畴壁密度 γ 和材料样品厚度 D 有关。而 γ 又与材料的交换常数及各向异性常数有关。所以 W 是随材料参数 A , M_s , K 和厚度 D 变化的。

2. 闭合畴

闭合型磁畴如图 1.3.1(b)所示, 它的特点是主畴和闭合畴形成闭合磁路, 使其上下表面退磁场能为零。但闭合畴沿易磁化轴伸长会受到两边主畴的限制, 使磁畴中出现磁弹性能。

对于 $K_1 > 0$, 易磁化轴为[100]方向的立方晶体结构。磁畴宽度的表达式为:

$$D = \frac{2}{\lambda_{[100]}} \sqrt{\frac{\gamma L}{C_{11}}} \quad (1.3.2)$$

其中, $\lambda_{[100]}$ 为[100]方向磁致伸缩系数。 C_{11} 为材料的弹性模量。

3. 分枝状磁畴

分枝状磁畴是在大块晶体的错取向表面出现的一种磁畴。在表面附近, 形成细小的磁畴以减小退磁能。而在体内, 为了减小畴壁能, 会形成宽的磁畴。这种分枝过程是由晶体的对称性决定的, 尤其是与可能的易磁化方向数目有关。波纹

状，反向磁化的楔状畴，匕首畴等都属于分枝状磁畴，如图 1.3.1(c)所示。

Hubert 对分枝状磁畴进行了详细的分析⁴⁴。分枝过程可以用交叉画图的方法来描述二维分枝（图 1.3.2 (a), (b)）和三维分枝（图 1.3.2(c)）。从磁化方向上分，分枝过程可以分为：两相分枝，在磁畴细化过程中通过两个磁化相完成；多相分枝，在磁畴细化过程中通过两个以上的磁化方向完成。

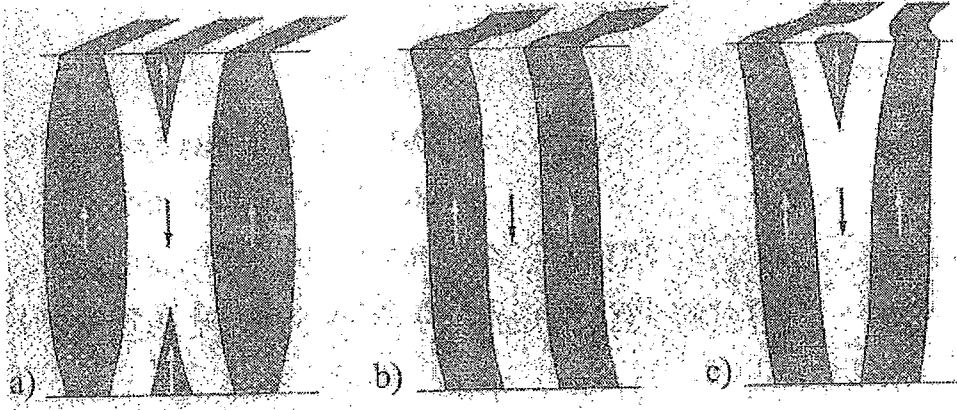


图 1.3.2 两相系统中的磁畴分枝(a), (b)二维分枝 (c)三维分枝⁴⁴

对单轴各向异性材料，只有两个易磁化方向，磁畴分枝是很自然的。但是，在立方晶体材料中，在一定的条件下也会出现磁畴分枝。

在二相分枝理论中包含三个能量：在表面附近随磁畴壁的增加而增加的畴壁能，与内部杂散磁场有关的能量，由畴宽变化引起的退磁能。对于一个厚度为 D 的薄片，二相分枝结构的单位面积的总能量为：

$$e_{tot} = 2 \int_0^{D/2} [\gamma_w / W(z) + F_i (dW(z)/dz)^2] dz + 2C_s W_s \quad (1.3.3)$$

其中 90° 是有效畴宽， γ_w 是畴壁能密度， F_i 和 C_s 分别为内场能和退磁能系数， z 是垂直于薄片的坐标。由薄片中心开始计算， F_i 与磁体的磁矩以及各向异性有如下关系：

$$F_i = 0.5K_d / \mu^* \quad (1.3.4)$$

$$C_s = 0.136K_d / (1 + \sqrt{\mu^*}) \quad (1.3.5)$$

其中 μ^* 是有效磁导率。对单轴各向异性材料， $\mu^* = 1 + K_u / K_d$ ；对具有正的各向异性的立方晶体，有 $\mu^* = 1 + K_u / K_1$ 。对具有负的各向异性的立方晶体，有 $\mu^* = 1 - 3K_u / 2K_1$ ， K_1 为立方晶体的各向异性常数。

通过对 (1.3.3) 式求极小, 可以得到畴宽与 γ_w , F_i 以及 C_s 的关系。在样品厚度很薄时, 表面畴宽度 W_s 和体畴宽度 W_b 相等, 材料的磁畴不发生分枝。畴宽为:

$$W = \sqrt{D\gamma_w / 2C_s} \quad (1.3.6)$$

当样品厚度大于 D_s 时, $D_s = \frac{1}{8}\pi^4\gamma_w F_i^2 / C_s^3$, 畴宽小于体畴的表面畴会出现, 枝状畴在表面细化, 以减小退磁能。体畴宽度 W_b 以 $D^{2/3}$ 增加:

$$W_b = \sqrt[3]{(4D^2 / \pi^2)(\gamma_w / F_i)} \quad (1.3.7)$$

而表面畴宽度 W_s 保持不变:

$$W_s = 4\gamma_w F_i / C_s^2 \quad (1.3.8)$$

1.3.2 畴壁结构

在磁畴形成以后, 两个相邻磁畴的磁化强度方向不同。它们之间存在着一个宽度约为 10^3 原子间距的过渡区域, 称为畴壁。在这个过渡区域内磁矩遵循能量最小原理, 按照一定的规律逐渐改变方向。由于材料的易磁化方向不同, 相邻磁畴的自发磁化强度方向间会形成不同的角度。一般单轴晶体只有 180° 畴壁。当畴壁两侧磁畴的自发磁化强度矢量的方向不是 180° , 而是 90° , 107° , 71° 等, 统称为 90° 畴壁。在立方晶系中, 对于 $K_1 > 0$ 的晶体, 易磁化轴方向是 $[100]$ 方向, 会出现 90° 磁畴壁。

相邻磁畴内的磁化矢量 M_s 是逐步转动实现相邻两磁畴间磁化矢量方向转变的。如图 1.3.3 所示。

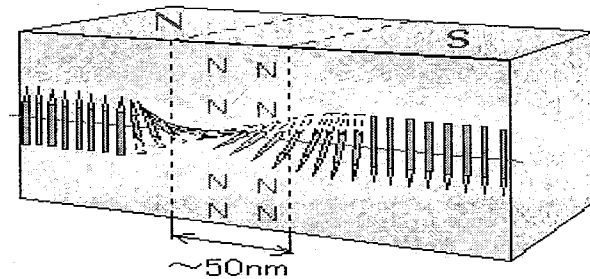


图 1.3.3 磁畴壁中电子自旋的过渡形式示意图

根据畴壁中磁矩过渡的转动方式不同，畴壁可以分为布洛赫（Bloch）壁和奈尔（Néel）壁。

Bloch 壁是指磁矩在过渡过程中始终保持平行于畴壁平面，在畴壁上无自由磁荷出现，只在晶体的上下表面出现磁荷。对于大块晶体材料而言，由于样品的厚度 D 比畴壁的厚度 δ 大得多，畴壁平面内的退磁因子很小。这样，虽然晶体的上下表面出现磁荷，但其产生的退磁能可以忽略不计。因此大块晶体材料内的畴壁多属于布洛赫壁。而对于薄膜样品，由于样品厚度 D 的减小，在畴壁与样品表面的交界处磁荷产生的退磁能就不能忽略了。当样品厚度减小到一定的厚度时，样品中会出现 Néel 壁，即磁矩平行于薄膜表面逐步过渡。这样，就避免了表面磁荷的产生。Néel 通过粗略的讨论，得到当样品厚度 D 小于畴壁的厚度 δ 时，薄膜中出现 Néel 壁⁴⁶。

为了计算畴壁的厚度和由磁畴产生带来的畴壁能，假设在整个畴壁内，磁矩是均匀连续过渡的，每个磁矩转向的角度都相等。则 180° Bloch 畴壁的畴壁能 γ 和畴壁宽度 δ 可写成：

$$\gamma = 4\sqrt{A_1 K_1} \quad (1.3.9)$$

$$\delta = \pi \sqrt{\frac{A_1}{K_1}} \quad (1.3.10)$$

其中 $A_1 = \frac{AS^2}{a}$ ， a 是立方晶格常数， A 是交换积分， K_1 为磁晶各向异性性能。

畴壁能 γ 还可以写成如下形式：

$$\gamma = \left(\frac{k_B \times T_C \times K_1}{a} \right)^{1/2} \quad (1.3.11)$$

其中 T_C 是材料的居里温度， k_B 是波尔兹曼常数。

1.4 磁性纳米结构的制备与表征

在磁性纳米科学与技术中，对磁性纳米结构进行制备与表征是非常重要的，也是具有应用意义的。这一节，我们将着重介绍在超高真空的环境下用分子束外延来制备磁性纳米结构。并介绍相关的原位形貌，磁性表征方法。

1.4.1 磁性纳米结构的制备

对于磁性纳米结构而言，气体分子的吸附将显著改变低维结构的性质。为了保持低维结构的性质，通常，样品是在超高真空 ($\leq 10^{-9}$ mbar) 系统中制备出来的。而且，特别对于过渡族铁磁金属而言，超高真空环境也避免了磁性金属的氧化。

我们的分子束外延 (MBE) /变温扫描探针显微镜 (VT-SPM) /表面磁光克尔效应 (SMOKE) 联合系统 (图 1.4.1) 是由德国 Omicron 公司生产的。联合系统有一套完善的真空泵组，包括机械泵、分子泵、钛升华泵和离子泵组成。其中，机械泵与分子泵共同作为前级泵组，工作极限真空度可达 10^{-8} mbar。离子泵和钛升华泵作为后级泵，整个系统可维持在 2.0×10^{-10} mbar 左右。

分子束外延技术是一种蒸发镀膜的方式。在超高真空环境下，蒸发出来的原子平均自由程可达到 1m 且能实现亚原子单层生长。故利用分子束外延能够精确

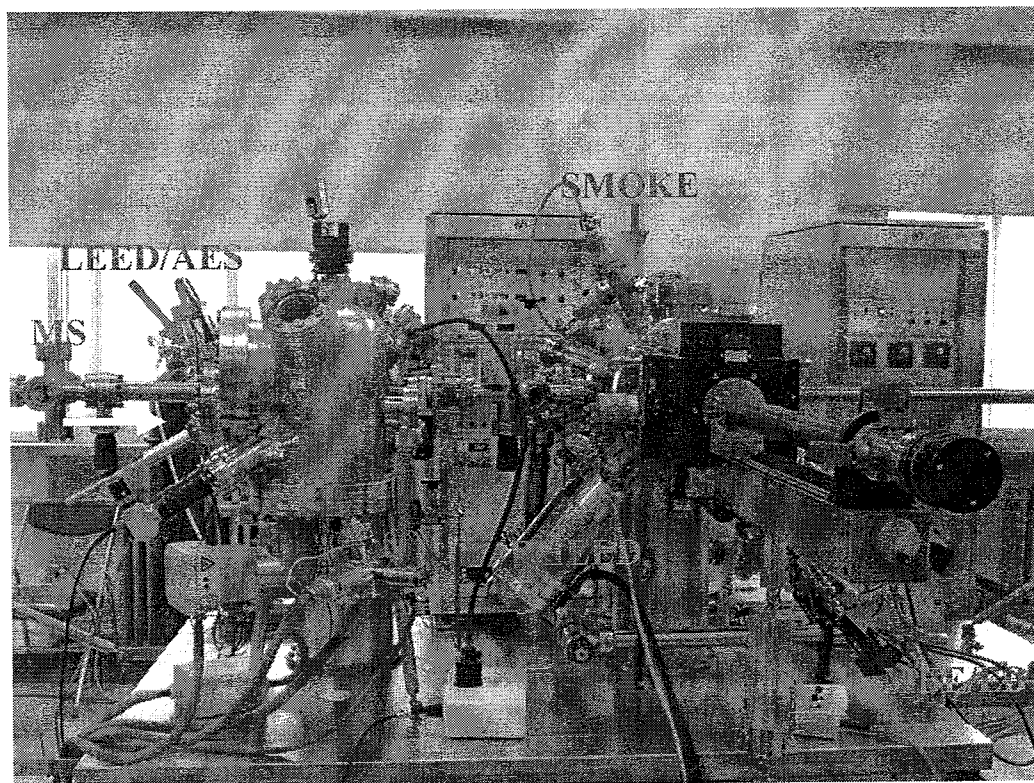


图 1.4.1 德国 Omicron 公司生产的分子束外延 (MBE) /变温扫描探针

控制薄膜的厚度和组分。MBE 用的蒸发源大致分为两种：热蒸发和电子束蒸发。

热蒸发使用最多的是 Knudsen-Cell (K-Cell) 蒸发源, 其分子束出射孔径远小于容器内蒸汽分子的平均自由程。其结构如图 1.4.2 所示, 包括: 1、聚合物氮化硼 (PBN) 坩锅, 可以达到 $1500\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的高温而不分解; 2、加热的电阻丝, 通常由 Ta 制成; 3、由 Ta 做成的金属屏蔽, 可以使坩锅均匀加热; 4、热偶规, 测量坩锅的温度, 加上一个温控仪就可以通过调节加热 Ta 丝的电流来控制蒸发的温度。在源炉前面通常都会配有挡板, 用以控制蒸发时间。在坩锅外面配有冷却循环水套, 可以给源炉散热, 减少对周围环境的热辐射。热蒸发的蒸发源主要实用于蒸发温度比较低的材料如 Pb、Mn、Al 等。对于蒸发温度很高的材料, 比如 Fe、Co、Ni (蒸发温度在 1000°C 以上), 使用热蒸发源会对其周围的电子器件及真空有损害, 而一般采用电子束蒸发源, 如图 1.4.3。其工作原理为: 由加热的灯丝发射出电子束, 经千伏的偏置电压加速后轰击到坩锅处或源棒材料上, 对材料实施局部加热, 并由循环水装置对蒸发源进行水冷。因此, 电子束蒸发沉积可以做到避免坩锅材料的污染。对于棒状蒸发物质, 可以不使用坩锅, 直接把金属棒后端固定, 电子束直接轰击蒸发物质的前端。其缺点是电子束的绝大部分能量要被坩锅的水冷系统带走, 热效率较低。

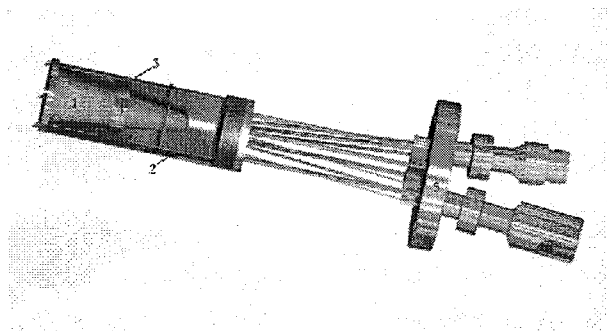


图 1.4.2 Knudsen-Cell 蒸发源的结构示意图

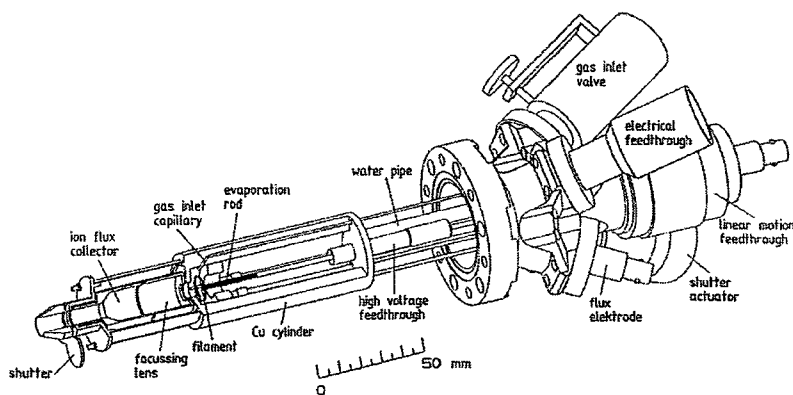


图 1.4.3 电子束蒸发源的结构示意图

1.4.2 磁性纳米结构的形貌表征

不同于通常我们制备的块材，纳米材料无法用肉眼或简单的光学显微镜看到。而监控纳米材料的形貌无疑是了解磁性纳米结构非常重要的一步。下面我们将针对实空间形貌表征的扫描隧道显微镜，原子力显微镜和针对倒空间形貌表征的低能电子衍射，高能电子衍射作相关介绍。

扫描隧道显微镜（Scanning Tunneling Microscope STM）

扫描隧道显微镜的物理基础是电子隧穿效应。当两导体被一薄绝缘层隔开时，电子在一定偏压下可以穿透势垒从一个导体流向另一个导体。如图 1.4.4，其中金属针尖和导电样品为两端电极，中间的真空层为绝缘势垒层。

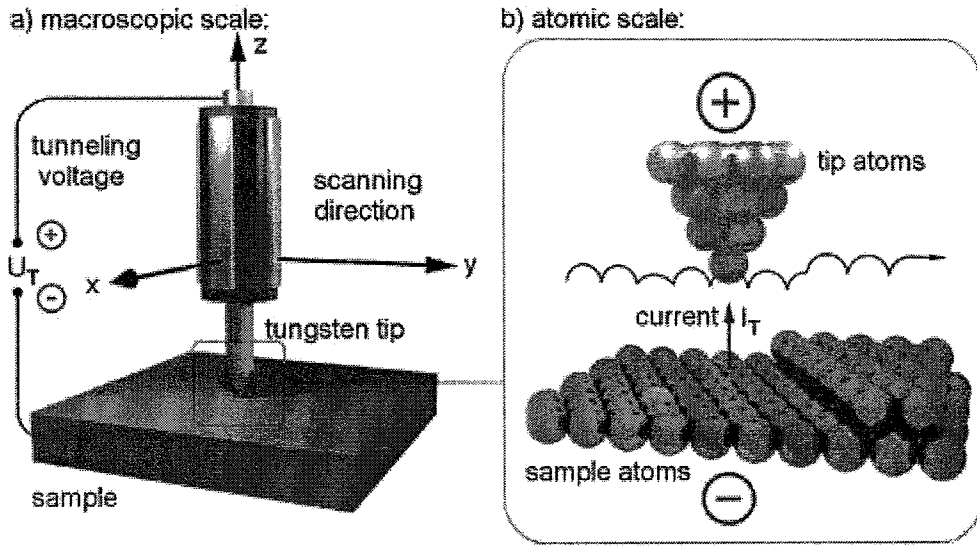


图 1.4.4 扫描隧道显微镜原理示意图

如果给隧道结两端加上大小为 V 的偏压，则隧道电流 I 与 V 有如下关系：

$$I = \frac{4\pi e}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} [f_s(E_F - eV + \varepsilon) - f_t(E_F + \varepsilon)] \times \rho_s(E_F - eV + \varepsilon) \rho_t(E_F + \varepsilon) |M|^2 d\varepsilon \quad (1.4.1)$$

其中 $f_s(E_F - eV + \varepsilon)$ ， $\rho_s(E_F - eV + \varepsilon)$ 和 $f_t(E_F + \varepsilon)$ ， $\rho_t(E_F + \varepsilon)$ 分别为样品，针尖电子态的费米分布和电子态密度。 M 为隧穿矩阵，与势垒层厚度 d 有关。当 d 改变 0.1 nm 时， I 将发生一个量级的改变。STM 就是利用了这种高灵敏性来探测样品的表面形貌。

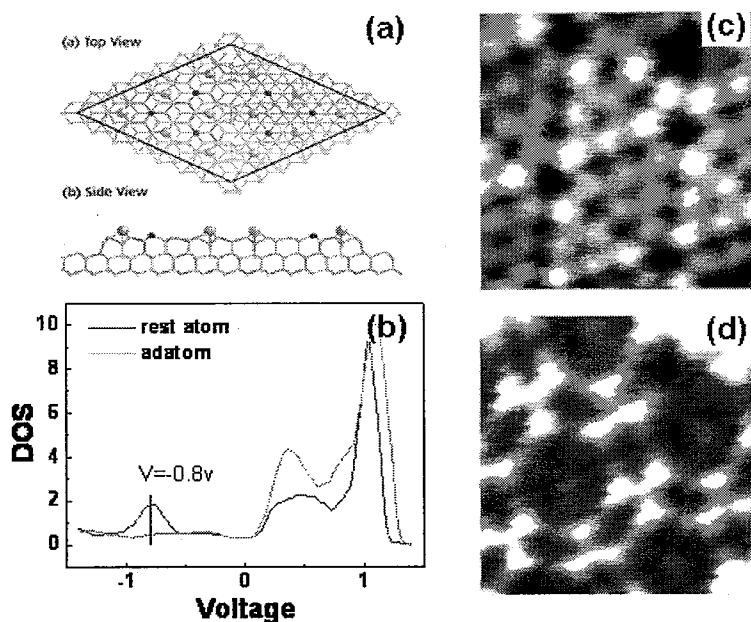


图 1.4.6 (a) Si (111) 7×7 表面再构示意图。(b) 室温下对 adatom 和 rest atom 做的扫描隧道谱。(c) (8 nm × 8 nm) Si (111) 7×7 表面形貌图。(d) (8 nm × 8 nm) rest atom 的 mapping。

STM 的另一个卓越性能是它可以测量扫描隧道显微谱(Scanning Tunneling Spectroscopy STS)。由于在 STM 工作过程中, 隧道电流正比于样品费米面附近偏置电压 V 范围内的电子态密度积分, 如式 (1.4.1)。设针尖电子态的态密度不变, 把 1.4.1 式对偏置电压微分, 则可得微分电导:

$$\frac{dI}{dV} \propto \rho_s(E_F - eV + \varepsilon) \quad (1.4.2)$$

从上式可以明显地看出, 微分电导正比于样品表面的电子态密度。加上 STM 本身具有实空间的原子分辨率, 所以利用 STS 就可以实现实空间近乎原子分辨的样品态密度分布谱。图 1.4.6 是我们自己在室温下, 给 Si (111) 7×7 再构表面底戴原子(rest atom)做的谱和 mapping。

其中在 -0.8V 时, 底戴原子表现出了较强的峰, 而顶戴原子则没有。这意味着这两类原子的能隙为 0.8V。

原子力显微镜和磁力显微镜 (Atomic Force Microscope and Magnetic Force Microscope)

在上面的介绍中, 虽然 STM 具有非常高的空间分辨率, 但样品必须是导电

材料。这里我们将介绍另外一种扫描探针显微镜-原子力显微镜 (AFM)。它可以用来探测绝缘样品的形貌。在 AFM 中, 用对力敏感的易弯曲悬臂上的尖端对样品表面作光栅扫描。悬臂与样品表面的力的作用造成悬臂的微小偏转。这种偏转被检测并作为反馈信号, 可获得样品表面形貌, 如图 1.4.7。通常悬臂与样品之间相互作用力是范德瓦尔斯力。AFM 分为接触模式和轻敲模式。在接触模式中, 悬臂是静态的, 反馈信号为悬臂的形变。但 AFM 的悬臂有时容易对样品表面造成一定的损伤。另一种模式就是轻敲模式。在轻敲模式中, AFM 的悬臂被施加上一一定频率的交流信号。悬臂随即发生共振振动。在悬臂与样品的接触过程中, 由于相互作用力而导致共振频率或相位发生改变。以这种频率或相位的偏移作为反馈信号, 就可以得到样品表面信息。在轻敲模式下, 悬臂对样品表面的伤害要小得多。

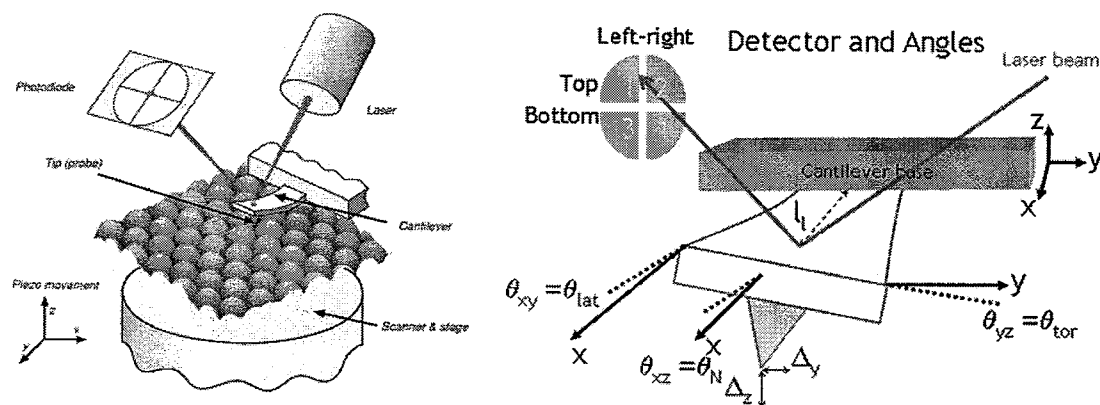


图 1.4.7 AFM 示意图

通常在做接触模式前, 需要对样品和悬臂做力曲线。通过力曲线, 我们不但可以选择适当的力作为反馈信号, 还可以由此判断样品表面的黏弹性。如图 1.4.8(a), 蓝色曲线是悬臂接近样品表面时的力曲线。当悬臂远离样品表面时, 它们间的相互作用力为零。而当它们不断接近时, 作用力则从零变为相互吸引, 从相互吸引转变为相互排斥。在选择反馈信号时, 通常选择相互吸引的那一段。反之, 当悬臂脱离样品表面时 (红色曲线), 相互作用力分别为排斥, 吸引, 最后为零。图 1.4.8(b) 为接触模式下扫的 Co 纳米点。图 1.4.8(c) 和 (d) 是在轻敲模式下扫的 Co 纳米点。我们可以看到, 相对于接触模式而言, 轻敲模式的空间分辨率要好很多。

如果我们把 AFM 悬臂前端的探针 (通常是硅) 换成磁性探针, 那么在探针与磁性样品表面相互作用力中除了上面提到的范德瓦尔斯力, 还有静磁相互作用

力。而静磁相互作用力的力程要比范德瓦尔斯力大得多，所以我们可以通过抬高

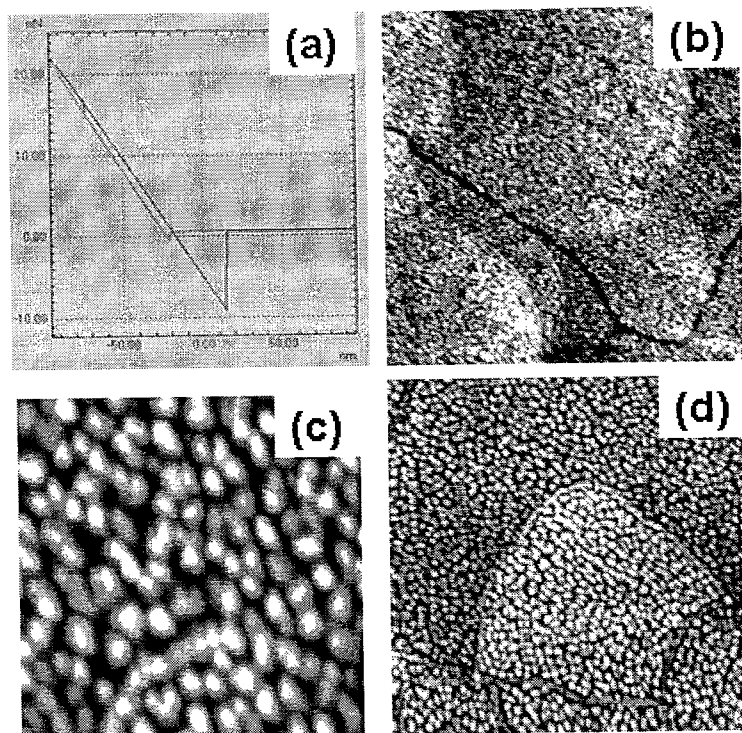


图 1.4.8 (a)力曲线。(b)接触模式下 ($250\text{ nm} \times 250\text{ nm}$) Co 纳米点形貌。(c) 轻敲模式下 ($50\text{ nm} \times 50\text{ nm}$) Co 纳米点形貌。(d) 轻敲模式下 ($250\text{ nm} \times 250\text{ nm}$) Co 纳米点形貌。

探针的方式得到磁性样品的磁结构。如图 1.4.9 是通过磁性探针扫描的 Hitachi 40 GB/3 inch 硬盘上磁性纳米颗粒形貌和磁结构图。在扫描过程中，我们通过改变

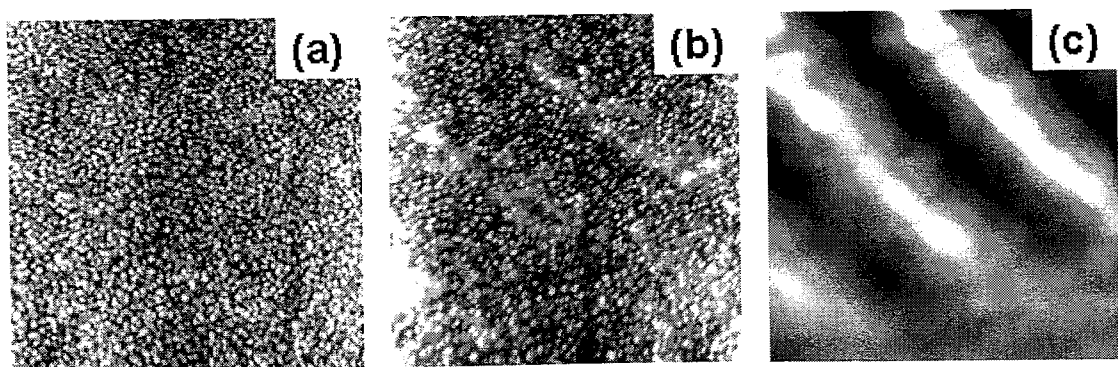


图 1.4.9 (a) ($2000\text{ nm} \times 2000\text{ nm}$) Hitachi 硬盘形貌。(b) ($2000\text{ nm} \times 2000\text{ nm}$) 形貌和磁结构。(c) ($2000\text{ nm} \times 2000\text{ nm}$) 磁结构。

探针与样品表面的距离，分别得到硬盘上磁性纳米颗粒的形貌，形貌—磁结构和磁结构图。但通常由于 MFM 的探针是在 AFM 探针上镀上一层磁性薄膜，所以

磁性探针的空间分辨率要比 AFM 小很多，通常只有 50 nm。

为了方便得到磁性样品的退磁态，我们还在原来的磁铁控制系统中，用 Labview 编写了一个退磁程序。如图 1.4.10。

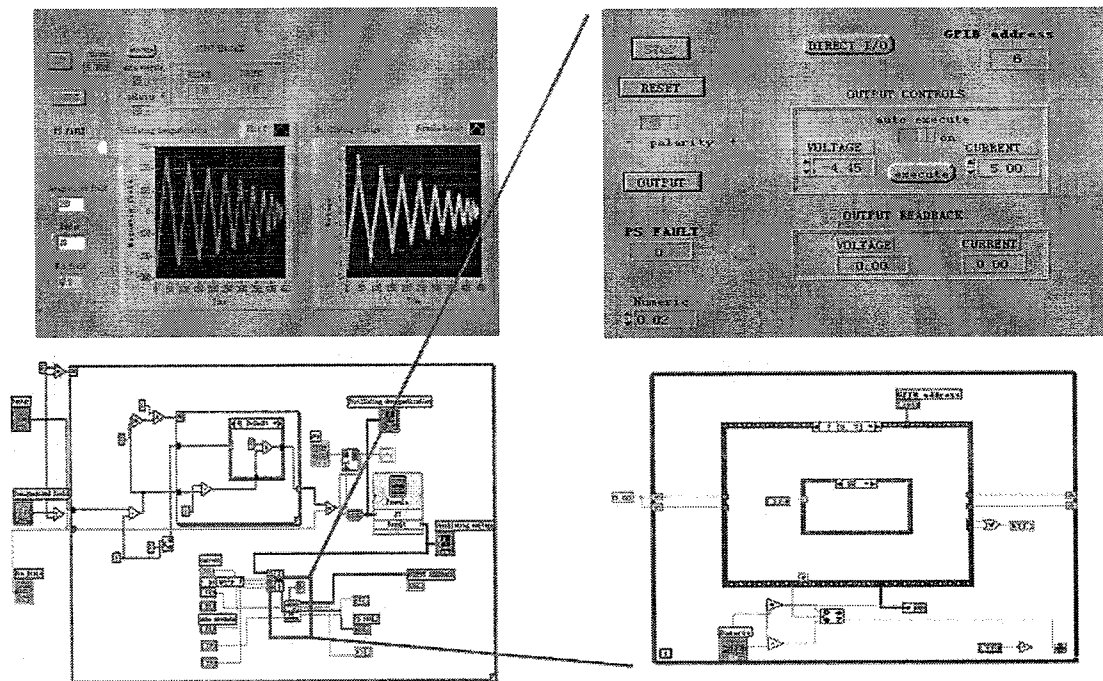


图 1.4.10 Labview 退磁控制程序

低能电子衍射 (LEED) 和高能电子衍射 (RHEED)

由于电子具有波粒二相性，当电子入射到样品上时，和高度局域化的电子（原子）相互作用而发生弹性散射和非弹性散射。弹性散射电子满足动量守恒和能量守恒，它们反应了样品表面的结构信息。在单晶样品中，这种高度局域化的电子就如光栅，使弹性散射电子相干从而形成衍射条纹。它们是晶格在倒空间的投影。在能量上，电子能量与穿透深度有关。所以为了探测样品表面信息，通常在电子束垂直于样品表面时选择低能电子。这时，探测的就是样品表面的晶格信息。而对于垂直于样品表面的信息，就需要在掠入射构型中选择高能电子。由于电子能量在垂直表面方向上的分量很小，所以电子束的穿透深度像低能电子衍射一样很小。另外，由于入射电子束有一定的发散角，能量零散，声子散射和表面有些无序使得荧光屏上显示的不是一个点，而是一条“条纹”。如图 1.4.11。

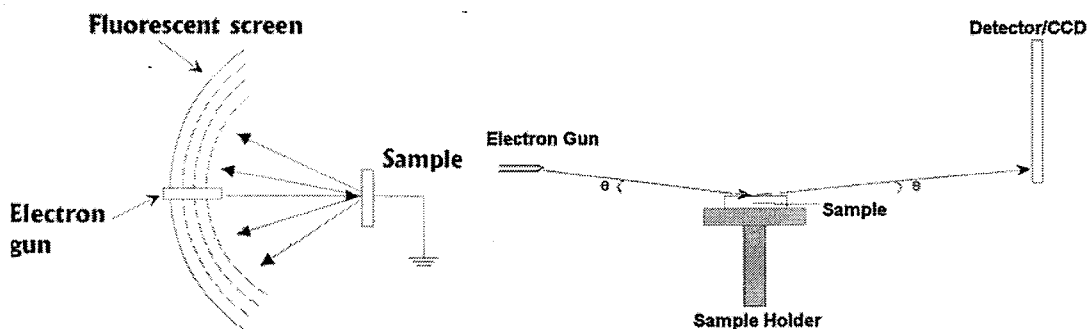


图 1.4.11 低能电子衍射构型和高能电子衍射构型示意图

表面磁光克尔效应 (SMOKE) 磁强计⁴⁷⁻⁵³

作为无损伤、高灵敏度和易搭建的磁测量系统，SMOKE 被广泛应用于磁性纳米结构的磁测量中。从微观上讲，磁光效应是由光中的电场与电子自旋通过自旋轨道相互作用引起的。当一束光在介质中传播时，光的电场矢量会影响介质中电子的运动。左旋电场产生电子的左旋运动，右旋电场产生电子的右旋运动，并且，左旋运动和右旋运动的电子轨道半径相同。当有磁场作用于电子上时，由于洛伦兹力的作用使得左旋轨道半径减小和右旋轨道半径增大。于是，产生了介电常数的不同，进而影响了出射光的偏振态，这种效应称为克尔效应。根据磁化强度矢量 M 与光入射面和界面的不同相对取向，克尔效应有三种构型：(1) 极向克尔效应—磁化强度矢量 M 和介质界面垂直时的克尔效应；(2) 横向克尔效应— M 与介质界面平行，但垂直于光的入射面时的克尔效应；(3) 纵向克尔效应— M 既平行于介质表面，又平行于光入射面时的克尔效应。如图 1.4.12。

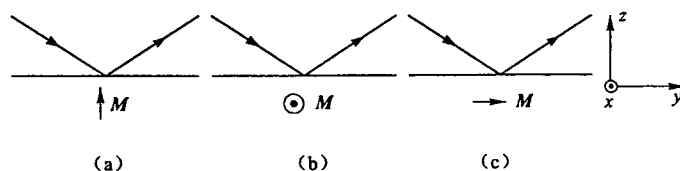


图1.4.12 (a) 极向克尔效应, (b) 横向克尔效应, (c) 纵向克尔效应示意图

薄膜的介电张量 $\tilde{\epsilon}$ 可由一个 3×3 的矩阵表示：

$$\tilde{\epsilon} = \epsilon \begin{bmatrix} 1 & iQ_z & -iQ_y \\ -iQ_z & 1 & iQ_x \\ iQ_y & -iQ_x & 1 \end{bmatrix} \quad (1.4.3)$$

其中 ϵ 为介电常数， $Q = (Q_x, Q_y, Q_z)$ 称为 Voigt 矢量，在一阶近似下， Q 与磁化

强度 M 成正比, 在非铁磁性物质中 $Q=0$ 。定义复数克尔转角为:

$$\phi_p = r_{sp} / r_{pp} = E_s^r / E_p^r \quad (1.4.4)$$

在超薄膜条件下, 薄膜的厚度比光的波长小的多, 于是有: $\sum_i n_i d_i \ll \lambda$ 。假如

初始介质和末态介质都是非磁介质, 可以得出发射系数:

$$r_{pp} = \frac{n_f \cos \theta_i - n_i \cos \theta_f}{n_f \cos \theta_i + n_i \cos \theta_f} \quad (1.4.5)$$

$$r_{sp} = -\frac{4\pi}{\lambda} \frac{n_i \cos \theta_i}{(n_i \cos \theta_i + n_f \cos \theta_f)(n_f \cos \theta_i + n_i \cos \theta_f)} \times (\cos \theta_f \sum_m d_m n_m^2 Q_z^{(m)} + n_f n_i \sin \theta_i \sum_m d_m Q_y^{(m)}) \quad (1.4.6)$$

其中 n_i 、 n_f 为折射率, θ_i 、 θ_f 为开始介质的入射角与结束介质的折射角, 由式

(1.4.6) 可知 ϕ_p 是由磁性层厚度 d_m 与 Voigt 常数 Q_m 相乘后叠加而来, 而与其中的

的非磁性层无关。因此, 在磁性超薄膜研究中, 当磁性物质 Q 值不变的情况下,

磁光克尔效应信号与磁性层厚度成正比。由于可见, 光在金属中的趋肤深度 λ 约为 2、3 百埃左右, 对于厚度仅约数原子层的超薄膜而言, 磁光克尔效应信号确实与磁性层厚度成正比, 但是当薄膜厚度超过此深度 λ 时, 克尔信号则需要考虑

趋肤深度修正 ($\sim e^{-d/\lambda}$)。克尔转角 ϕ' 及椭圆率 ϕ'' 正比于样品的磁化强度, 通过

测量克尔转角或椭圆率与磁场间的函数关系, 便可画出磁滞曲线。而克尔转角可

以通过测量光强 ($\sim |E_s|^2$) 得出。然而在实验中通过直接测量 s 分量的方法有两个

缺点: (1) 光探测器测得的光强正比于磁化强度的平方; (2) 确定克尔旋转的

绝对值很难。因此, 在实验上常会使用检偏器在一小偏转角情况下, 测量反射光

强度变化, 以求得克尔转角与椭圆率。定义检偏器转至平行 s 光方向时的角度为

0° , 然后调整一小角度 δ ($\delta \approx 0$), 由于克尔转角很小, 因此反射光的 s 分量远小

于 p 分量, 所以 $E_s \ll E_p$, 此时反射光的强度 I 可以用下式表示:

$$I = |E_p \sin \delta + E_s \cos \delta|^2 \approx E_p^2 |\delta + \phi' + i\phi''|^2 \approx E_p^2 (\delta^2 + 2\delta \phi') = I_0 (1 + \frac{2\phi'}{\delta}) \quad (1.4.7)$$

其中 $I_0 = E_p^2 \sin^2 \delta = E_p^2 \delta^2$ 是在零克尔转角时的光强，式(5-3)移项后可得：

$$\phi' = \frac{\delta}{2} \cdot \frac{\Delta I}{I_0} \quad (1.4.8)$$

由式 (1.4.8) 可知 ϕ' 与反射光的强度变化 ΔI 成正比，所以实验上是以反射光的强度变化来代表克尔转角的变化，并将 ΔI 与磁场作图以得到磁滞回线。在超高真空系统中进行原位测量，由于玻璃窗口通常会产生双折射效应，通常需要在检偏器前放置一个 $1/4$ 玻片来消除窗口的双折射效应， $1/4$ 玻片会产生 $\pi/2$ 的相位差，所以检偏器看到是 $i(\phi' + i\phi'') = -\phi'' + i\phi'$ ，而不是 $\phi' + i\phi''$ ，因此测量到的信号为椭圆率 ϕ'' 。SMOKE 的测量光路如图 1.4.13 所示。

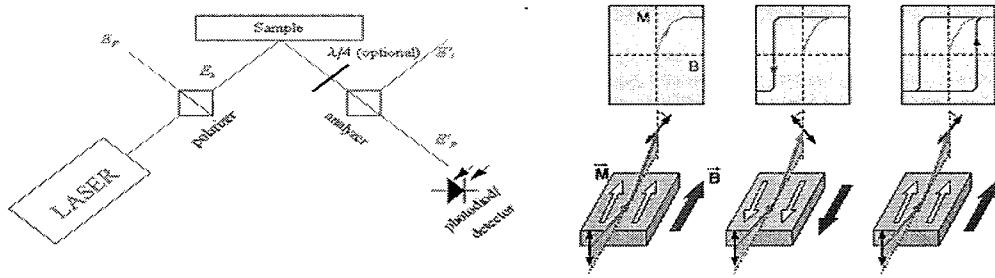


图 1.4.13 SMOKE 测量光路与磁滞回线示意图

1.5 本论文选题背景

本论文主要研究了 Co 磁性纳米结构在 Si(111)衬底上的磁学特性和磁各向异性的调控。通过不同的生长方式，我们在 Si(111)衬底上制备出了 Co 纳米点，Co 纳米线和 Co 薄膜。我们分别用了 SMOKE, MFM 和 Monte Carlo 的方法对这些磁纳米结构进行了磁行为和磁各向异性的研究。

1.5.1 磁性纳米点

对于 3d 过渡簇铁磁金属磁性纳米点而言，它们的磁矩和轨道磁矩没有什么关系。这是因为在块材相里，立方对称的配位场使得 d 电子的轨道发生“淬灭”。但是在纳米点这样的结构里，比表面变得很大，使得表面的性质已经占据一个很主要的地位。表面相对于块材来说，对称性发生了变化，可以使轨道发生“淬灭”的配位场已经不存在了，这时候轨道磁矩的大小就要重新被考虑。同时还因为原子个数的减少，使得能带发生变化，这对于采用能带理论计算出来的 Fe、Co、

Ni 的自旋磁矩也要重新认识。

2003 年 Kern 等人在 science 上面发文讨论了钴原子颗粒的磁性⁵⁴。在 Pt 衬底上面采用低温(5.5 K)的方法得到平均每个颗粒为 1~40 个 Co 原子的纳米颗粒，采用磁圆二色性(XMCD)的方法，得到了轨道磁矩和磁各向异性的数据。同时也从理论计算方面得到了相应的验证。如下图，就是相应的实验和理论数据。我们从中可以看到轨道磁矩在磁性纳米颗粒中的存在，也是因为 LS 耦合，磁晶各向异性使得磁矩垂直于表面。

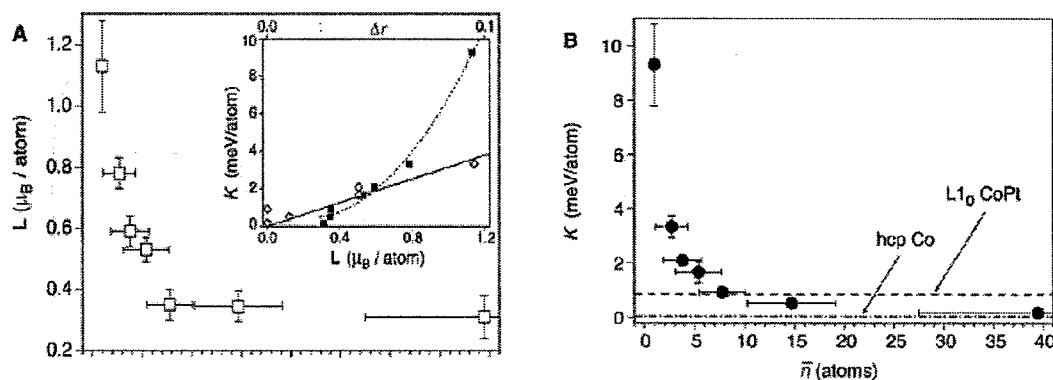


图 1.5.1 (a)和(b)分别为不同 Co 原子颗粒的轨道磁矩和磁各向异性的实验数据⁵⁴。

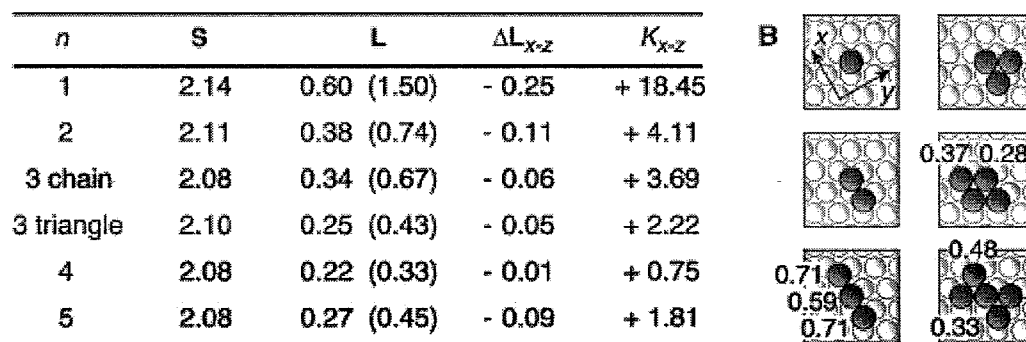


图 1.5.2 (a)采用 SPR-KKR 方法，计算出来的 Co 颗粒在 Pt 衬底上，不同原子个数时的自旋、轨道磁矩(μ_B)和各向异性值(meV)。(b)对于在各种情况下，单个 Co 原子的晶体数值⁵⁴。

磁性纳米颗粒点阵可以用来作高密度的磁存储介质，点越小，密度就越高。不过很不幸，不是越小越好，当小到一定程度的时候，就会出现超顺磁的现象(superparamagnetism)。超顺磁，实际上就是热扰动和磁性颗粒间相互作用的一个竞争结果。磁性颗粒一般都是单畴颗粒，磁性颗粒和磁性颗粒之间的相互作用，使得彼此磁矩排列一致。要是颗粒磁矩发生反转，就是要克服自己的一个磁各向异性能，当体积为 V 的单畴磁性粒子继续减小或是升高温度，磁矩取向会因热运动能量 kT 比相应的磁能还大，可越过各向异性能势垒 KV ，使粒子的磁

化方向表现为磁的“布朗运动”，粒子集合体的总磁化强度为零，称为超顺磁性。产生这种现象的特征温度称为 Block 温度。超顺磁性也可由朗之万函数描述。只是粒子内不是单个原子或分子的磁矩，而是磁有序的集合体，集合体之间的磁取向混乱排列，其宏观表现为“顺磁性”。

为了克服这个超顺磁极限，2003 年 nature 上面报道了 Delaware 大学的 V. Skumryev 等人采用一种壳层的结构⁵⁵，里面为铁磁性的 Co 颗粒，外面包着一层反铁磁的 CoO 层。引进一个反铁磁的钉扎，铁磁性和反铁磁性材料之间磁交换耦合，相当于诱导产生一个外部的各向异性源。在他们的实验中，直径为 4 纳米的铁磁性钴纳米颗粒，掩埋在一个顺磁性基质中，它的 Block 温度为 10 K，但是采用 $\text{Co}_{\text{core}}\text{CoO}_{\text{shell}}$ 这样的结构后，掩埋在同样的顺磁性基质中，在 MT 曲线上看，直到 290 K 才失去其磁矩。也就是说超顺磁极限，现在被克服了。该方法使用性很广，软材料、硬材料、氧化物和金属等等都可以引入一个反铁磁的耦合，使得各种不同材料可以克服超顺磁极限。

1.5.2 磁性纳米线

纳米线的磁学性质，在这里主要介绍它的形状诱导的磁各向异性。

磁性纳米线应该具有很强的单轴各向异性，从而可以克服磁记录过程中的热扰动。形状导致的磁各向异性使得纳米线成为垂直磁纪录材料的有力竞争者，进一步的工作，是需要对纳米线的磁化和反磁化机制，阵列中的线和线之间的偶极相互作用等问题做更为细致的研究。物理所磁学室詹清峰、高建华等人在这类问题上，从实验和理论两方面都做过深入的讨论⁵⁶⁻⁶⁰。

纳米线是采用前面介绍过的 AAO 模板法，将纳米阵列解离后，在电镜下面可以观察到单根纳米线，如图 1.5.3 就是一根典型的纳米线。而图 1.5.4 是一副典型的铁磁纳米线阵列的 M-H 图。从中我们可以看出因为形状诱导的磁各向异性使得易磁化轴在平行于线的方向，同时也看到在此方向的矩形比很好⁵⁶。

如图 1.5.4 中 Fe 纳米线的数据，平行方向的矫顽力 $H_{c\parallel} = 2.84 \text{ KOe}$ 。磁性材料的剩余磁化强度 M_r ，矫顽力 H_c 以及磁滞回线的形状都是由反磁化机制所决定。对于纳米线这种以形状各向异性为主的材料，一致转动模型给出的理论值： $H_c(\text{Fe}) = (N_b - N_a)M_s \approx 2\pi M_s = 10700 \text{ Oe}$ 。为了合理地解释纳米线平行方向的矫

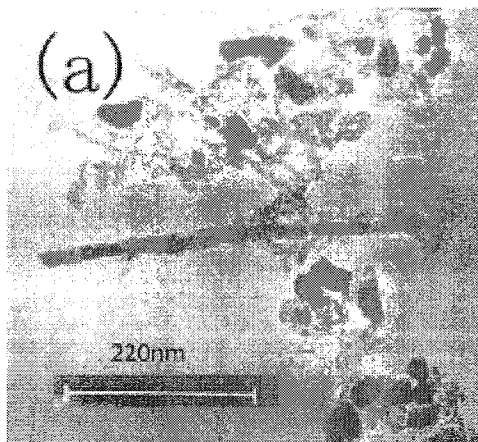


图1.5.3 解离出来的单根 Fe_3Pt 纳米线的透射电镜图⁵⁷。

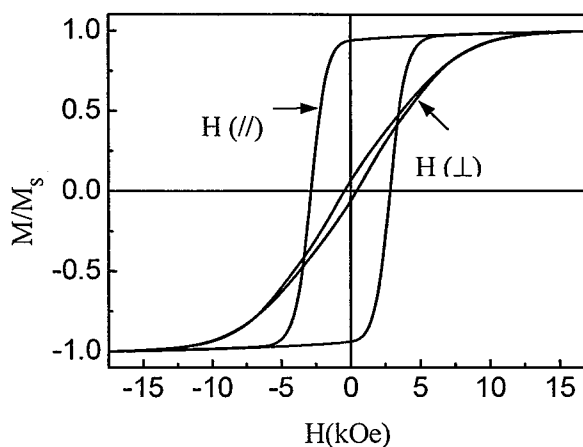


图1.5.4 Fe纳米线阵列在10 K下的磁滞回线⁵⁶, $H(//)$ 指外场方向平行于纳米线方向, $H(\perp)$ 指外场方向垂直于纳米线方向。

顽力, 引入对称扇形球链模型ⁱⁱ (如图1.5.5), 它属于非一致转动模型中的一种。把纳米线近似地看成是排成链状的球形单畴粒子, 相邻两球只有点接触。各球形粒子的 M_s 呈对称的扇形展开。设有 n 个相同的球组成一个链, 因两个相邻球是点接触, 故无交换作用。所以球链的能量除静磁能外, 只有各球间的磁矩存在偶极相互作用, 不考虑畴壁能。具体计算如下^{56,57,61}:

$$\left. \begin{aligned}
 H_{c//} &= \frac{\mu}{a^3} (6K_n - 4L_n) = \frac{\pi M_s}{6} (6K_n - 4L_n) \\
 L_n &= \sum_{j=1}^{\frac{n-1}{2} < j \leq \frac{n+1}{2}} \frac{n - (2j-1)}{n(2j-1)^3} \\
 M_n &= \sum_{j=1}^{\frac{n-2}{2} < j \leq \frac{n}{2}} \frac{n-2j}{n(2j)^3} \\
 L_n + M_n &= \sum_{j=1}^n \frac{n-j}{nj^3} = K_n
 \end{aligned} \right\} (1-1)$$

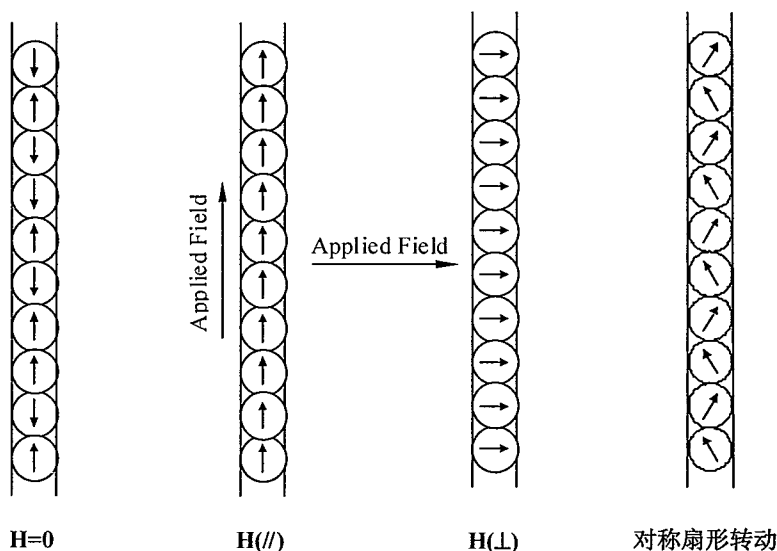


图1.5.5 单根纳米线在不同外场作用下的磁畴结构示意图以及对称扇形球链模型⁵⁶。

如果把纳米线看成一个颗粒链，那么 n 就是纳米线的长径比，根据实验结果知道 $n \approx 375$ 。根据上面的计算公式，可以求出外场平行于纳米线阵列时，Fe 纳米线的矫顽力为 $H_{c//} = 2726 \text{ Oe}$ 。由对称扇形转动模式求出的 Fe 纳米线矫顽力与实验值（2842 Oe）符合得很好。在 Fe_3Pt ⁵⁷, $\text{Fe}_{55}\text{Co}_{45}$ ⁵⁹ 纳米线中，其反磁化机制和矫顽力的大小也同样可以采用此模型解释。不过必须指出的是，以上材料的磁晶各向异性都比形状各向异性小一个数量级。在磁晶各向异性比较大材料中，这两个作用可能会相互竞争。

1.5.3 磁性薄膜

1966 年 Wagner 预言在二维体系中如果是各向同性的话，则不存在铁磁长程

有序⁶²。后来在磁性超薄膜中发现磁有序是一个很普遍的现象。这是因为原先预言忽略了磁偶极相互作用。其中表面各向异性倾向于使易轴垂直于膜面，它来源于自旋与轨道相互作用，使得薄膜在最开始的几层易磁化轴垂直于表面，随着层厚的增加，形状各向异性的影响逐步增强，而形状各向异性会导致易磁化轴平行于膜面，从而可以降低系统的退磁能通常由于界面的各向异性作用，导致在一定的层厚会发生重取向的相变(spin reorientation transition, SRT)，易轴最后会躺在膜面，如 Fe/Cu(100)体系⁶³、Co/Pd(111)体系⁶⁴。不过也有例外，Ni/Cu(100)体系是先平行再垂直⁶⁵。

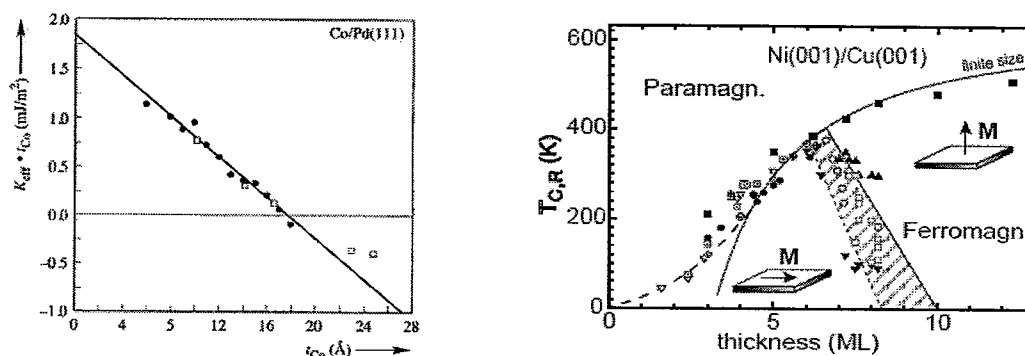


图 1.5.6 Co/Pd(111)磁各向异性随层厚的变化：先垂直后平行⁶⁴。

Ni/Cu(100)体系垂直和平行磁信号强度随层厚的变化：先平行后垂直⁶⁵。

采用外延的方法，能够在实验上得到一些自然界天然所没有的结构。比如体材料的 fcc Fe 只存在于高温 910℃，此温度以下只存在 bcc 相。但在超薄膜中，Fcc Fe 可以通过在 Cu(100)表面外延生长的方法获得⁶³。复旦大学金晓峰等定量地研究了 Fcc Fe 的磁矩随厚度的变化，同时测量了不同厚度下 Fe 薄膜的总磁矩随温度的变化。通过这两个方面的结果，发现对于纯净的 Fcc Fe，薄膜的表面两层是铁磁排列，薄膜其它部分的磁矩是以一种非公度的自旋密度波（SDW）形式排列⁶⁶，如图 1.5.7 所示。

同时由于磁各向异性的变化，导致在超薄膜表面的磁畴结构也会发现一个相应的变化。美国 Berkley 大学的邱子强等人运用高分辨的光发射电子显微镜（photoemission electronic microscopy, PEEM）观察到了 Fe/Ni(5 ML)/Cu(100)在不同层厚磁畴的图纹⁶⁷。

按一级相变的理论，在相变点附近，磁性薄膜会形成带状磁畴⁶⁸。这种带状畴类似于液晶态，具有取向长程序没有空间的长程序。这代表着磁化方向从垂直

一下子变成平行。如果从垂直慢慢变到平行（或是从平行变到垂直）就是一个二级相变了，Co/Pt(111)就是一个缓慢发生变化的体系⁶⁹。

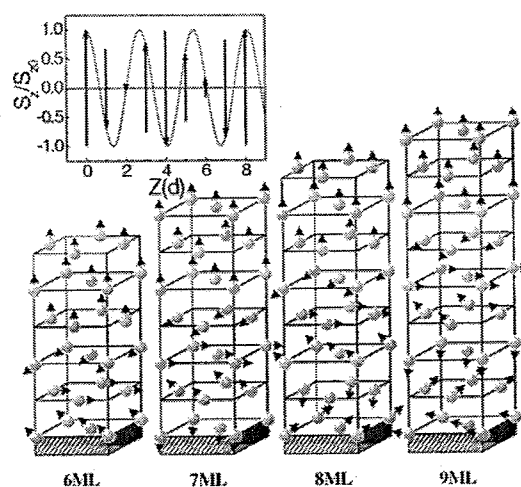


图 1.5.7 Fcc Fe 的磁性结构示意图，薄膜表面两层的磁矩是铁磁排列，其它部分是以一种非公度的自旋密度波（SDW）形式排列⁶⁶。

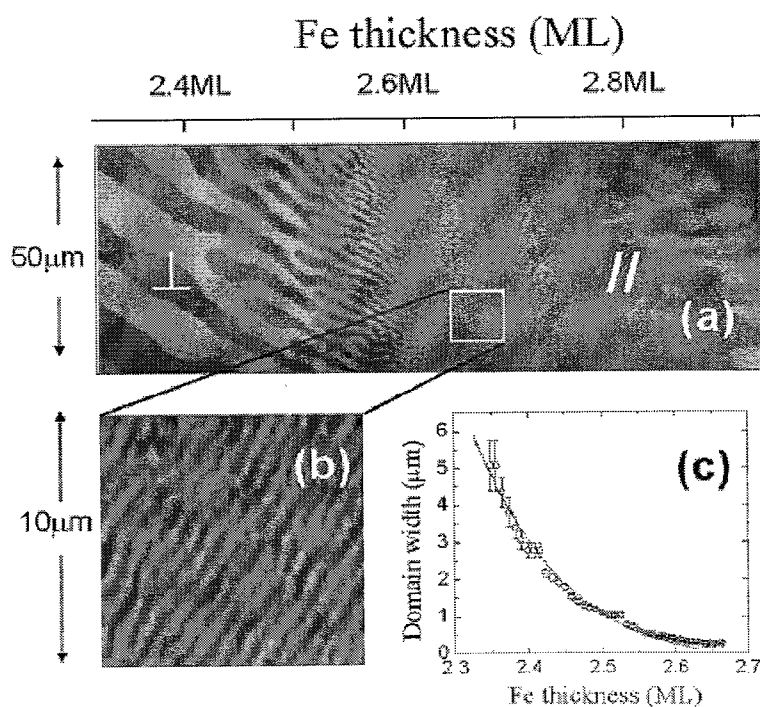


图 1.5.8 Fe/Ni(5 ML)/Cu(100)磁畴的 PEEM 图⁶⁷。SRT 发生在 2.7 ML，畴的宽度随着层厚逐渐减小。

和磁各向异性有密切联系的还有磁化曲线、反磁化的一些问题。由于在薄膜体系中一般块材相原先的磁各向异性在超薄膜中起的作用都比较小，不过，有时

候也必须要考虑。表面各向异性和形状各向异性都是一个单轴各向异性，加上块材的磁各向异性，有时候就表现出一些比较特殊的磁化曲线，比如负剩磁⁷⁰。如图 1.5.9，为在 Si (111) 表面生长 Fe 薄膜得磁化曲线⁷¹以及相应的磁各向异性能图示。

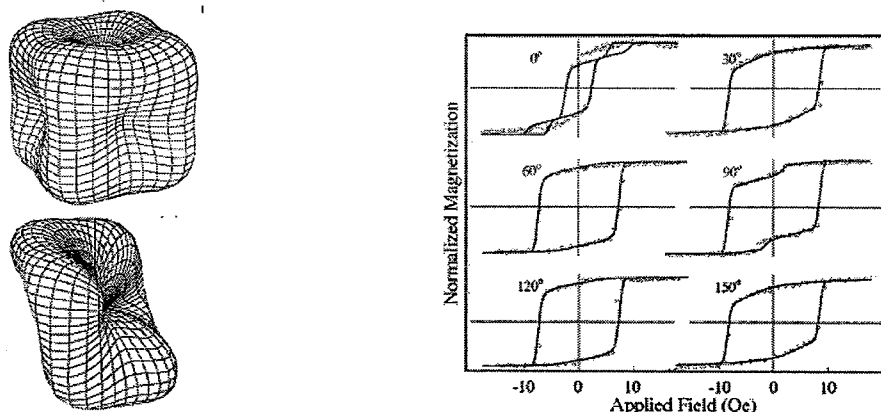


图 1.5.9 (左) 分别为 Fe 块材的磁各向异性能空间分布图和加上一个单轴各向异性能后的分布图。(右) 实际测得 Fe 薄膜得磁滞迴线⁷¹。

1.5.4 本论文选题

本论文以低维磁性纳米结构为背景，主要研究了低维磁性纳米结构磁各向异性的调控。我们利用不同的生长方式，在 Si(111)衬底上制备出了 Co 纳米点，纳米线和薄膜，并调制了它们的磁各向异性。同时，我们利用原位的扫描隧道显微镜，磁力显微镜和磁光克尔磁力计分别对制备出来的 Co 纳米点，纳米线和薄膜进行了形貌和磁性的研究。在结合 Monte Carlo 和自关联函数的计算下，我们分析了制备出的 Co 纳米结构的磁反转行为和磁各向异性大小。

在下面的几个章节中，我们将分别对 Co 纳米点，纳米线和薄膜的制备，形貌与磁性的表征，理论分析做详细的介绍。

1.6 参考文献:

- ¹ D. Q. Li, M. Freitag, J. Pearson, Z. Q. Qiui, and S. D. Bader, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3112 (1994).
- ² M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder, and J. J. De Vries, *Rep. Prog. Phys.* **59**, 1409 (1996).
- ³ P. Pouloupoulos and K. Baberschke, *J. Phys.: Condens. Matter* **11**, 9495 (1999).
- ⁴ R. Moroni, D. Sekiba, F. Buatier de Mongeot, G. Gonella, C. Boragno, L. Mattera, and U. Valbusa, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 167207 (2003).
- ⁵ J. Prokop, A. Kukunin, and H. J. Elmers, *Phys. Rev. Lett.* **95**, 187202 (2005).
- ⁶ J. Dorantes-Davila, G. M. Pastor, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 208 (1998).
- ⁷ D. S. Chuang, C. A. Ballentine, and R. C. O’Handley, *Phys. Rev. B* **49**, 15084 (1994).
- ⁸ Y. T. Millev, R. Skomski, and J. Kirschner, *Phys. Rev. B* **58**, 6305 (1998).
- ⁹ B. Schulz, K. Baberschke, *Phys. Rev. B* **50**, 13467 (1994).
- ¹⁰ B. Schulz, R. Schwarzwald, K. Baberschke, *Surface Scienc* **307**, 1102 (1994).
- ¹¹ K. Amemiya, E. Sakai, D. Matsumura, H. Abe, T. Ohta, T. Yokoyama, *Phys. Rev. B* **71**, 214420 (2005).
- ¹² R. Ohandley, *Modern Mangetic Materials*, John Wiley & Sons, (2000).
- ¹³ J. A. C. Bland, B. Heinrich, *Ultrathin Magnetic Structures*, Springer-Verlag, Berlin Heidelberg (2005).
- ¹⁴ M. Farle, B. Mirwald-Schulz, A. N. Anisimov, W. Platow, K. Baberschke, *Phys. Rev. B* **55**, 3708 (1997).
- ¹⁵ J. Prokop, D. A. Valdaitsev, A. Kukunin, M. Pratzner, G. Schönhense, and H. J. Elmers, *Phys. Rev. B* **70**, 184423 (2004).
- ¹⁶ H. Fritzsche, J. Kohlhepp, and U. Gradmann, *Phys. Rev. B* **51**, 15933 (1995).
- ¹⁷ Q. F. Zhan, C. V. Haesendonck, S. Vandezande and Kristiaan Temst, *Appl. Phys. Lett.* **94**, 042504 (2009).
- ¹⁸ M.T. Umlor, *Appl. Phys. Lett.* **87**, 082505 (2005).

- ¹⁹ S.V. Dijken, L.C. Jorritsman, and B. Poelsema, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 4038 (1999).
- ²⁰ J. Seo, H. Y. Kim, and J. S. Kim, *Phys. Rev. B* **71**, 075414 (2005).
- ²¹ H. Z. Luo, F. B. Meng, Z. Q. Feng, Y. X. Li, W. Zhu, G. H. Wu, X. X. Zhu, C. B. Jiang, and H. B. Xu, *J. Appl. Phys.* **107**, 013905 (2010).
- ²² W. Zhu, E. K. Liu, L. Feng, X. D. Tang, J. L. Chen, G. H. Wu, H. Y. Liu, F. B. Meng, and Z. H. Luo, *Appl. Phys. Lett.* **95**, 222512 (2009).
- ²³ Z. H. Luo, W. Zhu, L. Ma, G. D. Liu, Y. X. Li, X. X. Zhu, C. B. Jiang, H. B. Xu, and G. H. Wu, *J. Phys. D.* **42**, 095001 (2009).
- ²⁴ B. Heinrich and J. F. Cochran, *Adv. Phys.* **42**, 523 (1993).
- ²⁵ D. L. Mills, *Phys. Rev. B* **39**, 12306 (1989).
- ²⁶ R. C. O'Handley and J. P. Woods, *Phys. Rev. B* **42**, 6568 (1990).
- ²⁷ A. Thiaville and A. Fert, *J. Magn. Magn. Mater.* **113**, 161 (1992).
- ²⁸ G. T. Rado and J. R. Weertman, *J. Phys. Chem. Solids* **11** 315 (1959).
- ²⁹ C. A. F. Vaz, L. Lopez-Diaz, M. Kläui, J. A. C. Bland, T. L. Monchesky, J. Unguris, and Z. Cui, *Phys. Rev. B* **67**, 140405 (2003).
- ³⁰ C. A. F. Vaz, L. Lopez-Diaz, M. Kläui, J. A. C. Bland, T. L. Monchesky, J. Unguris, and Z. Cui, *J. Magn. Magn. Mater.* **272**, 1674 (2004).
- ³¹ P. Bruno, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 2425 (1999).
- ³² P. O. Jubert, R. Allenspach, and A. Bischof, *Phys. Rev. B* **69**, 220410 (2001).
- ³³ M. Kläui, C. A. F. Vaz, J. Rothman, J. A. C. Bland, W. Wernsdorfer, G. Gaini, and E. Cambril, *Phys. Rev. Lett.* **90**, 097202 (2003).
- ³⁴ M. Kläui *et. al.* *Appl. Phys. Lett.* **87**, 102509 (2005).
- ³⁵ C. A. F. Vaz, J. A. C. Bland, and G. Lauhoff, *Rep. Prog. Phys.* **71**, 056501 (2008).
- ³⁶ C. Kittel, *Rev. Mod. Phys.* **21** 541 (1949).
- ³⁷ L. Néel *Comptes. Rendus.* **224** 1488 (1947).
- ³⁸ Jr. W. F. Brown, *J. Appl. Phys.* **39**, 993 (1968).
- ³⁹ Q. F. Liu, J. B. Wang, Z. J. Yan, and D. S. Xue, *Phys. Rev. B* **66**, 134426 (2002).
- ⁴⁰ N. Yasui, A. Imada, and T. Den, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 3347 (2003).
- ⁴¹ F. C. Pu, Y. J. Wang, and C. H. Shang, *Aspects of Modern Magnetism*, World

Scientific, (1995).

⁴² A. Aharoni, *J. Appl. Phys.* **60**, 1118 (1986).

⁴³ A. Aharoni and S. Shtrikman, *Phys. Rev.* **109**, 1522 (1958).

⁴⁴ A. Hubert, R. Schäfer, *Magnetic domain*, Springer-Verlag Berlin Heidelberg (1998).

⁴⁵ C. Kooy, U. Enz, *Philips Res. Repts.* **9**, 7, (1960).

⁴⁶ L. Néel, *Acad. Sci. Paris* **241**, 533 (1955).

⁴⁷ J. Zak, E. R. Moog, C. Liu, and S. D. Bader, *J. Magn. Magn. Mater.* **89**, 107 (1990).

⁴⁸ J. Zak, E. R. Moog, C. Liu, and S. D. Bader, *Phys. Rev. B* **43**, 6423 (1991).

⁴⁹ S. D. Bader, *J. Magn. Magn. Mater.* **100**, 440 (1991).

⁵⁰ Z. Q. Qiu and S. D. Bader, *J. Magn. Magn. Mater.* **200**, 664 (1999).

⁵¹ Z. Q. Qiu and S. D. Bader, *Rev. Sci. Instrum.* **71**, 1234 (2000).

⁵² A. Lehnert, P. Bulushek, N. Weiss, J. Giesecke, M. Treier, S. Rusponi, and H. Brune, *Rev. Sci. Instrum.* **80**, 023902 (2009).

⁵³ E. Mentz, A. Bauer, T. Günther, And G. Kaindl, *Phys. Rev. B* **60**, 7379 (1999).

⁵⁴ P. Gambardella, S. Rusponi, M. Veronese, S. S. Dhesi, C. Grazioli, A. Dallmeyer, I. Cabria, R. Zeller, P. H. Dederichs, K. Kern, C. Carbone and H. Brunel, *science* **300**, 1130-1133 (2003).

⁵⁵ V. Skumryev, S. Stoyanov, Y. Zhang, G. Hadjipanayis, D. Givord and J. Nogués, *Nature*, **423**, 850-853 (2003).

⁵⁶ Q.F. Zhan, W. He, X. Ma, Y.Q. Liang, Z.Q. Kou, N.L. Di, and Z.H. Cheng, *Appl. Phys. Lett.* **85**, 4690 (2004).

⁵⁷ J.H. Gao, Q.F. Zhan, W. He, D.L. Sun, and Z.H. Cheng, *Appl. Phys. Lett.* **86** 232506 (2005).

⁵⁸ Q.F. Zhan, J.H. Gao, Y.Q. Liang, N.L. Di, and Z.H. Cheng, *Phys. Rev. B*, **72**, 024428 (2005).

⁵⁹ J.H. Gao, Q.F. Zhan, W. He, D.L. Sun, and Z.H. Cheng, *J. Magn. Magn. Mater.* **305** 365-371 (2006).

⁶⁰ J.H. Gao, D.L. Sun, Q.F. Zhan, W. He, and Z.H. Cheng, *Phys. Rev. B*, **75**, 064421 (2007).

⁶¹ I. S. Jacobs and C. P. Bean, *Phys. Rev.* **100**, 1060-1067 (1955).

- ⁶² N. D. Mermin, H. Wager, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 (1966).
- ⁶³ D. Q. Li, M. Freitag, J. Pearson, Z. Q. Qiu, and S. D. Bader, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 3112 (1994).
- ⁶⁴ M. T. Johnson, P. J. H. Bloemen, F. J. A. den Broeder, and J. J. De Vries, *Rep. Prog. Phys.* **59**, 1409 (1996).
- ⁶⁵ P. Pouloupoulos and K. Baberschke, *J. Phys.: Condens. Matter* **11**, 9495–9515 (1999).
- ⁶⁶ D. Qian, X. F. Jin, J. Barthel, M. Klaua, and J. Kirschner, *Phys. Rev. Lett.* **87**, 227204 (2001).
- ⁶⁷ Y. Z. Wu, C. Won, A. Scholl, A. Doran, H. W. Zhao, X. F. Jin, and Z. Q. Qiu, *Phys. Rev. Lett.* **93**, 117205 (2004).
- ⁶⁸ Y. Yafet and E. M. Gyorgy, *Phys. Rev. B* **38**, 9145 (1988).
- ⁶⁹ J.-W. Lee, J. Kim, S.-K. Kim, J.-R. Jeong, and S.-C. Shin, *Phys. Rev. B* **65**, 144437 (2002).
- ⁷⁰ J. Geshev, A. D. C. Viegas and J. E. Schmidt *J. Appl. Phys.* **84**, 1488 (1998).
- ⁷¹ M. Cougo dos Santos, J. Geshev, L. G. Pereira, M. C. M. Alves and J. E. Schmidt, *Phys. Rev. B* **70**, 104420 (2004).

第二章 Pb/Si 衬底上准一维 Co 纳米链的单轴磁各向异性与磁畴结构

2.1 引言

人们对一维磁性纳米链具有浓厚的兴趣不但因为在基础科研上它有很大的研究价值。而且在应用上它也有很多潜在的前景，如：超高密度磁存储介质，磁性开关器件和微波吸收材料。¹⁻³ 在制备一维纳米结构的众多方式中，通常把铁和钴这样的磁性材料长在有台阶的表面上，从而形成一维纳米结构。⁴⁻⁶ 如图 2.1.1。

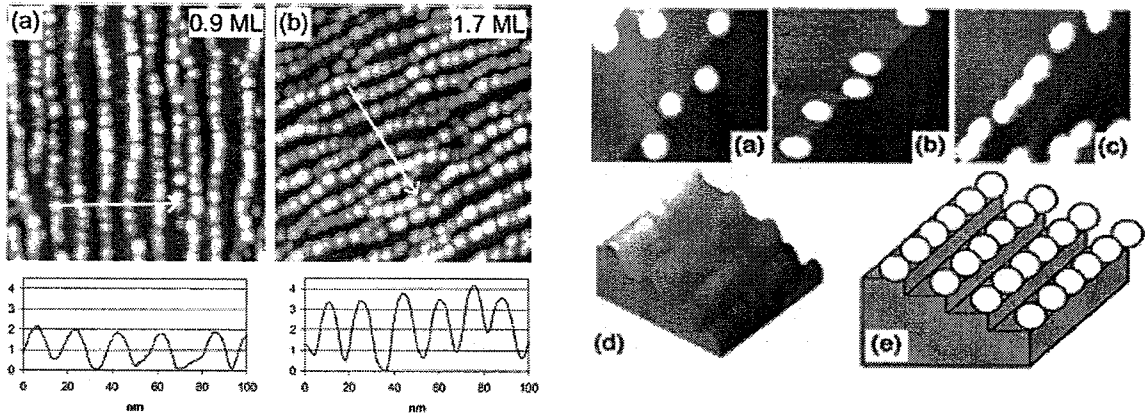


图 2.1.2 Fe 纳米点沉积在 NaCl 台阶衬底上⁶

随着磁性材料的维度减小，磁结构则相应地也会发生变化如：Ising 自旋块⁷，大的磁各向异性⁸，和磁各向异性对称性的变化⁹。如图 2.1.2。

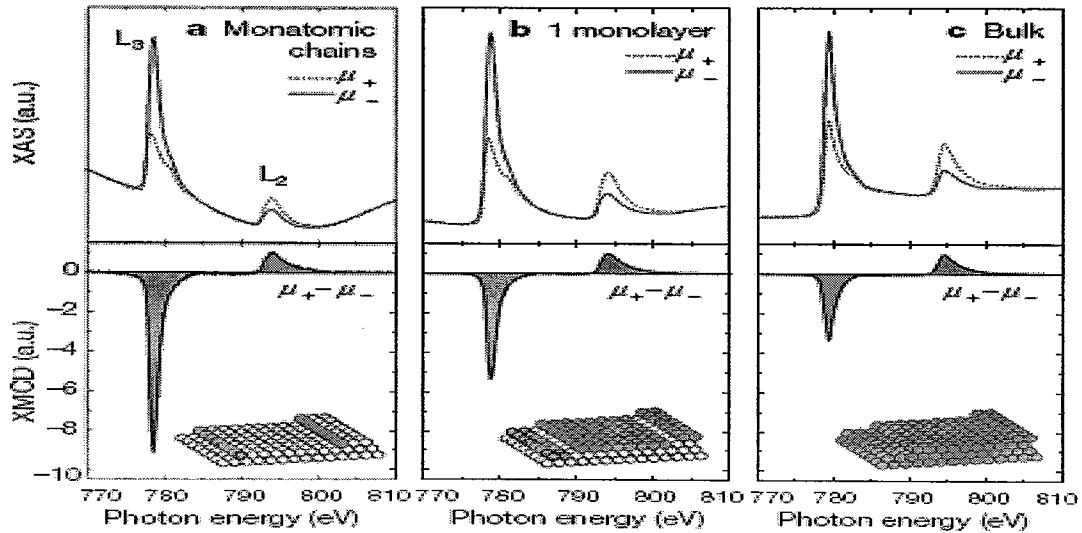


图 2.1.2 磁圆二色谱对不同维度磁性材料的测量⁸

而在磁畴结构方面，人们则用自旋极化低能电子显微镜，自旋极化扫描隧道显微镜分别研究了随着空间维度的降低磁畴的演化过程¹⁰和一维磁性纳米结构的磁畴结构¹¹。如图 2.1.3。特别地，当低维磁性纳米结构由零维磁性纳米点组成时，人们通过自旋极化扫描电镜发现在这种体系中磁关联长度在减小。¹²

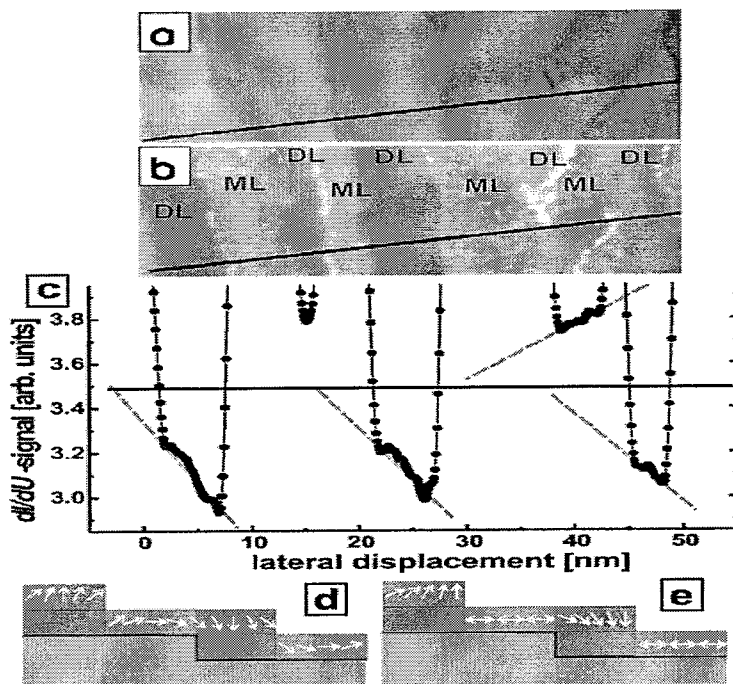


图 2.1.3 自旋极化扫描隧道显微镜对一维磁纳米结构的表征，图为 Fe/W (110) 体系。¹¹

在这个工作中，我们报道了在 Pb/Si 衬底上准一维磁性 Co 纳米链的磁各向异性和磁畴结构。我们发现，当不断增加 Co 的沉积量时，磁单轴各向异性在不断增强并伴随着磁化曲线矩形比变好。进一步，我们通过对磁畴和畴壁的分析，得到单轴磁各向异性强度为 $6.1 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ ，这一结果与电子自旋共振在类似体系中的结果一致。¹³

2.2 Co 磁性纳米链的制备

为了避免外界环境对磁纳米体系的污染，我们所有的实验都是在超高真空 ($2 \times 10^{-10} \text{ mbar}$) 环境下进行的。我们在超高真空中将 4° 斜切的 Si(111) 衬底进行烘烤，快闪等处理。然后通过低温沉积的方法在 4° Si(111) 衬底上外延出原子平整的 Pb 薄膜。¹³ 在将 Pb 薄膜退火到室温后，我们又在低温下 (120K) 长上 1.7-6.7 原子层厚的 Co。沉积速率为 0.5 原子层/分钟。(1 原子层定义为纳米)。样品的

形貌与磁性，我们分别通过原位的扫描隧道显微镜，磁光克尔磁强计和磁力显微镜进行表征。

2.3 Co 纳米链形貌与磁性表征和分析

图 2.3.1(a)-(f)显示了 1.7-6.7 原子单层 Co 纳米点集合在 Pb/Si (111) 衬底上的 STM 图。如图，沉积的 Co 纳米点在衬底台阶边缘形成了准一维纳米链。这是因为在台阶处由于晶格对称性破缺而导致形成 Ehrlich-Schwobell 势垒¹⁴，从而阻止了 Co 纳米点在生长过程中迁移到下台阶或者跨台阶。Co 纳米链大概 3.7nm 宽，1.9nm 高，并且以约 5nm 的间距相互平行。在增加 Co 沉积量的过程

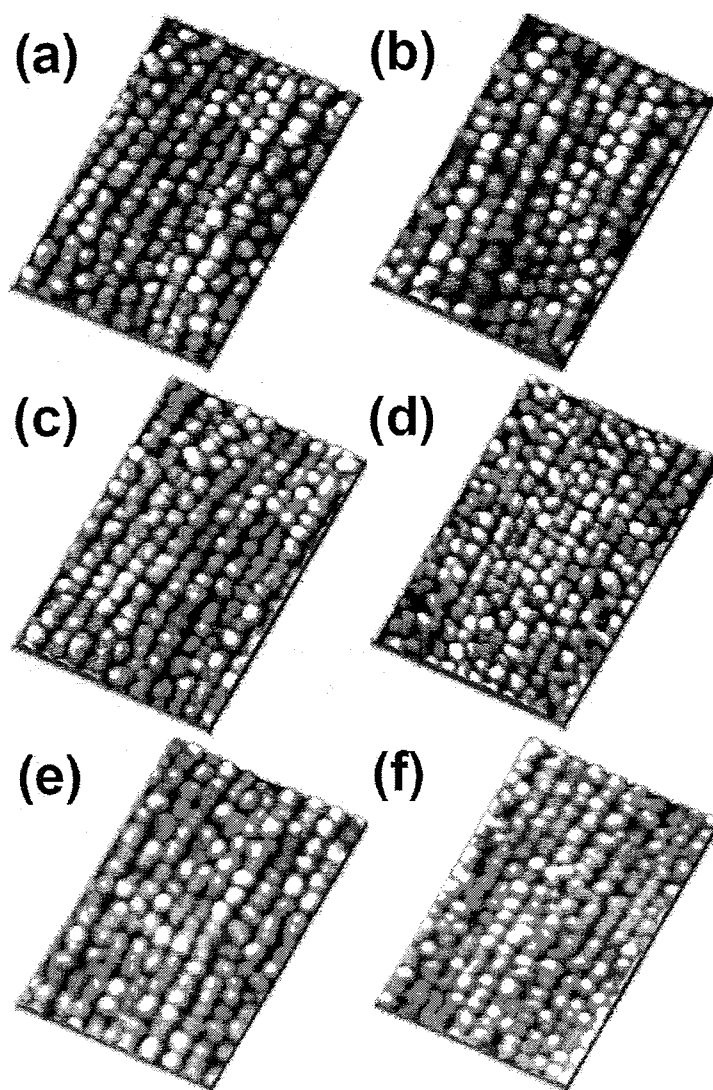


图 2.3.1 (a)-(f) (50 nm×80 nm)1.7 原子单层至 6.7 原子单层 Co 准一维纳米链 STM 图。

中, Co 纳米点的排列和尺寸分布基本上保持不变。

图 2.3.2(a)和(b)分别显示了 2.7 原子单层 Co 纳米链的粒径分布和高度分布。从它们的分布中, 我们可以得到 2.7 原子单层 Co 纳米链的平均粒径为 3.75 ± 0.25 纳米, 平均高度为 2.04 ± 0.10 纳米。类似的分布同样也存在于其他覆盖度下的 Co 纳米链中。在图 2.3.2(c)和(d)中, 显示了随着覆盖度的增加 Co 纳米链平均粒径和高度的分布。我们发现, 随着覆盖度的增加, Co 纳米链中纳米点的粒径基本不变, 但高度会先增加(在 2.7 原子单层)后减小。这意味着在 3.7 原子单层和高于 3.7 原子单层的覆盖度下, 我们的 Co 纳米点连起来了。

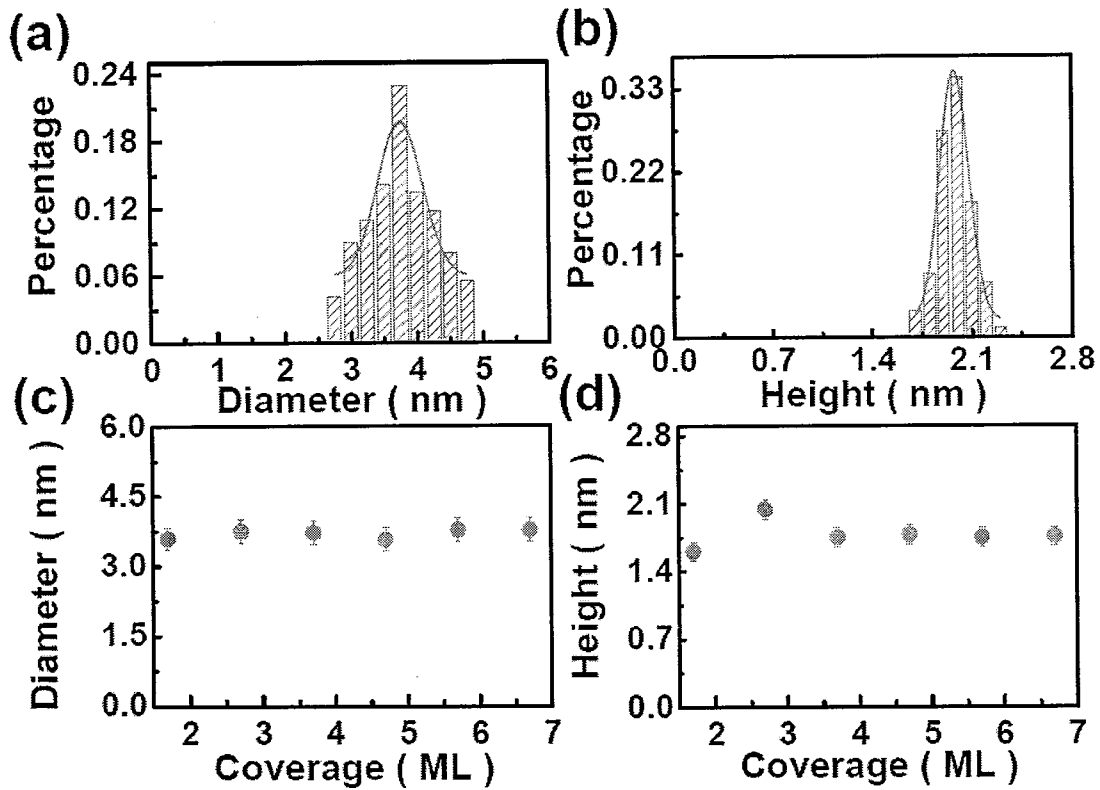


图 2.3.2 (a)和(b)2.7 原子单层 Co 准一维纳米链的粒径和高度分布。(c)和(d)随着覆盖度的增加 (1.7-6.7 原子单层) Co 准一维纳米链平均粒径和平均高度的分布。

随后, 我们通过原位的磁光克尔效应研究了 Co 准一维纳米链的磁各向异性。在测量过程中, 我们发现在垂直于链的两个正交方向上测不到任何磁性号(最大磁场为 400Oe)而在沿着链方向可以得到很好的磁滞回线。这说明我们制备的 Co 准一维纳米链是单轴磁各向异性的, 并且易轴沿着链的方向。这是因为我们制备的 Co 纳米点虽然形状是各向同性的, 但他们沿着线方向排列, 从而形成了单轴磁各向异性。反过来, 磁信号也同样证明了我们制备的准一维 Co 纳米链有

很好的线性排列。图 2.3.3 中显示了随着覆盖度的增加，易轴方向上磁滞回线的演化过程。

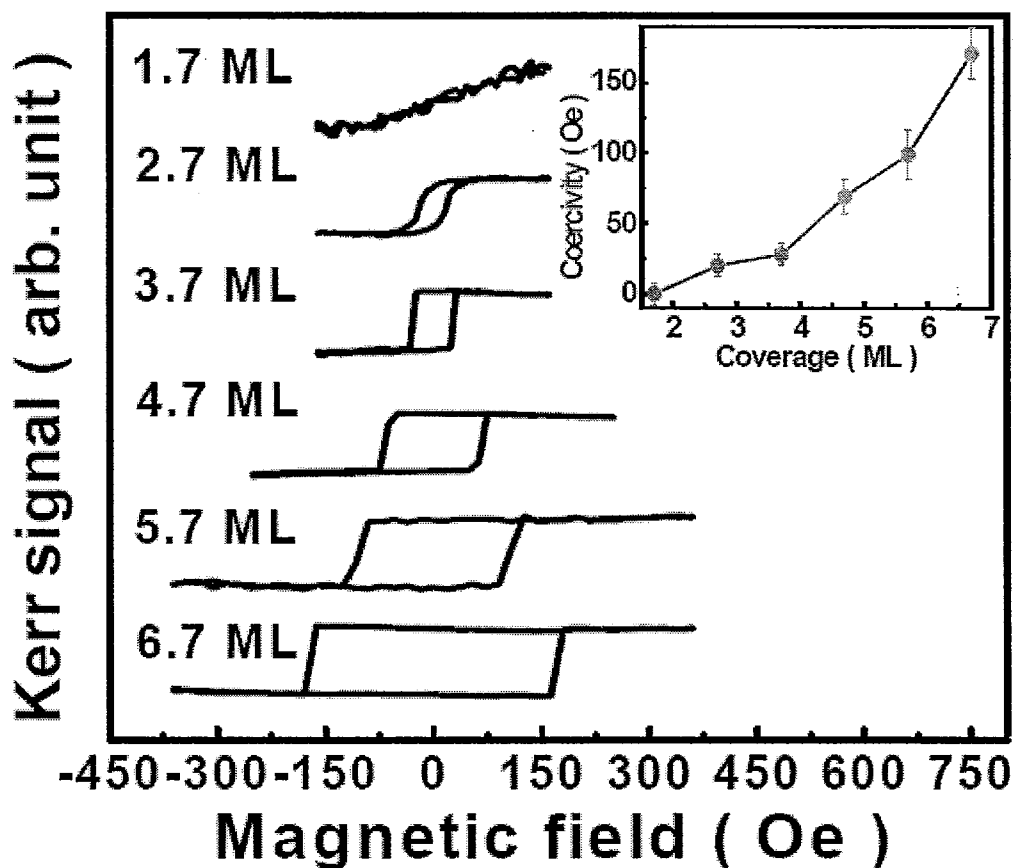


图 2.3.3 1.7 原子单层至 6.7 原子单层下 Co 准一维纳米链的磁滞回线。插图显示了随着覆盖度的增加矫顽场的变化。

在 1.7 原子单层 Co 纳米链中，我们在 300K 下没测到任何磁信号。在 2.7 原子单层和 2.7 原子单层以上，磁滞回线的演化过程如图。在 6.7 原子单层的时候，体系的磁滞回线显示了很好的矩形比。插图是 1.7-6.7 原子单层下，磁滞回线矫顽场的变化。我们发现随着覆盖度的增加，矫顽场呈单调变化趋势。这说明了我们的单轴磁各向异性在增强。有趣的是，对比在图 2.3.2 (d) 中 Co 纳米链的高度变化图，我们发现这种磁滞回线矩形比和单轴磁各向异性的增强与 Co 纳米链形状因子的修饰有关。

为了进一步得到 6.7 原子单层 Co 准一维磁纳米链的磁各向异性，我们利用原位的磁力显微镜对样品进行了退磁态扫描。如第一章中所介绍的一样，退磁态是磁各向异性能和退磁场能的相互竞争。而在退磁态下，磁畴畴壁是交换相互作用

用能和磁各向异性性能竞争的结果。所以，得到退磁态下磁畴畴壁的类型和尺寸，我们就可以计算这个磁性体系的磁各向异性。图 2.3.4 显示了 6.7 原子单层 Co 纳米链的磁结构。在用磁力显微镜测量磁结构过程中，我们用不同的磁探针-样品距离扫描。发现图像除了信号强度的变化外，并没有结构上的变化。这说明我们得到的磁结构并没有引入针尖效应。

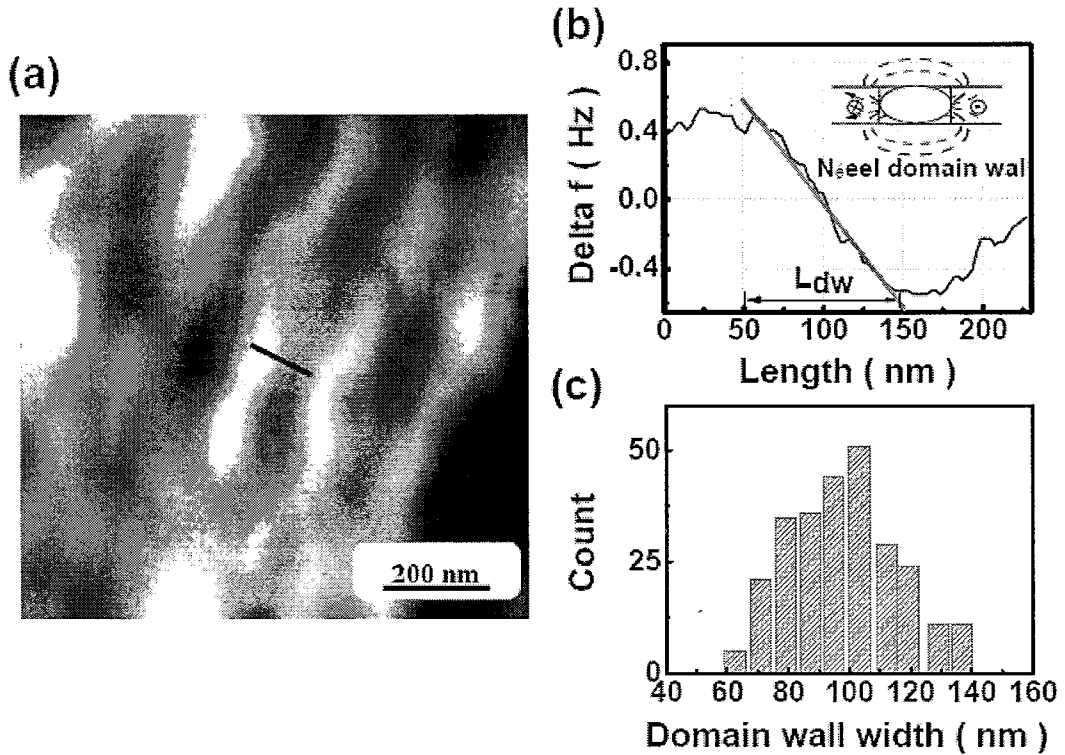


图 2.3.4 (a) (1000 nm×1000 nm) 6.7 原子单层厚 Co 准一维纳米链磁力显微图。

(b)和(c)分别为磁畴畴壁剖面曲线图和磁畴畴壁宽度统计图。

图 2.3.4 (a)显示了 6.7 原子单层厚 Co 准一维纳米链磁结构。其中，明暗相间条纹反映了磁畴结构。如果我们考虑典型的 Néel 磁畴畴壁杂散场的分布，如 2.3.4 (a)插图。其中磁力线在畴壁两端分布最密且极性相反，而在中间呈过渡态；而且磁力显微镜的磁探针是对磁力线分布梯度敏感。我们可以认为 6.7 原子单层厚 Co 准一维纳米链磁畴畴壁结构是 Néel 型。我们在畴壁剖面曲线图上定义畴壁宽度为过磁力图曲线中点的切线宽度，如图 2.3.4 (b)。并对多数磁力图进行畴壁宽度统计，如图 2.3.4 (c)。可得在 6.7 原子单层厚 Co 准一维纳米链中，平均畴壁宽度为 98.3 纳米。则有效的单轴磁各向异性 K_u 为：

$$K_u = \pi \frac{2A}{L_{dw}^2}$$

其中 $A = 3.0 \times 10^{-11} J/m$ 为块材 Co 的交换积分常数, L_{dw} 为磁畴平均畴壁宽度。

$K_u = 6.1 \times 10^4 J/m^3$, 这个值和 Fe 准一维纳米链在 Pb/Si 衬底上相近。

2.4 结论

我们在 Pb/Si(111)衬底上成功制备出了准一维 Co 磁性纳米链。我们通过原位生长, 原位测量的方式, 对准一维 Co 磁性纳米链的形貌和磁性做了研究。发现, 在 300K 下, 1.7 原子单层厚的 Co 纳米链中不存在铁磁长程序。而当覆盖度增加到 2.7 原子单层厚时, 铁磁长程序开始出现, 并呈现出沿着纳米链方向单轴磁各向异性。最后我们通过原位磁力显微镜测量并分析了 6.7 原子单层厚的 Co 纳米链的磁结构, 得出单轴磁各向异性 $K_u = 6.1 \times 10^4 J/m^3$ 。

2.5 参考文献

- ¹J. H. Gao, Q. F. Zhan, H. Wei, D. L. Sun, and Z. H. Cheng, Appl. Phys. Lett. **86**, 232506 (2005).
- ²N. Vernier, D. A. Alwood, D. Atkinson, M. D. Cookie, and R. P. Cowburn, Europhys. Lett. **65**, 526 (2004).
- ³B. K. Kuanr, V. Veerakumar, R. Marson, S. R. Mishra, R. E. Camley, and Z. Celinski, Appl. Phys. Lett. **94**, 202505 (2009).
- ⁴A. Sugwara and M. R. Scheinfein, Phys. Rev. B **56**, R8499 (1997).
- ⁵W. C. Lin, C. C. Kuo, M. F. Luo, K. J. Song, and M. T. Lin, Appl. Phys. Lett. **86**, 043105 (2005).
- ⁶Z. Gai, G. A. Farnan, J. P. Pierce, and J. Shen, Appl. Phys. Lett. **81**, 742 (2002).
- ⁷J. Shen, R. Skomski, M. Klaua, H. Jenniches, S. S. Manoharan, and J. Kirschner, Phys. Rev. B **56**, 2340 (1997).
- ⁸P. Gambardella, A. Dallmeyer, K. Maiti, M. C. Maiagooi, W. Ebrhardt, K. Kern, and C. Carbone, Nature **416**, 301 (2002).
- ⁹H. F. Du, H. Wei, H. L. Liu, Y. P. Fang, Q. Wu, T. Zou, X. Q. Zhang, Y. Sun, and Z. H. Cheng, Appl. Phys. Lett. **96**, 142511 (2010).
- ¹⁰N. Rougemaille and A. K. Schmid, J. Appl. Phys. **99**, 08S502 (2006).
- ¹¹M. Pratzer, H. J. Elmers, M. Bode, O. Pietzsch, A. Kubetzka, and R. Wiesendanger, Phys. Rev. Lett. **87**, 127201 (2001).
- ¹²W. C. Lin, Z. Gai, L. Gao, J. Shen, P. J. Hsu, H. Y. Yen, and M. T. Lin, Phys. Rev. B **80**, 024407 (2009).

- ¹³D. L. Sun, D. Y. Wang, H. F. Du, W. Ning, J. H. Gao, Y. P. Fang, X. Q. Zhang, Y. Sun, and Z. H. Cheng, Appl. Phys. Lett. **94**, 012504 (2009).
- ¹⁴R. Rangdee and P. Chataphorn, Surf. Sci. **600**, 901 (2006).

第三章 台阶诱导 Pb/Si (111) 衬底上 Co 纳米点集合均匀性与偶极铁磁性的增强

3.1 引言

低维磁性纳米结构由于其不同于块材的特性而受到非常大的关注。¹ 在制备低维磁性纳米结构的过程中, 我们通常采用修饰衬底的方法来调控纳米点的排布。在 Volmer-Weber 生长和缓冲层协助生长的生长模式中, 铁或钴原子在平整的表面上通常会随机形核长大²⁻⁴; 而在台阶表面上通常会形成准一维链结构。⁵⁻⁸ 如图 3.1.3。

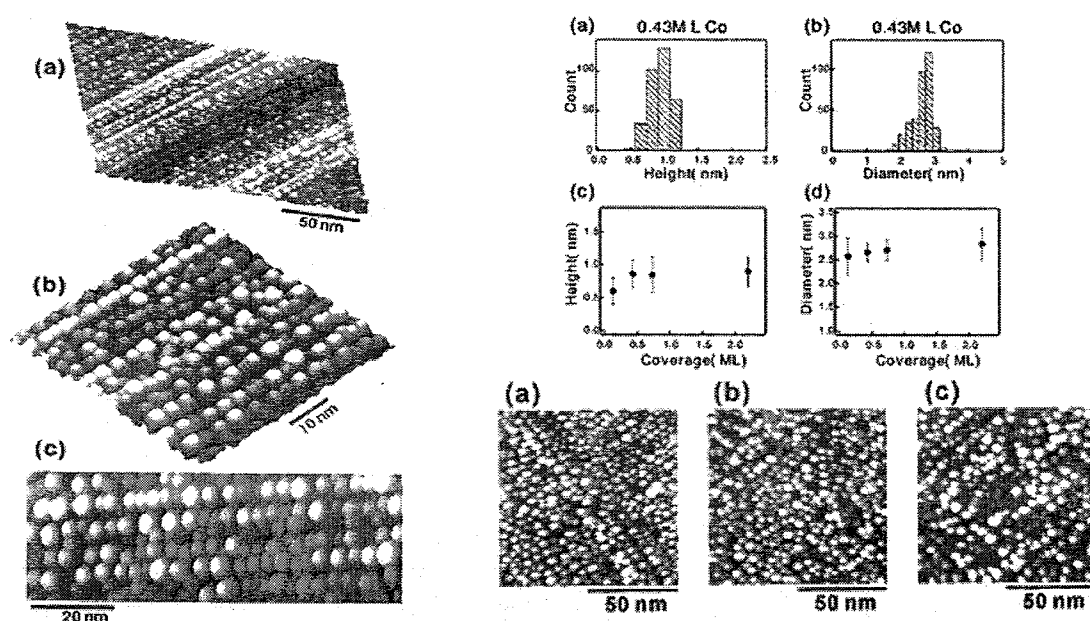


图 3.1.3 Co 纳米颗粒在 $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{NiAl}$ (100) 单晶衬底上⁶

然而, 在这些磁性纳米点集合中会由于偶极相互作用^{9,10}或衬底表面态¹¹⁻¹³而导致不同于单磁性纳米点的相互耦合。Morup 指出在强的偶极相互作用下, 磁性纳米点集合会发生由超顺磁态到铁磁态的转变。¹⁴ 且已有相关小组利用磁光克尔效应¹⁵, 铁磁共振^{16,17}, 穆斯堡尔效应^{18,19}, 平均场模型²⁰和蒙特卡洛计算^{9,21}研究了磁性纳米颗粒集合中的铁磁长程耦合。

在我们的这个工作中, 我们分别在 0.1° 和 4° 斜切 Pb/Si(111) 衬底上制备了不同排列方式的 Co 纳米点集合。通过这种台阶诱导 Co 纳米点集合低维维度的转变, 我们发现不但 Co 纳米点的均匀性得到了改善并且它们间的铁磁耦合得到增

强。进一步地，我们通过 Monte Carlo 计算发现这种铁磁耦合的增强来源于磁性纳米点集合的偶极相互作用。

3.2 Co 纳米点集合与纳米链集合的制备

所有的实验都是在超高真空(2×10^{-10} mbar)环境下进行的。我们在超高真空中将 0.1° 和 4° 斜切的 Si(111) 衬底进行烘烤，快闪等处理。然后通过低温沉积的方法在 0.1° 和 4° Si(111) 衬底上外延出原子平整的 Pb 薄膜。¹⁷ 在将 Pb 薄膜退火到室温后，我们又在低温下(120K)沉积 Co，沉积速率为 0.5 原子层/分钟。(1 原子层定义为 0.251 纳米)。我们分别通过原位的扫描隧道显微镜和变温磁光克尔磁强计对样品的形貌与磁性进行表征。

3.3 Co 纳米点集合与 Co 纳米线集合形貌与磁性表征和分析

由于 Co 与 Pb 间存在大的表面自由能不相浸润(Co 的表面能为 2.0 J/m^2 ；Pb 的表面能为 0.5 J/m^2)和大的晶格失错(Co 的晶格常数为 $a_{\text{Co}} = 2.5 \text{ \AA}$ ；Pb 的晶格常数为 $a_{\text{Pb}} = 3.5 \text{ \AA}$)，在 Pb/Si (111) 衬底上 Co 以 Volmer-Weber 模式生长（在几个原子单层内就能形成纳米点）。如图 3.3.1 (a)和(b)所示，在 4° 斜切 Pb/Si(111)衬底上 Co 原子在台阶边缘处形核，长大形成准一维纳米链集合；而在 0.1° 斜切 Pb/Si(111)衬底上 Co 原子随机形核，长大形成随机分布纳米点集合。从 STM 图中可以看出 4° 斜切 Pb/Si(111)衬底上 Co 纳米点要比 0.1° 斜切 Pb/Si(111)衬底上 Co 纳米点均匀。且从纳米点的剖面曲线中，我们可以得到纳米点高度与粒径的信息。我们用高斯分布分别拟合了 2.7 原子单层厚的 Co 纳米链和纳米点的高度和粒径分布。纳米链尺寸的方差 $\Delta a = (\langle a^2 \rangle - \langle a \rangle^2)^{1/2}$ 要比纳米点的小：

$$\Delta h_{\text{chains}} = 0.12 \text{ 纳米}, \Delta d_{\text{chains}} = 0.52 \text{ 纳米} \text{ 而 } \Delta h_{\text{dots}} = 0.19 \text{ 纳米}, \Delta d_{\text{dots}} = 0.61 \text{ 纳米}.$$

可以由应力诱导的热动力学形核解释。²²

另一个有趣的现象是随着覆盖度的增加，Co 纳米点的高度在增加而粒径基本上保持不变。如图 3.3.2 所示。这与我们用肉眼直接从 STM 图中得出的印象是一致的。然而对于 Co 准一维纳米链而言，当覆盖度达到 3.2 个原子单层厚时，高度的分布开始下降，这意味着纳米点集合开始连起来了。对于 Co 随机分布纳米点集合，这个临界覆盖度为 4.2 个原子单层。表 I 小结了随着覆盖度的增加

Co 纳米点和纳米链尺寸统计结果。

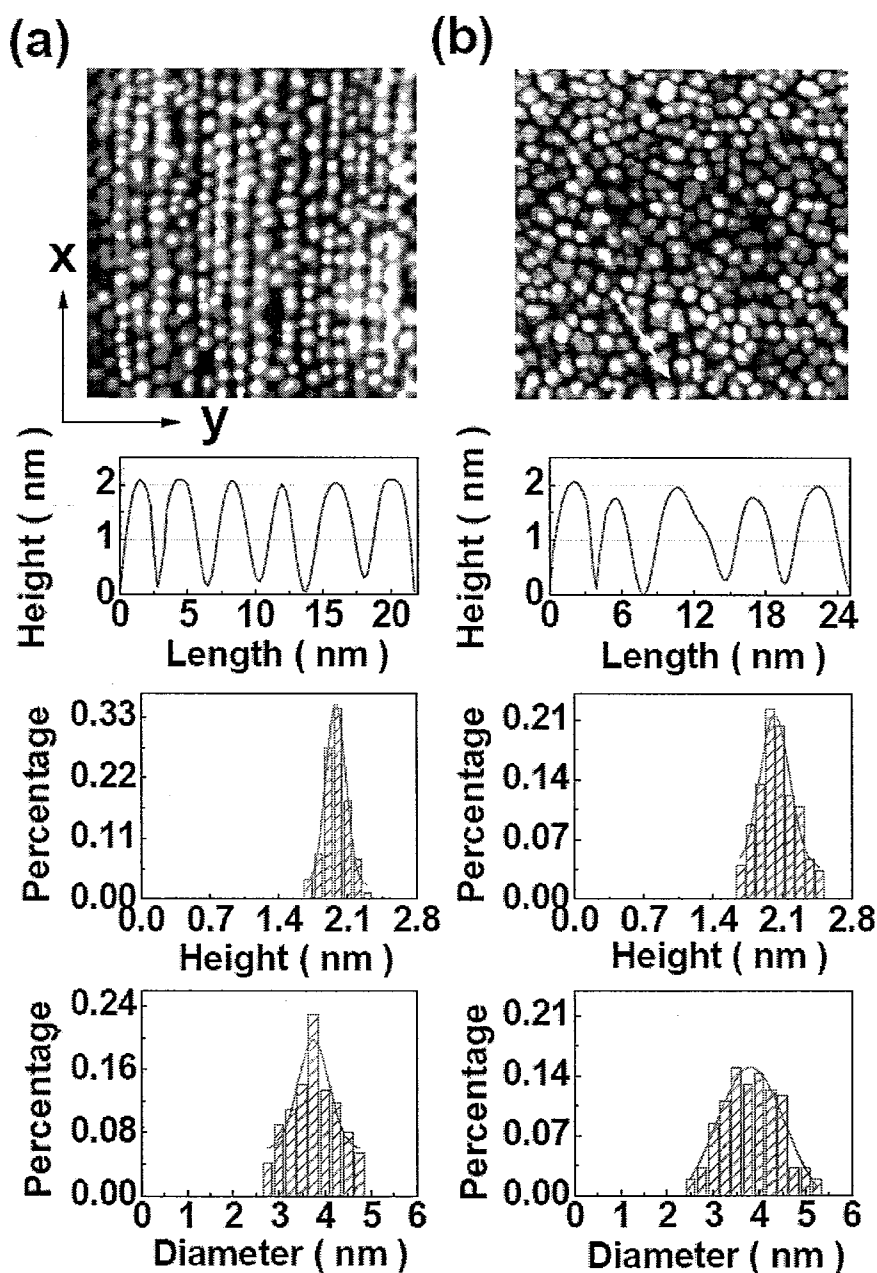


图 3.3.1 (a) $(90 \text{ nm} \times 90 \text{ nm})$ 2.7 原子单层厚 Co 准一维纳米链扫描隧道显微镜图和其高度，粒径分布。(b) $(90 \text{ nm} \times 90 \text{ nm})$ 2.7 原子单层厚 Co 随机分布纳米点扫描隧道显微镜图和其高度，粒径分布。

对于二维 Co 纳米点集合和准一维 Co 纳米链集合的磁性测量如图 3.3.3 所示。测量结果显示出了很好的铁磁行为。与长在 Pb/Si (111) 衬底上 Fe 岛类似¹⁷，我们在垂直于衬底方向上没有测得磁信号，Co 纳米点集合表现出面内易磁化行为。

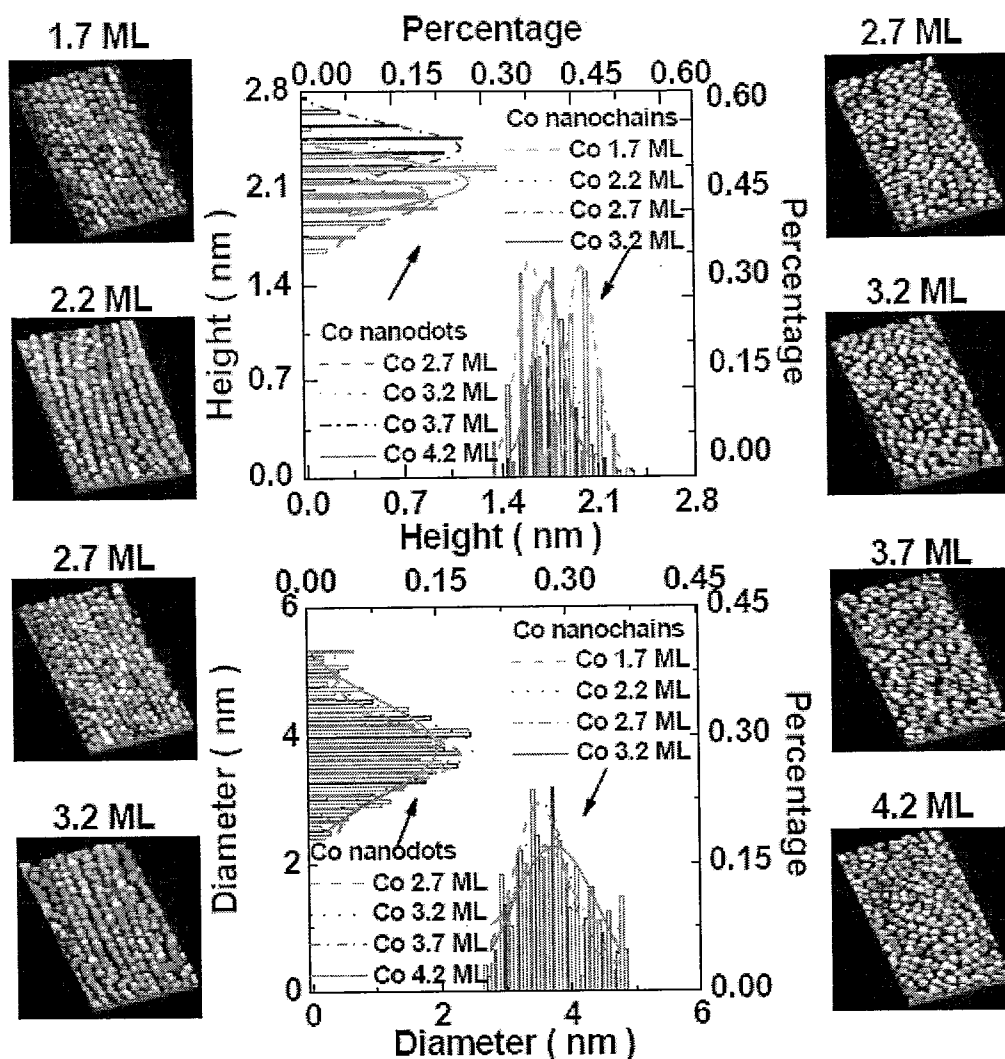


图 3.3.2 (50 nm × 80 nm) 1.7-3.2 原子单层厚 Co 准一维磁性纳米链扫描隧道显微镜图和高度, 粒径分布; (50 nm × 80 nm) 2.7-4.2 原子单层厚 Co 随机分布磁性纳米点扫描隧道显微镜图和高度, 粒径分布。

在面内, Co 在台阶表面上的纳米点集合在垂直于链方向上没有测得磁信号 (最大磁场为 400Oe) 表现出明显的单轴磁各向异性; 而对于平整表面上 Co 纳米点集合, 在面内相互垂直方向上类似的磁滞回线表明 Co 随机分布纳米点在面内是磁各向同性的。图 3.3.3 (a)- (d) 分别显示了二维 Co 纳米点集合和准一维 Co 纳米链集合的磁滞回线。对于二维 Co 纳米点集合, 磁滞回线是圆形的, 且在矫顽场附近磁矩逐渐减小。对于准一维 Co 纳米链集合, 磁滞回线呈明显的矩形, 且在矫顽场附近磁矩突然变化。124K 下样品矫顽场和磁性状态列入表 I。图 3.3.3 (e) 和 (f) 描述了 3.2~4.2 原子单层厚的二维 Co 纳米点集合和 2.2~3.2 原子单层厚准

一维 Co 纳米链集合的剩磁比 M_r/M_s 。临界温度 T_c 定义为剩磁 M_r 消失的温度。

¹¹ 有趣的是,对于相同覆盖度下 3.2 个原子单层厚的准一维 Co 纳米链集合的 T_c 要比 3.2 个原子单层厚的二维 Co 纳米点集合高很多。甚至对于平均体积要小 32% 的 2.2 个原子单层厚 Co 纳米链集合而言,其 T_c 也要比 3.2 个原子单层厚的二维 Co 纳米点集合高大约 32K。我们用标度律 $M_r = M_0(1 - T/T_c)^\beta$ 去拟合低维磁性纳米结构的热磁曲线得到不同的 β 值。发现,对于准一维 Co 纳米链集合而言 β 值要比二维 Co 纳米点集合低。这通常可由磁性系统的维度降低来解释。²³

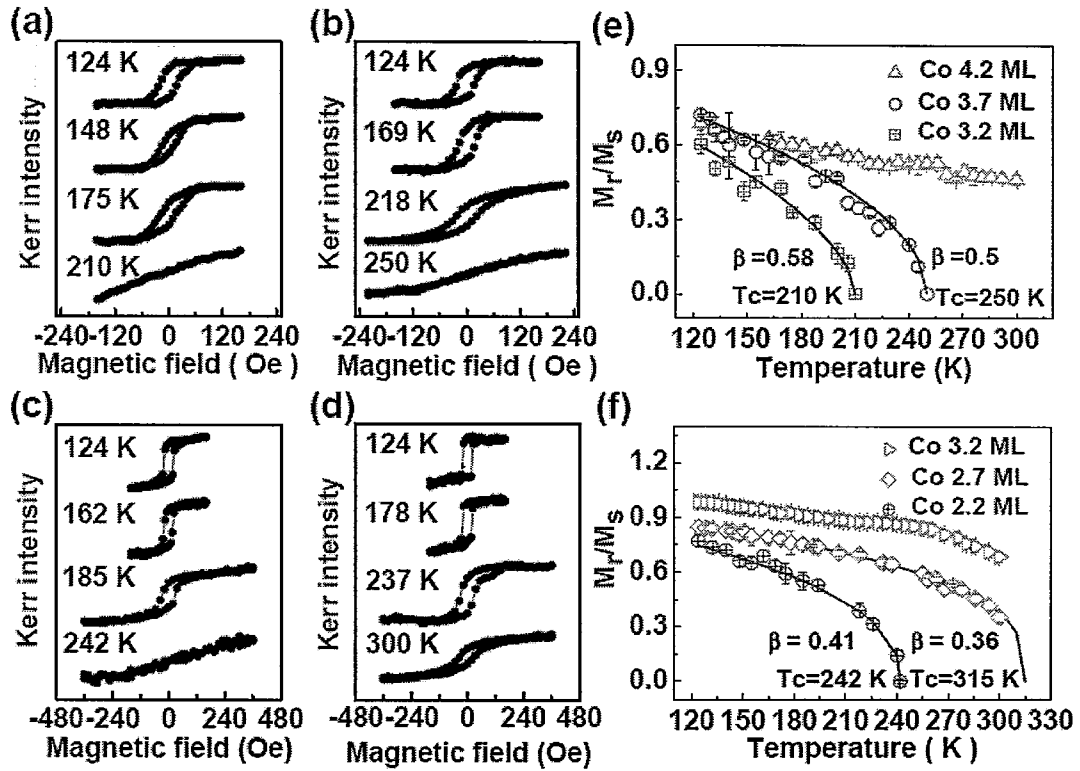


图 3.3.3 (a)-(b) 3.2, 3.7 原子单层厚二维 Co 纳米点集合和 2.2, 2.7 原子单层厚准一维 Co 纳米链集合的变温 MOKE 磁滞回线。(e)和(f)3.2-4.2 原子单层厚二维 Co 纳米点集合和 2.2-3.2 原子单层厚准一维 Co 纳米链集合变温热磁曲线。

3.4 二维 Co 纳米点集合与准一维 Co 纳米链集合的 Monte Carlo 模拟

通常在磁性纳米点集合系统中,除了磁各向异性,直接偶极相互作用耦合和由衬底表面巡游电子导致的间接耦合都能影响临界温度 T_c 。为了弄清在我们这个体系中磁性纳米点间的耦合机制,我们用 Monte Carlo 模拟的方法分别计算了二

维 Co 纳米点集合与准一维 Co 纳米链集合的静磁相互作用。

假设由于交换相互作用的影响，每个 Co 纳米点都可以看成一个大的 Heisenberg 磁矩，即 $\mu_i = V_i \cdot M_s$ （对 hcp 的 Co 而言 $M_s = 1.43 \times 10^6 \text{ A/m}$ ）。Co 纳米点间的偶极相互作用能和自能可以用快速傅立叶变化的方法计算得到。^{24,25} 这两种能量分别对应了磁性纳米点间的偶极相互作用和形状各向异性。模拟采用了周期性边界条件和 400 多个纳米点。纳米点实际的形状和分布可由 STM 图像直接获得。²⁶

考虑两个 Co 纳米点的体积分别为 V_i 和 V_j ，连接他们之间的矢量为 ρ 。形状函数分别为 $D_i(\mathbf{r})$ 和 $D_j(\mathbf{r})$ 。则他们之间的相互作用能可以写为：

$$E_{ij}^m = \mu_0 [\mu_i : N(\rho) : \mu_j] \quad (3.4.1)$$

其中的“:”号代表的是张量积。 $N(\rho)$ 是相互作用张量，可以写为：

$$N^{\alpha\beta}(\rho) = \frac{1}{V_i V_j} \int k^\alpha k^\beta e^{ik \cdot \rho} D_i(k) D_j^*(k) / k^2 d^3 k \quad (3.4.2)$$

其中形状幅度 $D_i(k)$ 为形状函数的傅立叶表示， k^α 为傅立叶空间的矢量。采用同样的方法可以得出每一个纳米团簇本身的退磁场能，可以写为：

$$E_i^{self} = \mu_0 [\mu_i : \langle N \rangle : \mu_i] / 2V_i \quad (3.4.3)$$

其中为体积平均的退磁因子，为：

$$\langle N \rangle^{\alpha\beta} = 1/V_i \int k^\alpha k^\beta |D_i(k)|^2 / k^2 d^3 k \quad (3.4.4)$$

最后考虑 Zeeman 能：

$$E_i^{ext} = -\mu_0 \mu_i \cdot H \quad (3.4.5)$$

则体系的总能量可以写成：

$$E = \sum_i \left(E_i^{self} + \sum_j E_{ij}^{inter} + E_i^{ext} \right) \quad (3.4.6)$$

基于上面给出的能量，我们可以算出温度相关的剩磁曲线。如图 3.3.4 (a) 所示，计算结果与实验符合得很好。如果我们把 3.2 个原子单层厚的二维 Co 纳米点集合作为参考标准的话，3.2 和 2.2 个原子单层厚的 Co 准一维纳米链的剩磁

比 M_r/M_s 更高, 且随温度下降得更缓慢。而 2.2 个原子单层厚 Co 准一维纳米链的临界温度 T_c 比 3.2 个原子单层厚 Co 纳米点集合还高意味着它们有更强的偶极相互作用。为了更进一步检测偶极相互作用在低维纳米点集合中的作用, 我们在不考虑偶极相互作用的情况下, 计算了 2 个原子单层厚 Co 准一维纳米链和 3.2 个原子单层厚 Co 纳米点集合的热磁曲线, 如 3.3.4 (a) 插图。有趣的是, 当不考虑偶极相互作用时, 准一维纳米链和二维纳米点集合具有类似的 $M-T$ 行为, 而且临界温度 T_c 也要低很多 (大约 35K), 表现出来的是零维纳米点集合的特性。这表明 Co 纳米点-纳米点间的偶极相互作用能影响 Co 纳米点集合的维度。

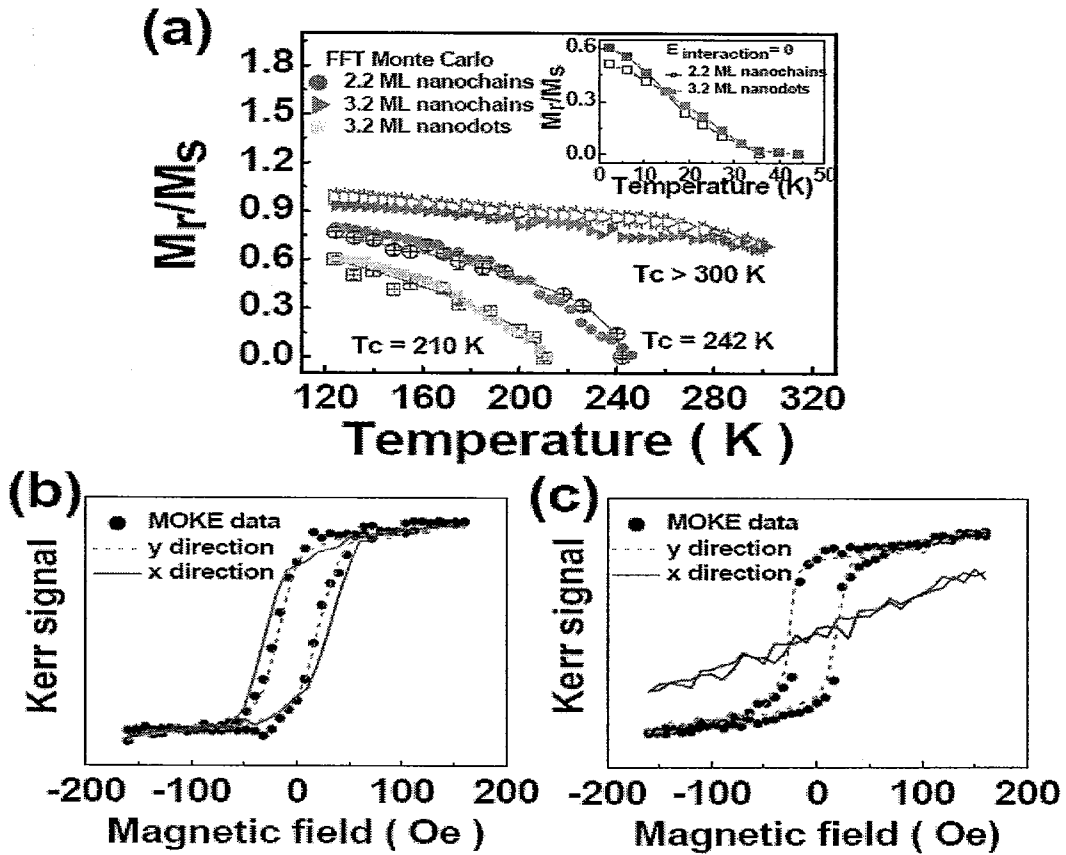


图 3.3.4 (a) Monte Carlo 计算的 2.2 个原子单层厚 Co 准一维纳米链集合和 2.2, 3.2 个原子单层厚 Co 纳米点集合的热磁曲线。(b) Monte Carlo 计算的 2.2 个原子单层厚 Co 准一维纳米链集合磁滞回线。(c) Monte Carlo 计算的 3.2 个原子单层厚 Co 纳米点集合磁滞回线。

图 3.3.4 (b)和(c)给出了 Monte Carlo 计算的纳米点和纳米链集合面内两个相互正交方向的磁滞回线。明显地, 对于二维纳米点而言, 磁结构是面内各向同性

的；而对于准一维纳米链而言，磁结构是单轴各向异性的。Monte Carlo 计算表明，对于 Co 在 Pb/Si(111)衬底上，其铁磁性是来源于纳米点和纳米点间的偶极相互作用。且这种相互作用能够通过表面台阶诱导的低维维度的降低而增强。

为了更进一步排除 Pb/Si(111)衬底表面态的对 Co 纳米点集合磁性的影响，我们在样品表面上覆盖了 Pb 膜。根据 M. A. Torjia¹² 的报导，如果衬底表面态对衬底上磁性纳米点的磁行为有影响，当样品表面再盖上金属薄膜后，由于其对衬底表面态的破坏，磁性纳米点集合的临界温度 T_c 会降低。然而，在我们的实验中并没有发现当盖了 Pb 薄膜后临界温度 T_c 或磁滞回线发生明显的变化。根据 P.A. Ignatiev 等人的理论，这可能是由于在界面处 Pb 和 Co 并不存在互溶的原因。²⁷

Table I. Summary of Co nanodots and nanochains structure and magnetic properties as a function of Co deposited on vicinal Pb/Si(111) surface. SP and F indicate superparamagnetism and ferromagnetism, respectively.

	Co coverage (ML)	Average island Diameters (nm)	Average island Height (nm)	Number of islands per area (10^{-2} island/nm ²)	Coercive field at 124K (Oe)	Magnetic state at 124K
nanochains	1.7	3.59 ± 0.25	1.61 ± 0.10	4.27 ± 0.20	—	SP
	2.2	3.69 ± 0.25	1.79 ± 0.10	4.35 ± 0.20	20 ± 4	F
	2.7	3.75 ± 0.25	2.04 ± 0.10	4.33 ± 0.20	20 ± 4	F
	3.2	3.79 ± 0.25	1.73 ± 0.10	partly percolated	40 ± 4	F
nanodots	2.7	3.83 ± 0.25	1.98 ± 0.10	4.21 ± 0.20	—	SP
	3.2	3.79 ± 0.25	2.24 ± 0.10	4.37 ± 0.20	20 ± 4	F
	3.7	3.92 ± 0.25	2.41 ± 0.10	4.28 ± 0.20	20 ± 4	F
	4.2	3.78 ± 0.25	2.14 ± 0.10	partly percolated	25 ± 4	F

表 I Pb/Si(111) 衬底上准一维纳米链和二维纳米点集合中 Co 纳米点的尺寸, 124K 下矫顽场与磁性态。

3.5 结论

我们在 Pb/Si(111)衬底上通过表面台阶的诱导制备出二维 Co 纳米点集合和准一维 Co 纳米链集合。通过原位扫描隧道显微镜对上述磁性纳米点集合的研究，我们发现在台阶的诱导下，Co 纳米点在台阶上呈现更好的均匀性。原位变温磁光克尔效应的测量表明相对于二维 Co 纳米点集合，准一维 Co 纳米链集合具有更高的临界温度 T_c 且呈现单轴磁各向异性。更进一步地，我们通过 Monte Carlo

计算表明这种高的临界温度和单轴磁各向异性主要来源于纳米点和纳米点间的偶极相互作用。

3.6 参考文献

- ¹P. Gambardella, A. Dallmeyer, K. Maiti, M. C. Maiagooi, W. Eberhardt, K. Kern, and C. Carbone, *Nature* **416**, 301 (2002).
- ²Z. Gai, B. Wu, J. P. Pierce, G. A. Farnan, D. J. Shu, M. Wang, Z. Y. Zhang, and J. Shen, *Phys. Rev. Lett.* **89**, 235502 (2002).
- ³W.C. Lin, P.C. Huang, K.J. Song, and M.T. Lin, *Appl. Phys. Lett.* **88**, 153117 (2006).
- ⁴Z. Gai, J. Y. Howe, J. D. Guo, D. A. Blom, E. W. Plummer, and J. Shen, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 023107 (2005).
- ⁵W.C. Lin, H.Y. Chang, Y. Y. Lin, Y. C. Hu, C. H. Hsu, and C. C. Kuo, *J. Appl. Phys.* **107**, 014301 (2010).
- ⁶W.C. Lin, C.C. Kuo, M.F. Luo, K.J. Song, and M.T. Lin, *Appl. Phys. Lett.* **86**, 043105 (2005).
- ⁷Z. Gai, G. A. Farnan, J. P. Pierce, and J. Shen, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 742 (2002).
- ⁸A. Sugawara and M. R. Scheinfein, *Phys. Rev. B* **56**, R8499 (1997).
- ⁹M. R. Scheinfein, K. E. Schmidt, K. R. Heim, and G. G. Hembree, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 1541 (1996).
- ¹⁰K. R. Heim, G. G. Hembree, K. E. Schmidt, and M. R. Scheinfein, *Appl. Phys. Lett.* **67**, 2878 (1995).
- ¹¹J. P. Pierce, M. A. Torija, Z. Gai, J. Shi, T. C. Schulthess, G. A. Farnan, J. F. Wendelken, E. W. Plummer, and J. Shen, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 237201 (2004).
- ¹²M. A. Torija, A. P. Li, X. C. Guan, E. W. Plummer, and J. Shen, *Phys. Rev. Lett.*

- 95, 257203 (2005).
- ¹³L. F. Yin, D. Xiao, Z. Gai, T. Z. Ward, N. Widjaja, G. M. Stocks, Z. H. Cheng, E. W. Plummer, Z. Y. Zhang, and J. Shen, Phys. Rev. Lett. **104**, 167202 (2010).
- ¹⁴S. Morup, Europhys. Lett. **28**, 671 (1994).
- ¹⁵J. Shen, R. Skomski, M. Klaua, H. Jenniches, S. S. Manoharan, and J. Kirschner, Phys. Rev. B **56**, 2340 (1997).
- ¹⁶W. N. Wang, Z. S. Jiang, and Y. W. Du, J. Appl. Phys. **78**, 6679 (1995).
- ¹⁷D. L. Sun, D. Y. Wang, H. F. Du, W. Ning, J. H. Gao, Y. P. Fang, X. Q. Zhang, Y. Sun, and Z. H. Cheng, Appl. Phys. Lett. **94**, 012501 (2009).
- ¹⁸S Mørup and E. Tronc, Phys. Rev. Lett. **72**, 3278 (1994).
- ¹⁹S. Linderith, L. Balcells, A. Labarta, J. Tejada, P. V. Hendriksen, and S. A. Sethi, J. Magn. Magn. Mater. **124**, 269 (1993).
- ²⁰M. E. Hilo, K. O'Grady, and R. W. Chantrell, J. Magn. Magn. Mater. **114**, 295 (1992).
- ²¹D. Kechrakos and K. N. Trohidou, Appl. Phys. Lett. **81**, 4574 (2002).
- ²²V. A. Shchukin and D. Bimberg, Rep. Prog. Phys. **64**, 297 (2001).
- ²³F. Huang, M. T. Kief, G. J. Mankey, and R. F. Willis, Phys. Rev. B **49**, 3962 (1994).
- ²⁴S. Tandon, M. Beleggia, Y. Zhu, and M. De Graef, J. Magn. Magn. Mater. **271** 27 (2004).
- ²⁵M. Beleggia and M. De Graef, J. Magn. Magn. Mater. **285** L1 (2005).
- ²⁶H. F. Du, W. He, D. L. Sun, Y. P. Fang, H. L. Liu, X. Q. Zhang, and Z. H. Cheng,

Appl. Phys. Lett. **96** 132502 (2010).

²⁷P. A. Ignatiev, N. N. Negulyaev, A. S. Smirnov, L. Niebergall, A. M. Saletsky, and V. S. Stepanyuk, Phys. Rev. B **80**, 165408 (2009).

第四章 在 Si (111) 衬底上斜入射沉积 Co 薄膜的表面形貌与磁各向异性

4.1 引言

最近表面形貌对低维磁性纳米结构磁各向异性的影响受到许多关注。^{1,2} 当在真空系统制备材料时,由于沉积原子与衬底表面原子的相互作用而改变沉积原子的运动轨迹,从而造成沉积原子在表面不均匀分布。这一效应称之为 steering 效应。^{3,4} 在斜入射沉积过程中,这种 steering 效应非常重要并且通常会造成垂直于入射方向的晶粒形状拉长,如图 4.1.1。如果沉积材料为磁性物质时,这种拉长的晶粒通常会形成单轴磁各向异性。⁵

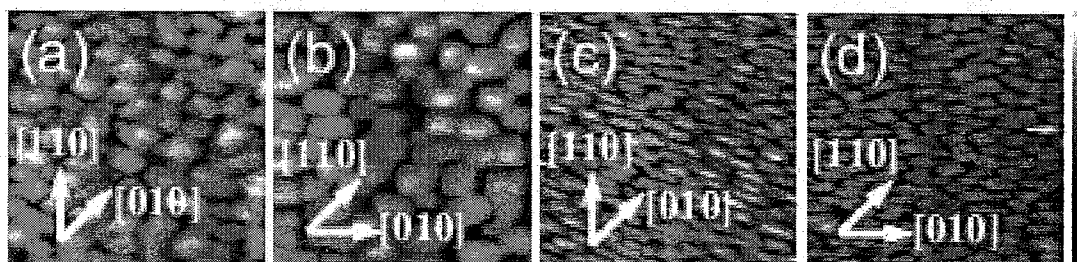


图 4.1.1 分别以 30° , 60° 斜入射角在 MgO (100) 表面上 [110] 和 [010] 方向上沉积 Fe 薄膜的形貌。¹

更进一步地, Bubendorff 等人利用关联函数计算了表面形貌诱导的磁各向异性。⁶ 如图 4.1.2 所示。

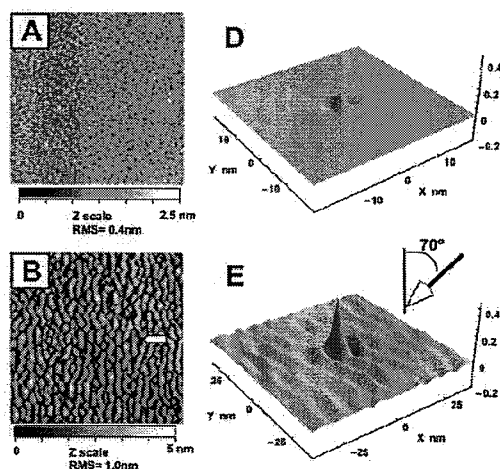


图 4.1.2 自关联函数计算的表面形貌。⁶

对于对磁各向异性的调控而言,通常把单轴磁各向异性加在四重对称的磁晶各向异性上,如 Fe/MgO(001)体系, Co/Cu(001)体系,来调控低维磁性纳米结构的磁反转行为。⁷⁻¹⁰ 当单轴磁各向异性不同的强度与方向确定时,磁滞回线中能观察到两个或三个台阶跳变,如图 4.1.3。这种难轴附近的磁反转行为可以由一致转动模型来解释。¹¹

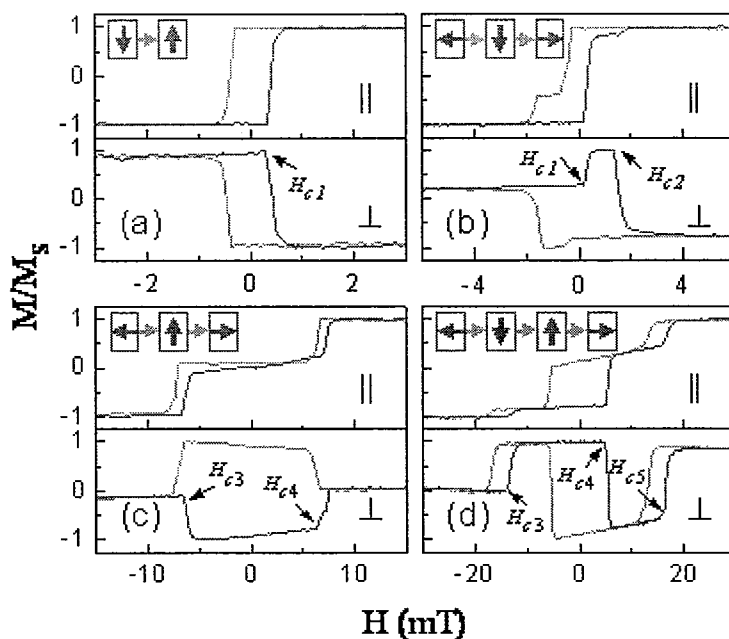


图 4.1.3 在磁滞回线中由于单轴磁各向异性的调制而出现的不同磁跳变。⁷

然而,将单轴磁各向异性叠加在磁六重对称系统中的报道却很少见。^{12,13} 本工作中,我们在 Si(111)衬底上用斜入射的方式制备出 Co 薄膜。用磁光克尔效应和一致转动模型研究了在难轴附近的磁反转行为并给出叠加的单轴磁各向异性强度。更进一步地,我们利用自关联函数计算了表面形貌导致的磁各向异性。计算的结果与由磁反转得出的值一致。

4.2 Si(111)衬底上斜入射 Co 薄膜的制备

我们在超高真空系统中,利用电子束蒸发源在 Si(111)衬底上分别以垂直入射和 60°倾角入射制备 10 纳米厚的 Co 薄膜。如图 4.2.1 (a)所示。沉积速率为 4 埃每分钟。图 4.2.1 (b)是斜入射样品表面形貌,我们可以看到在垂直于入射面的方向上 Co 晶粒被拉长了且形成条状结构。表面粗糙度为 0.65 纳米(均方根)。而对于垂直入射样品,图 4.2.1 (c),薄膜表面是各向同性的,且表面粗糙度为 0.12 纳米。在我们做进一步地磁性测量前,我们将 25 埃厚的 NaCl 盖在样品表面以防

止氧化。

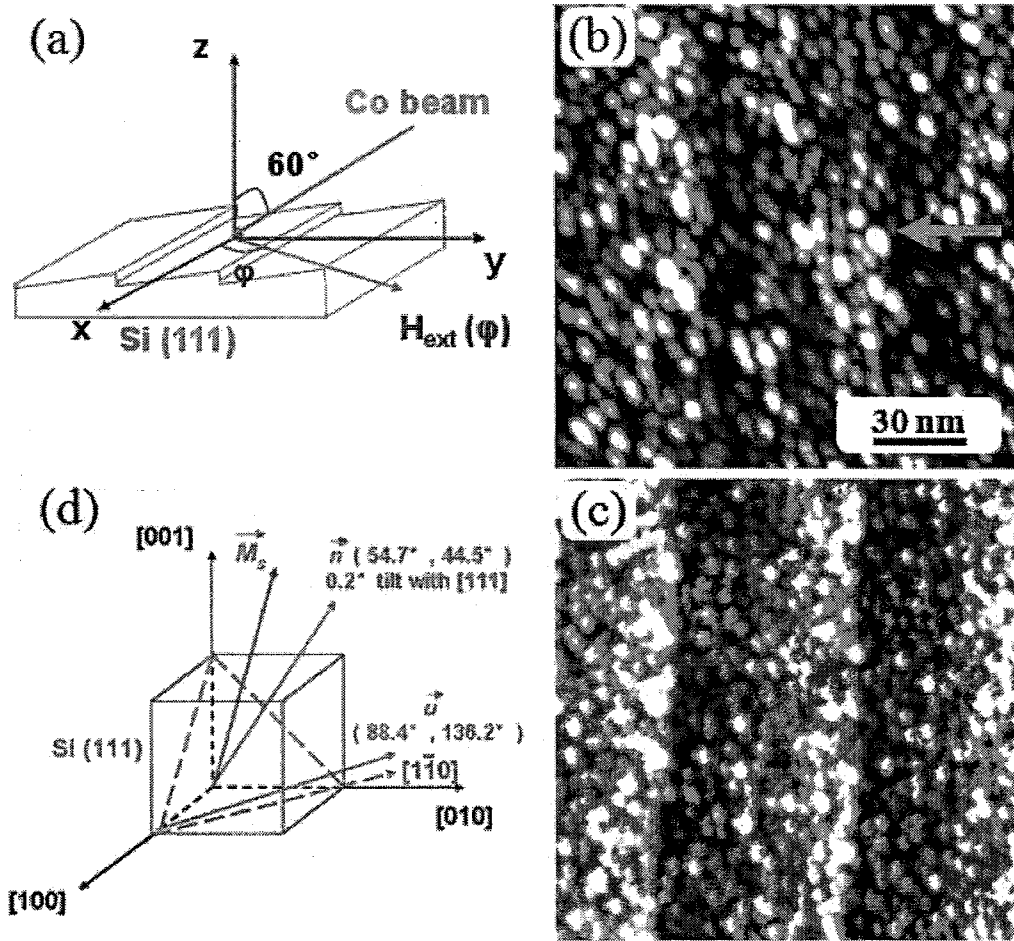


图 4.2.1 (a) 样品生长构型与外磁场方向草图。(b) (150 nm×150 nm) 60°角斜入射样品扫描隧道显微镜形貌，箭头方向是 Co 原子沉积方向。(c) (150 nm×150 nm) 垂直入射样品扫描隧道显微镜形貌。(d) Co (111) 薄膜和单轴磁各向异性在笛卡尔坐标系中的描述。

4.3 Co(111)薄膜的磁性表征

我们对 60°斜入射样品做了面内转角磁化曲线的测量。其中转角 Φ 在图 4.2.1 中有定义。图 4.3.1 为测量的典型磁滞回线。当角度 Φ 从 210°转到 70°时，回线从开始的圆角矩形慢慢地过渡到直角矩形，然后到几乎线性，最后成为圆形回线。从磁滞回线随着外磁场方向的演化我们可以发现： $\Phi=0^\circ$ 和 180° 方向是样品的易轴，即沿着 Co 晶粒条状分布方向上磁滞回线有最好的矩形比。在样品的难轴附近， $\Phi=70^\circ$ ，磁滞回线表现出了不太常见的小峰。这说明体系存在复杂的磁各向

异性的竞争。

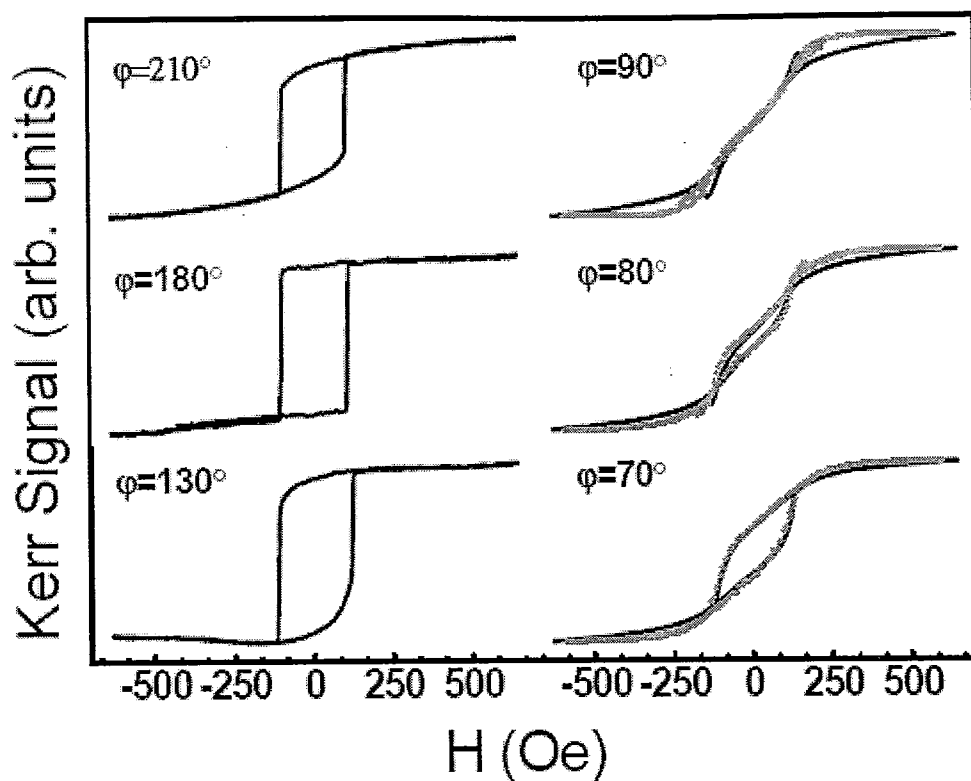


图 4.3.1 黑线是实验测得的从 $\Phi=210^\circ$ 到 $\Phi=70^\circ$ 面内转角磁滞回线的测量。红线 $\Phi=90^\circ$ 到 $\Phi=70^\circ$ 是理论计算的难轴附近的磁滞回线。

磁各向异性的对称性能从角度变化的矫顽场曲线中明显看出来。如图 4.3.2 所示。除了一个很明显的单轴磁各向异性存在外，我们同样也能观察到一个很弱的 Co(111)薄膜的六重对称磁晶各向异性。如图 4.3.2 中六个等间距的极小点（红色箭头所示）。在 $\Phi=90^\circ$ 和 $\Phi=270^\circ$ 附近，矫顽场 H_c 呈现不对称性，这说明单轴磁各向异性与 Co(111)薄膜的六重对称磁晶各向异性中的易轴方向有很小的偏离。

为了搞清楚我们制备的 Co(111)薄膜中不同的磁各向异性，特别是单轴磁各向异性。我们用一致转动模型模拟了在难轴附近 $\Phi=70^\circ$ ， $\Phi=80^\circ$ ， $\Phi=90^\circ$ 的磁滞回线。考虑 Co(111)薄膜磁晶各向异性的一阶和二阶项，并把表面形貌诱导的单轴磁各向异性加入其中。建立如图 4.2.1 (d) 所示的坐标系，磁化矢量 $\vec{M}_s$ 的方向余弦为 $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$ 。在退磁能和外加磁场 Zeeman 能的作用下，体系的总能量可以写成：

$$E = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1\alpha_2\alpha_3)^2 - K_u(\vec{M}_s \cdot \vec{u}/M_s)^2 + 2\pi(\vec{M}_s \cdot \vec{n})^2 - \vec{M}_s \cdot \vec{H} \quad (4.3.1)$$

其中 K_1 和 K_2 是 Co (111) 薄膜的一阶和二阶磁晶各向异性性能, K_u 是单轴磁各向异性性能。方向矢量 $\vec{u}$ 和 $\vec{n}$ 分别代表着单轴磁各向异性和薄膜法线的方向。

$K_1 = -1.6 \times 10^6 \text{ erg/cm}^3$ 和 $M_s = 1422 \text{ emu/cm}^3$ 取的是室温下 Co (111) 薄膜的磁参量。

¹⁵ 从 Si(111)衬底表面的扫描隧道显微镜图中我们可以得到 Si(111)表面台阶平均宽度 L 约为 60 纳米, 台阶高度为约 0.3 纳米。从角度公式 $\tan\theta = h/L$ 中, 我们可以算出衬底表面与 [111] 方向有约为 0.28° 的倾角。故, 可取薄膜法线的方位角为 54.7° 和 44.5° , 如图 4.2.1 (d)。对于单轴磁各向异性的方位角, 考虑到在测量中 $\Phi = 88^\circ \sim \Phi = 91^\circ$ 的磁滞回线基本都是零剩磁, 我们取单轴磁各向异性与 [110] 方向有大约 2° 的偏离, 矢量 $\vec{u}$ 的方位角取 88.4° 和 136.2° , 如图 4.2.1 (d)。模拟计算的磁滞回线在图 4.3.1 中用红色显示。我们可以得到单轴磁各向异性性能为 $K_u = 1.7 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$, Co(111)薄膜二阶磁晶各向异性性能为 $K_2 = 7.2 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ 。

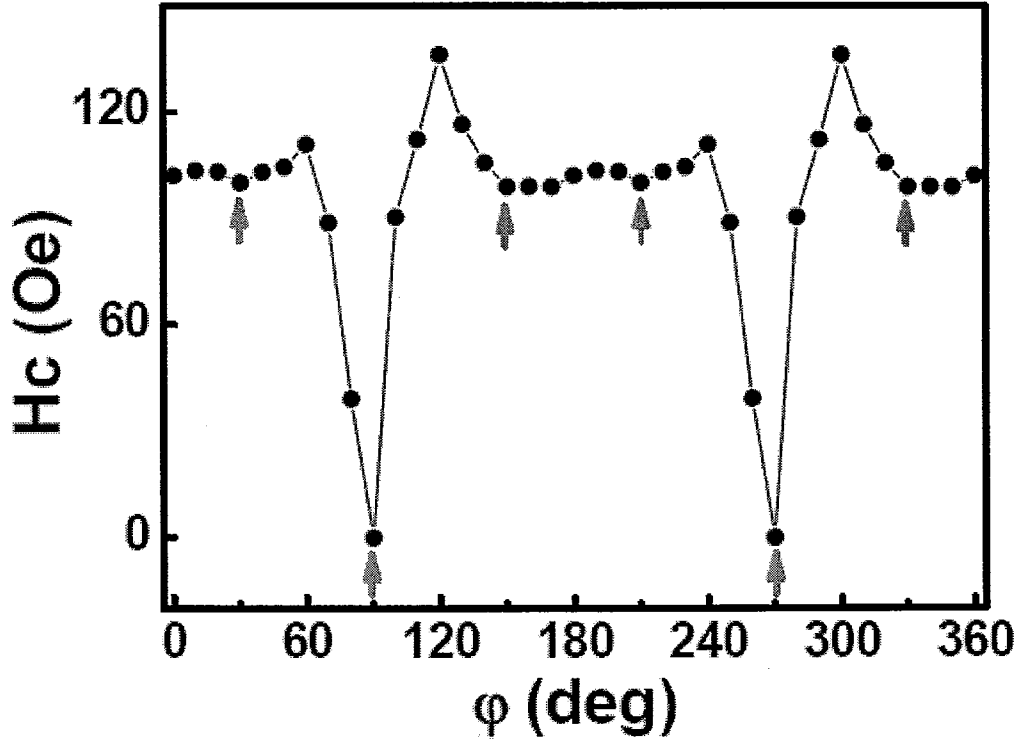


图 4.3.2 矫顽场 H_c 随着外磁场方向变化曲线。其中红色箭头是六个等间距的极小值, 代表着体系的磁六重对称各向异性。

4.4 Co(111)薄膜表面形貌的自关联函数计算

在由斜入射制备样品的过程中，通常除了会改变样品表面形貌外，还会引入应力的作用。这里，我们将通过扫描隧道显微镜图像来计算样品表面形貌的形状各向异性。考虑到样品的表面形貌是由于每个点高度不同而引起的，所以我们可以根据样品表面的高度分布 $\varepsilon(\vec{r})$ ，点和点之间的距离 $\vec{r}$ 以及点和点之间的角度来构造关联函数 $g_{ij}(\vec{r})$ ：

$$g_{ij}(\vec{r}) = \frac{1}{S} \int_S \frac{d^2\vec{r}_0 \frac{\partial \varepsilon}{\partial i}(\vec{r}_0) \frac{\partial \varepsilon}{\partial j}(\vec{r}_0 + \vec{r})}{\left[1 + \left(\frac{\varepsilon(\vec{r}_0) - \varepsilon(\vec{r}_0 + \vec{r})}{r}\right)^2\right]^{\frac{1}{2}}} \quad (4.4.1)$$

其中 S 是薄面表面积。显然，在这里样品表面的高度分布 $\varepsilon(\vec{r})$ 及高度的偏微分 $\frac{\partial \varepsilon(\vec{r})}{\partial i}$ 起着主导作用。这可以直接从扫描隧道显微镜图像获得。

形状各向因子张量可以写成：

$$N_{ij} = \frac{1}{4\pi d} \int_S \frac{d^2\vec{r}}{|\vec{r}|} g_{ij}(\vec{r}) \quad (4.4.2)$$

其中 d 是薄膜厚度。

形状各向异性可以写为：

$$K_{shape} = \frac{1}{2} \mu_0 M_s^2 (N_{xx} - N_{yy}) \quad (4.4.3)$$

其中 $N_{xx}-N_{yy}$ 是退磁因子。

以扫描隧道显微镜图像的中心为参考点，逐个计算图像中每一点的关联函数 $g_{ij}(\vec{r})$ ，则可得到 $g_{ij}(\vec{r})$ 的空间分布。图 4.4.1 (a) 是 60° 斜入射制备 Co (111) 薄膜的 $g_{ij}(\vec{r})$ 空间分布，下面则是对应的扫描隧道显微镜图。图 4.4.1 (b) 是 $g_{ij}(\vec{r})$ 在 X-Y 平面的投影。其中，我们可以看到明显的条纹状结构。这意味着 Co 薄膜的单轴磁各向异性是沿着条纹方向的。这与我们的磁光克尔测量结果一致。通过上面的公式(4.4.2)和(4.4.3)我们分别可以计算相应的形状各向因子和形状各向异性性能： $N_{xx}=0.1195$, $N_{yy}=0.2279$; $K_{shape}=1.1 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ 。图 4.4.1 (c) 和 4.4.1 (d) 是垂直入射样品的 $g_{ij}(\vec{r})$ 空间分布和 X-Y 面投影。其中并没有条纹状结构。这表明对

垂直样品而言, 形貌并没有引起各向异性, 而是各向同性的。相应的退磁因子和各向异性能为: $N_{xx}=0.0109$, $N_{yy}=0.0253$ 和 $K_{\text{shape}}=1.5\times 10^4 \text{erg/cm}^3$ 。垂直样品的 K_{shape} 要比 60° 斜入射制备样品的 K_{shape} 小一个数量级。且通过表面形貌计算而得的 K_{shape} ($1.1\times 10^5 \text{erg/cm}^3$) 和分析磁滞回线而得的 K_u ($1.7\times 10^5 \text{erg/cm}^3$) 一致。这说明单轴各向异性来源于样品表面自旋间的偶极相互作用。

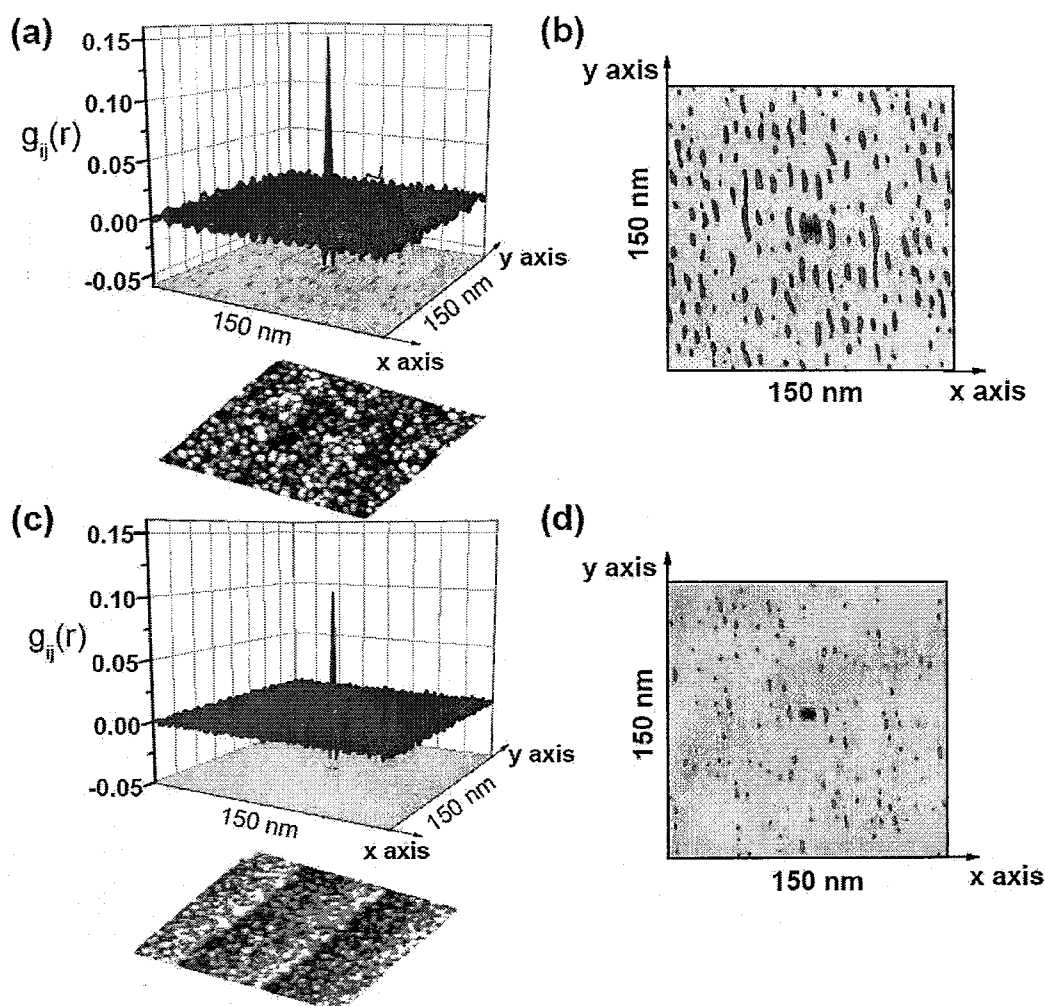


图 4.4.1 (a) 60° 斜入射制备 Co (111) 薄膜的 $g_{ij}(\vec{r})$ 空间分布和对应的扫描隧道显微镜图像。(b) 图(a)中 $g_{ij}(\vec{r})$ 在 X-Y 面内的投影。(c) 垂直入射制备 Co (111) 薄膜的 $g_{ij}(\vec{r})$ 空间分布和对应的扫描隧道显微镜图像。(d) 图(c)中 $g_{ij}(\vec{r})$ 在 X-Y 面内的投影。

4.5 结论

我们用斜入射的方式在 Si(111)衬底上制备了 Co(111)薄膜。其中 Co 的晶粒

由于 steering 效应在垂直于入射面的方向拉长形成条纹状结构。我们利用面内转角的磁光克尔效应和一致转动模型研究了薄膜的反磁化行为。并通过自关联函数得出，体系中单轴磁各向异性来源于样品表面自旋间的偶极相互作用。

4.6 正负两方向 Co(111)薄膜的斜入射制备

如图 4.6.1, 我们在超高真空下, 以 $\pm 60^\circ$ 的倾角在 Si(111)衬底上斜入射生长 Co(111)薄膜。沉积速率为 4 埃每分钟。在用扫描隧道显微镜对样品表面形貌进行表征后, 我们将 25 埃厚的 NaCl 盖在样品表面以防止氧化并做面内转角磁光效应的测量。

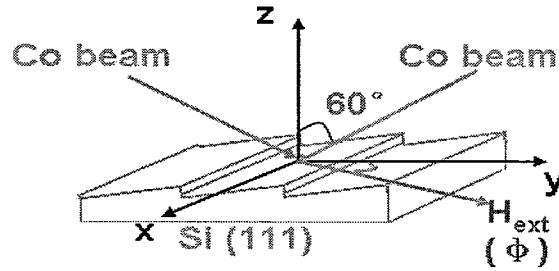


图 4.6.1 以 $\pm 60^\circ$ 倾角生长 Co(111)薄膜的构型图。

4.7 正负两方向 Co(111)薄膜形貌与磁性表征和分析

我们分别用扫描隧道显微镜, 面内转角的磁光克尔磁力计对两个样品进行形貌和磁性的表征, 如图 4.7.1。我们可以看到在形貌上, -60° 倾角生长的颗粒要比

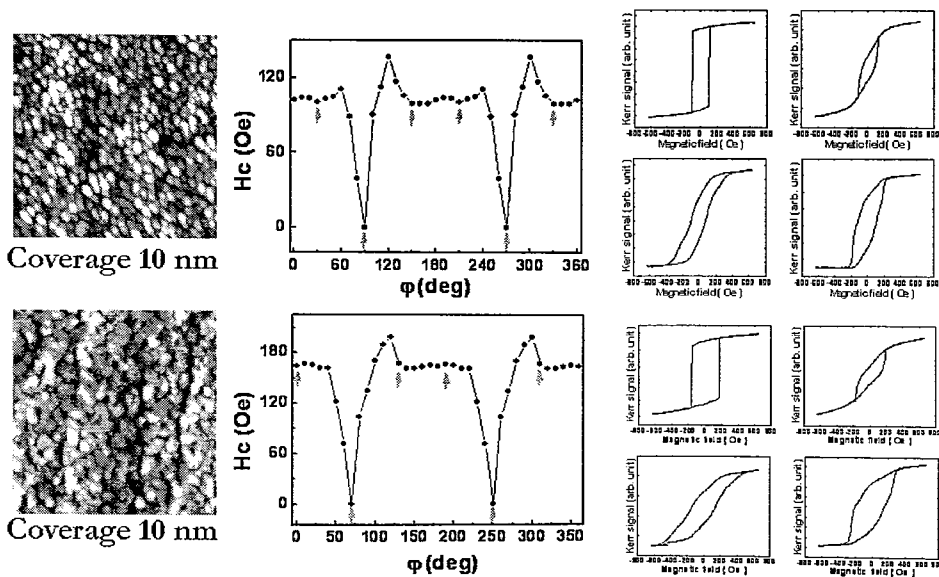


图 4.7.1 $\pm 60^\circ$ 倾角制备的 Co(111)薄膜形貌与磁性的表征。

+60°的大。而在磁性上,它们具有相同的磁各向异性对称性,但矫顽场不同。-60°倾角生长的样品矫顽场要更大些,这意味着在-60°倾角生长样品中单轴磁各向异性更强。

同样地,我们利用模拟磁滞回线和计算表面自关联函数的方法对±60°两个角度生长样品的形貌和磁性数据进行分析,如图 4.7.2。

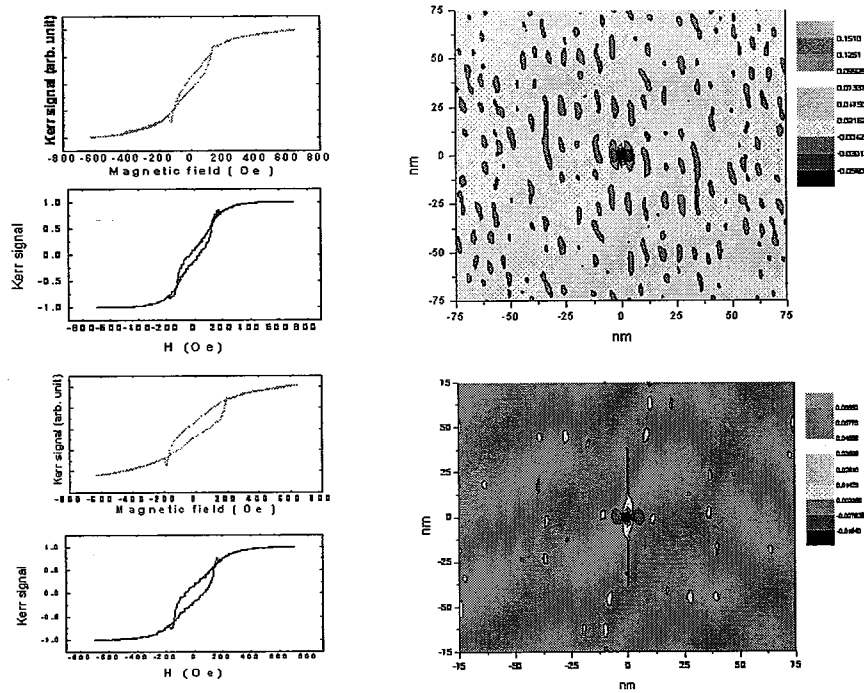


图 4.7.2 ±60°倾斜生长 Co(111)薄膜的磁性形貌分析。

我们可以得到对于+60°样品,单轴磁各向异性约为 $K_u=1.7 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$;而对于-60°样品,单轴磁各向异性约为 $K_u=1.9 \times 10^5 \text{ erg/cm}^3$ 。这与 Jikeun Seo 等人的理论计算结果相符。¹⁶ 这种正负角度对斜入射影响的不同来源于台阶的“shadowing”效应。

4.8 结论

我们在 Si (111) 衬底上用±60°的倾角斜入射生长 Co(111)薄膜。在扫描隧道显微镜和面内转角克尔磁力计的表征下我们研究了样品的形貌和反磁化过程。更进一步地,我们用一致转动模型和自关联函数计算了由斜入射导致的单轴磁各向异性,发现在台阶 shadowing 效应影响下,台阶对单轴磁各向异性有增强作用。

4.9 参考文献

- ¹ Q. F. Zhan, C. V. Haesendonck, S. Vandezande and Kristiaan Temst, Appl. Phys. Lett. **94**, 042504 (2009)
- ² M.T. Umlor, Appl. Phys. Lett. **87**, 082505 (2005)
- ³ S.V. Dijken, L.C. Jorritsman, and B. Poelsema, Phys. Rev. Lett. **82**, 4038 (1999)
- ⁴ J. Seo, H. Y. Kim, and J. S. Kim, Phys. Rev. B **71**, 075414 (2005)
- ⁵ S.V. Dijken, G.D. Santo, and B. Poelsema, Phys. Rev. B **63**, 104431 (2001)
- ⁶ J.L. Bubendorff, S. Zabrocki, G. Garreau, S. Hajjar, R. Jaafar, D. Berling, A. Mehdaoui, C. Pirri and G. Gewinner, Europhys. Lett. **75**, 119 (2006)
- ⁷ Q.F. Zhan, S. Vandezande, C. V. Haesendonck and Kristiaan Temst, Appl. Phys. Lett. **91**, 122510 (2007)
- ⁸ H.W. Zhao, Y.Z. Wu, C. Won, and Z.Q. Qiu, J. Appl. Phys. **95**, 7300 (2004)
- ⁹ J.H. Wolfe, R.K. Kawakami, W.L. Ling, Z.Q. Qiu, R. Arias, and D.L. Mills, J. Magn. Mater. **232**, 36 (2001)
- ¹⁰ R.K. Kawakami, M.O. Bowen, H.J. Choi, E.J. Escorcia-Aparicio, and Z.Q. Qiu, Phys. Rev. B **58**, R5924 (1998)
- ¹¹ R.K. Kawakami, E.J. Escorcia-Aparicio, and Z.Q. Qiu, Phys. Rev. Lett. **77**, 2570 (1996)
- ¹² R. Gieniusz, A. Stupakiewicz, O. Liedke, A. Maziewski, P. Gogol, and P. Beauvillain, J. Magn. Mater. **272**, e911 (2004)
- ¹³ J.S. Tsay, T.Y. Fu, M.H. Lin, C.S. Yang, and Y.D. Yao, Appl. Phys. Lett. **88**, 102506 (2006)

- ¹⁴ M.C. Santos, J. Geshev, J. E. Schmidt, S. R. Teixeira and L. G. Pereira, Phys. Rev. B **61**, 1311 (2000)
- ¹⁵ A. Stupakiewicz, A. Kirilyuk, A. Fleurence, R. Gieniusz, T. Maroutian, P. Beauvillain, A. Maziewski, and Th. Rasing, Phys. Rev. B **80**, 094423 (2009)
- ¹⁶ J. Seo, H. Y. Kim, and J. S. Kim, Phys. Rev. B **71**, 075414 (2005).

4.10 附录

自关联函数计算程序

1. 一致转动模型计算磁滞回线程序

```

DOUBLE PRECISION K1,K2,AF1,AF2,KU,MS,H,DELTA E,MSTEP
DOUBLE PRECISION E1,E2,RAN2,AAF1,AAF2,BT1,BT2,Mx,Mz,N1,N2
INTEGER HSTEP,IDUM
PARAMETER(PI=3.14159265358979D+0)
OPEN(15,file='CoSi.dat',status='unknown')
IDUM=-91819
MSTEP=10000
MS=1430
AF1=PI/2.0
AF2=7*PI/4.0
H=0.0
K1=-1.4D+6
K2=0.72D+6
KU=1.7D+5
N1=54.74*PI/180.0
N2=45*PI/180.0
WRITE(*,*)'PLEASE INPUT BT1,BT2'
READ(*,*)BT1,BT2
BT1=BT1*PI/180.0
BT2=BT2*PI/180.0
DO 2 HSTEP=1,1000
M=0.0
DO 1 K=1,MSTEP
AAF1=AF1+(2.0*RAN2(IDUM)-1.0)
AAF2=AF2+(2.0*RAN2(IDUM)-1.0)

E1=K1*((SIN(AF1)**2*SIN(AF2)*COS(AF2))**2

```

```

+(SIN(AF1)*COS(AF1)*SIN(AF2))**2+(SIN(AF1)*COS(AF1)*COS(AF2))**2)
+K2*(SIN(AF1)**2*SIN(AF2)*COS(AF2)*COS(AF1))**2
-KU*(SIN(AF1)*COS(AF2)*SIN(87.55*PI/180)*COS(136.73*PI/180)
+SIN(AF1)*SIN(AF2)*SIN(87.55*PI/180)*SIN(136.73*PI/180)
+COS(AF1)*COS(87.55*PI/180))**2
+2.0*PI*MS**2*(SIN(AF1)*COS(AF2)*SIN(N1)*COS(N2)
+SIN(AF1)*SIN(AF2)*SIN(N1)*SIN(N2)+COS(AF1)*COS(N1))**2
-MS*H*(SIN(AF1)*COS(AF2)*SIN(BT1)*COS(BT2)
+SIN(AF1)*SIN(AF2)*SIN(BT1)*SIN(BT2)+COS(AF1)*COS(BT1))

E2=K1*((SIN(AAF1)**2*SIN(AAF2)*COS(AAF2))**2
+(SIN(AAF1)*COS(AAF1)*SIN(AAF2))**2
+(SIN(AAF1)*COS(AAF1)*COS(AAF2))**2)
+K2*(SIN(AAF1)**2*SIN(AAF2)*COS(AAF2)*COS(AAF1))**2
-KU*(SIN(AAF1)*COS(AAF2)*SIN(87.55*PI/180)*COS(136.73*PI/180)
+SIN(AAF1)*SIN(AAF2)*SIN(87.55*PI/180)*SIN(136.73*PI/180)
+COS(AAF1)*COS(87.55*PI/180))**2
+2.0*PI*MS**2*(SIN(AAF1)*COS(AAF2)*SIN(N1)*COS(N2)
+SIN(AAF1)*SIN(AAF2)*SIN(N1)*SIN(N2)+COS(AAF1)*COS(N1))**2
-MS*H*(SIN(AAF1)*COS(AAF2)*SIN(BT1)*COS(BT2)
+SIN(AAF1)*SIN(AAF2)*SIN(BT1)*SIN(BT2)+COS(AAF1)*COS(BT1))

DELTA E=E2-E1
IF(DELTA E.LT.0.0) THEN
  AF1=AAF1
  AF2=AAF2
ENDIF
IF(K.EQ.MSTEP) THEN
  Mx=SIN(AF1)*COS(AF2)*SIN(BT1)*COS(BT2)
  +SIN(AF1)*SIN(AF2)*SIN(BT1)*SIN(BT2)+COS(AF1)*COS(BT1)
  Mz=SQRT(1-Mx**2)

```

```

PRINT*,H,Mx,Mz
WRITE(15,3) H,Mx,Mz
3      FORMAT(1X,F20.10,F20.10,F20.10)
ENDIF
1      CONTINUE
IF(HSTEP.LE.200) H=H+3.5
IF(HSTEP.GT.200 .AND. HSTEP.LE.600) H=H-3.5
IF(HSTEP.GT.600) H=H+3.5
2      CONTINUE
END

*random number generation*
DOUBLE PRECISION FUNCTION ran2(idum)
INTEGER idum,IM1,IM2,IMM1,IA1,IA2,IQ1,IQ2,IR1,IR2,NTAB,NDIV
DOUBLE PRECISION AM, EPS, RNMX
PARAMETER (IM1=2147483563,IM2=2147483399,AM=1./IM1,IMM1=IM1-1,
IA1=40014,IA2=40692,IQ1=53668,IQ2=52774,IR1=12211,
IR2=3791,NTAB=32,NDIV=1+IMM1/NTAB,EPS=1.2e-7,RNMX=1.-EPS)
INTEGER idum2,jjj,kkk,iv(NTAB),iy
SAVE iv,iy,idum2
DATA idum2/123456789/, iv/NTAB*0/, iy/0/
if(idum.le.0) then
idum=max(idum,1)
idum2=idum
do 100 jjj=NTAB+8,1,-1
kkk=idum/IQ1
idum=IA1*(idum-kkk*IQ1)-kkk*IR1
if(idum.lt.0) then
idum=idum+IM1
endif
if(jjj.le.NTAB) then

```

```

iv(jjj)=idum
endif
100 continue
iy=iv(1)
endif
kkk=idum/IQ1
idum=IA1*(idum-kkk*IQ1)-kkk*IR1
if(idum.lt.0) then
idum=idum+IM1
endif
kkk=idum2/IQ1
idum2=IA2*(idum2-kkk*IQ2)-kkk*IR2
if(idum2.lt.0) then
idum2=idum2+IM2
endif
jjj=1+iy/NDIV
iy=iv(jjj)-idum2
iv(jjj)=idum
if(iy.lt.1) then
iy=iy+IMM1
endif
ran2=min(AM*iy,RNMX)
return
END

```

2. 自关联函数计算程序

```

PARAMETER(N=400,PI=3.14159265358979)
DOUBLE PRECISION H(1:N,1:N), G(1:N,1:N)
DOUBLE PRECISION FF,KS0,KS1,KS2,KS3,DEN,DIS
DOUBLE PRECISION NXX,NYY,NXY

```

```
DOUBLE PRECISION GXX,KXX,GYY,KYY,GXY,KXY
DOUBLE PRECISION WIDF,HEIF,FAC,S
INTEGER P1,P2,K1,K2,M1,M2,L1,L2,Q1,Q2
WIDF=0.5
HEIF=2.7/256.0
FAC=(HEIF/WIDF)**2
S=N*N*WIDF**2
OPEN(15,file='-50min.txt',status='OLD')
OPEN(25,FILE='FT.DAT',STATUS='UNKNOWN')
OPEN(35,FILE='image.DAT',STATUS='UNKNOWN')
OPEN(45,FILE='SELF.DAT',STATUS='UNKNOWN')
DO I=1,N
DO J=1,N
READ(15,*) H(I,401-J)
PRINT *,I,J, H(I,J)
ENDDO
ENDDO
DO I=1,N
DO J=1,N
WRITE(35,50) i,j,H(I,J)
50      FORMAT(1X,I5,I5,F15.5)
ENDDO
ENDDO
NXX=0.0
NYY=0.0
NXY=0.0
DO K1=-N/2,N/2-1
PRINT *,K1
DO K2=-N/2,N/2-1
DIS=K1**2+K2**2
```

```

IF(K1.EQ.0.AND.K2.EQ.0) GOTO 100
GK=0.0
GXX=0.0
GYY=0.0
GXY=0.0
DO I=1,N
DO J=1,N
M1=I+K1
M2=J+K2
IF(M1.GT.400) M1=M1-400
IF(M1.LE.0) M1=M1+400
IF(M2.GT.400) M2=M2-400
IF(M2.LE.0) M2=M2+400
KS0=(H(I+1,J)-H(I,J))/1.0
KS1=(H(M1+1,M2)-H(M1,M2))/1.0
KS2=(H(I,J+1)-H(I,J))/1.0
KS3=(H(M1,M2+1)-H(M1,M2))/1.0
IF(I+1.GT.400) KS0=(H(1,J)-H(I,J))/1.0
IF(J+1.GT.400) KS2=(H(I,1)-H(I,J))/1.0
FF=FAC*(H(I,J)-H(M1,M2))**2/(DIS)
DEN=DSQRT(1.0+FF)
KXX=KS0*KS1*FAC
KYY=KS2*KS3*FAC
KXY=KS0*KS3*FAC
GXX=GXX+KXX/(DEN*S)
GYY=GYY+KYY/(DEN*S)
GXY=GXY+KXY/(DEN*S)
ENDDO
ENDDO
NXX=NXX+GXX/(4*PI*DSQRT(DIS)*WIDF)

```

```

NYY=NYY+GY/(4*PI*DSQRT(DIS)*WIDF)
NXY=NXY+GX/(4*PI*DSQRT(DIS)*WIDF)
WRITE(25,90) K1,K2,GXX
90      FORMAT(1X,I5,I5,F15.5)
100    CONTINUE
ENDDO
ENDDO
PRINT *, 'NXX,NYY,NXY',NXX,NYY,NXY
END
```

第五章 结论

本论文的主要研究工作是调制 Co 低维磁性纳米结构的磁各向异性。我们利用不同的缓冲层在 Si(111)衬底上分别制备了 Co 纳米点，纳米线和薄膜，并利用扫描隧道显微镜，磁力显微镜，磁光克尔效应对低维磁性纳米结构的形貌与磁性作了表征。随后利用 Monte Carlo 模拟与自关联函数的计算方法研究了低维磁性纳米结构的磁化反转行为与单轴磁各向异性。主要结论如下：

1. 利用分子束外延技术在 4° 斜切 Pb/Si(111) 衬底上制备出了准一维 Co 纳米链。随着覆盖度从 1.7 个原子单层厚增加到 6.7 个原子单层厚，原位的扫描隧道显微镜和磁光克尔磁力计表明在沿着纳米链的方向 Co 纳米点发生了融合并增强了纳米链的单轴磁各向异性。用原位的磁力显微镜对 6.7 个原子单层厚的 Co 纳米链进行表征，我们发现其磁畴结构为条纹状且伴随着 Néel 型畴壁。通过对磁畴畴壁的分析，我们计算了 6.7 个原子单层厚的 Co 准一维纳米链的单轴磁各向异性，为 $K_u=6.1 \times 10^4 \text{ J/m}^3$ 。
2. 利用衬底表面台阶的修饰作用，我们在 Pb/Si(111) 衬底上分别制备了准一维 Co 纳米链和二维 Co 纳米点集合。利用原位扫描隧道显微镜和变温磁光克尔磁强计，我们发现台阶不但对 Co 纳米点的排列方式有影响，并且能使 Co 纳米点更加均匀而且增加了体系临界温度 T_C 。我们通过 Monte Carlo 计算表明这种铁磁性耦合的增强来源于台阶上 Co 纳米点的偶极相互作用诱导的单轴磁各向异性。
3. 利用斜入射的方式我们在 Si(111) 衬底上制备出了 Co(111) 薄膜。利用扫描隧道显微镜与面内转角磁光克尔磁强计，我们发现斜入射诱导的单轴磁各向异性垂直于 Co 原子入射面，且伴随着 Co 晶粒的拉长与形成条纹结构分布。我们通过分析 Co(111) 薄膜在难轴附近的反磁化行为，得出诱导的单轴磁各向异性能为 $K_u=1.7 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ 。这与我们利用自关联函数分析薄膜表面形貌得出的值一致 $K_u=1.1 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ 。这说明我们制备的 Co(111) 薄膜的单轴磁各向异性来源于表面自旋间的偶极相互作用。同时，我们还对比了正反两方向斜入射对单轴磁各向异性的影响。发现，在台阶 shadowing 效用的作用下，台阶对负方向斜入射制备的 Co(111) 薄膜单轴磁各向异性有增强作用。