

特约专栏

# 透射电镜差分相位分析技术磁畴研究

汤 进<sup>1</sup>, 吴耀东<sup>1,2</sup>, 熊奕敏<sup>1</sup>, 田明亮<sup>1</sup>, 杜海峰<sup>1</sup>

(1. 中国科学院合肥物质科学研究院 强磁场科学中心 极端条件凝聚态物理安徽省重点实验室, 安徽 合肥 230031)

(2. 合肥师范学院物理与材料工程学院, 安徽 合肥 230061)

**摘 要:** 透射电子显微镜具有高空间磁分辨率和易集成的多场调控等特点, 成为当下纳米尺度下先进磁结构观测的主要手段之一。首先介绍和比较了透射电镜表征的 3 种模式: 洛伦茨模式、电子全息模式和差分相位分析模式, 然后详细综述了差分相位分析技术表征一类中心对称晶体  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  材料中新型磁畴结构的研究进展。在该研究中, 首先结合差分相位分析技术和三维微磁学模拟, 阐释了中心对称材料中复杂“多拓扑态”磁畴起源于磁结构的三维特性, 随后基于该材料温度诱导自旋重取向内禀物性, 在  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  受限纳米盘中, 利用差分相位分析技术发现了一类全新的涡旋状磁结构“靶磁泡”, 研究了其磁场演化行为, 最后提出了斯格明子-磁泡基存储器的概念, 并实现了磁场和电流高度可控斯格明子-磁泡拓扑磁转变。差分相位分析技术揭示的中心对称磁性材料纳米结构中的新颖磁畴及丰富的电流驱动动力学, 有望促进未来基于新型磁畴结构的拓扑相关自旋电子学器件的开发。

**关键词:** 透射电子显微镜; 差分相位分析; 磁畴; 斯格明子-磁泡; 中心对称磁体

**中图分类号:** TH742 **文献标识码:** A **文章编号:** 1674-3962(2021)11-0851-10

## Magnetic Domain Imaging by Differential Phase Contrast Technique of Transmission Electronic Microscopy

TANG Jin<sup>1</sup>, WU Yaodong<sup>1,2</sup>, XIONG Yimin<sup>1</sup>, TIAN Mingliang<sup>1</sup>, DU Haifeng<sup>1</sup>

(1. Anhui Province Key Laboratory of Condensed Matter Physics at Extreme Conditions, High Magnetic Field Laboratory, Hefei Institutes of Physical Science, Chinese Academy of Sciences, Hefei 230031, China)

(2. School of Physics and Materials Engineering, Hefei Normal University, Hefei 230061, China)

**Abstract:** Transmission electronic microscopy (TEM) has become one of the most advanced techniques to observe nanometric-sized magnetic domains, owing to its high spatial magnetic resolution and easy accessibility in integrating multiple physic fields. Here, we compared three techniques of TEM observing magnetic domains: Lorentz-TEM, electronic holography and differential phase contrast scanning TEM (DPC-STEM). Then we reviewed recent advances in magnetic domains imaging of a centrosymmetric magnet  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  by DPC-STEM. We demonstrated physical clarifications to “multiple topological states”, which are attributed to three-dimensional (3D) depth-modulated spin configurations, using DPC-STEM and 3D micromagnetic simulations. We then reported a new class of vortex-like spin configurations named “target bubble” and their field-driven magnetic evolutions in  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  nanodisks. Finally, we proposed a new strategy to design memory named Skyrmion-bubble-based memory, which utilizes Skyrmions and bubbles as binary bits “1” and “0”, respectively. Current-field-controlled topological Skyrmion-bubble transformations have been also achieved. The novel magnetic domains and their intriguing electronic-magnetic properties shed by DPC-STEM are expected to facilitate advances in developing topology-related spintronic devices.

**Key words:** transmission electronic microscopy; differential phase contrast; magnetic domain; Skyrmion-bubble; centrosymmetric uniaxial magnet

收稿日期: 2021-07-14 修回日期: 2021-09-28

基金项目: 国家自然科学基金资助项目(11804343)

第一作者: 汤 进, 男, 1989 年生, 副研究员

通讯作者: 杜海峰, 男, 1979 年生, 研究员, 博士生导师,

Email: duhf@hmf.ac.cn

DOI: 10.7502/j.issn.1674-3962.202107019

## 1 前 言

磁性材料已经被广泛应用于现代生活中, 具有很大的市场价值, 其中一个典型代表是自旋电子学磁功能器件<sup>[1]</sup>。自旋电子学是将电子的两个内禀属性电荷和自旋

相结合的研究学科。以机械硬盘为代表的自旋电子学器件已经取得了较大的商业成功<sup>[2]</sup>。机械硬盘是利用磁化反平行排列的磁畴来表征双数据比特,通过读头的机械转动来实现读写。但是传统机械硬盘受到机械振动和热扰动的影响,其性能已趋于功能极限。为了突破功能极限,科学家们期望通过发现新型磁结构来构建新一代自旋电子学器件。磁斯格明子是新型磁结构的代表<sup>[3-5]</sup>。磁斯格明子是一类涡旋状新型磁结构,具有拓扑非平庸类粒子行为、可调的小尺寸和丰富的电磁相关动力学行为等特点<sup>[6]</sup>。磁斯格明子的关键稳定机制是材料体系中的 Dzyaloshinskii-Moriya (DM) 相互作用<sup>[7]</sup>。根据 DM 相互作用类型,磁斯格明子主要分为 3 种:① 具有体 DM 相互作用的材料,如  $B_{20}$  型 FeGe 和 MnSi 材料中的布洛赫 (Bloch) 型磁斯格明子<sup>[3, 4, 8, 9]</sup> (图 1a);② 具有表面 DM 相互作用的材料,如铁磁/重金属异质结薄膜和  $C_{3v}$  对称晶体  $\text{GaV}_4\text{S}_8$  中的奈尔 (Néel) 型磁斯格明子<sup>[10, 11]</sup>;③ 具有二维各向异性 DM 相互作用的材料,如  $D_{2d}$  晶体  $\text{MnPtPtSn}$  中的反磁斯格明子<sup>[12]</sup>。此外,在传统中心对称单轴铁磁体中,偶极相互作用与单轴磁晶各向异性等的竞争也会产生出一类局域柱状畴磁结构——磁泡,其中类型 I 磁泡的闭合畴壁贡献了与 Bloch 型手性斯格明子相同的整数拓扑荷,因此其也被称为磁泡斯格明子 (图 1b)<sup>[13-22]</sup>。近年来,这些具有丰富磁学、电学性质的磁斯格明子可以作为信息载体,用来构建存储器、逻辑器件、神经网络器件和互联信息器件等<sup>[23-25]</sup>,形成了一类新兴的自旋电子学亚类学科——拓扑自旋电子学<sup>[26-28]</sup>。

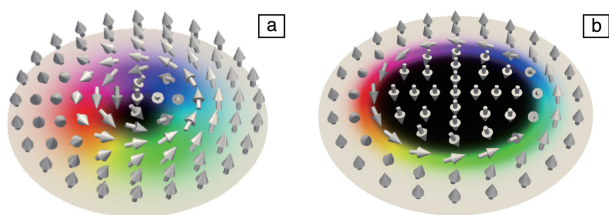


图 1 非中心对称螺磁体中布洛赫型磁斯格明子 (a)<sup>[3, 4, 8, 9]</sup>; 中心对称单轴铁磁体中的磁泡斯格明子 (b)<sup>[13-22]</sup>

Fig. 1 Bloch-type Skyrmion in a noncentrosymmetric screw magnet (a)<sup>[3, 4, 8, 9]</sup>; Skyrmion bubble in a centrosymmetric uniaxial ferromagnet (b)<sup>[13-22]</sup>

拓扑自旋电子学研究领域关键的科学问题之一是磁斯格明子的电调控<sup>[23]</sup>。而未来自旋电子学器件高存储密度要求磁信息载体的尺寸为纳米尺度,因此需要探索纳米尺度下的磁斯格明子的相关性能,这要求磁表征技术的高空间分辨率。现代磁学的发展也得益于先进磁表征技术的发展。依据自旋与电流、电子、光等的相互作用,科学家们已经开发出了多种先进的磁表征技术<sup>[26]</sup>,如

表 1 所示<sup>[11, 23, 29-31]</sup>。其中,透射电镜不仅能够观测纳米尺度范围内的磁畴,也易于集成多物理场条件,对样品和外界环境要求相对较低<sup>[32]</sup>。因此,透射电镜成为了近年来高分辨率磁表征的重要技术手段,极大地推动了磁斯格明子相关的研究进展,例如磁斯格明子的首次实空间观测<sup>[4]</sup>、磁浮子的首次实空间观测<sup>[33]</sup>、反斯格明子的首次实空间观测等,都是利用透射电镜技术实现的<sup>[12]</sup>。

本文将首先介绍基于透射电镜的 3 种基本磁表征手段,并随后着重综述透射电镜差分相位分析技术表征一类中心对称晶体中的新型磁畴结构的研究进展。

表 1 磁表征技术:洛伦茨透射电子显微镜、磁力显微镜、自旋极化扫描隧道显微镜、X 射线显微镜、表面磁光克尔效应、X-射线磁圆二色仪-光发射电子显微镜<sup>[11, 23, 29-31]</sup>

Table 1 Magnetic imaging techniques: Lorentz-transmission electronic microscopy (Lorentz-TEM), magnetic force microscopy (MFM), spin-polarized scanning tunneling microscopy (spin-polarized STM), X-ray holography (X-ray holography), surface magneto-optical Kerr effect (SMOKE), X-ray magnetic circular dichroism-photoemission electron microscopy (XMCD-PEEM)<sup>[11, 23, 29-31]</sup>

Techniques	Resolution		Field/T	Temperature /K
	Spatial/nm	Time		
Lorentz-TEM	~2	ms	-2~2	5~1300
MFM	~10	s	-16~16	2~400
Spin-polarized STM	~0.5	s	-9~9	<10
X-ray holography	~20	ns	—	—
SMOKE	~300	ns	-9~9	2~800
XMCD-PEEM	~25	s	0	2~300

## 2 透射电镜磁表征技术

透射电镜磁表征技术是基于电子在磁场运动过程中受到的洛伦茨力,因此磁表征的透射电镜也被称作洛伦茨透射电镜<sup>[4, 32]</sup>。透射电镜电子束的传输方向为垂直于样品表面,由于电子的轨迹只受到与其运动方向垂直的磁场的影响,因此洛伦茨透射电镜只能表征面内磁矩。此外,透射模式也表明透射电镜探测到的是样品厚度方向积分的磁矩。依据电子受到洛伦茨力发生偏转的探测方式,透射电镜磁表征技术可以分成 3 种 (图 2): 欠焦/过焦情况下的菲涅尔磁衬度,即传统洛伦茨技术<sup>[4]</sup>;通过分辨样品和全息丝的干涉条纹宽度的变化来获得磁相位,即电子全息技术<sup>[34-37]</sup>;扫描聚焦电子束通过样品后,4 个分立探头探测的电子束强度的差异等价于磁相位衬度差分,即差分相位分析扫描透射电镜技术<sup>[13, 15, 16, 38-40]</sup>。

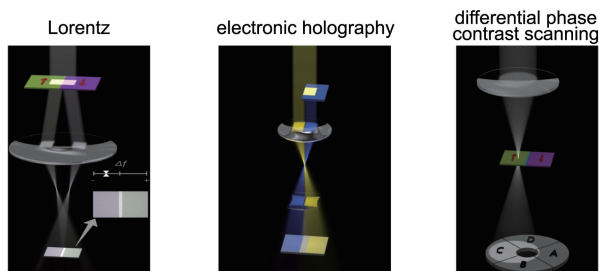


图 2 透射电镜 3 种磁表征技术示意图: 洛伦茨<sup>[4]</sup>、电子全息<sup>[34-37]</sup>和差分相位分析<sup>[13, 15, 16, 38-40]</sup>

Fig. 2 Schematic designs of three magnetic imaging techniques of transmission electron microscopy: Lorentz<sup>[4]</sup>, electronic holography<sup>[34-37]</sup> and differential phase contrast scanning<sup>[13, 15, 16, 38-40]</sup>

根据不同透射电镜磁成像技术的特点, 3 种方式各具特色, 但也存在着缺点。传统离焦下表征的洛伦茨模式是最早也是现在最流行的透射电镜磁成像表征方式<sup>[20]</sup>, 具有易于操作、比较直观反映磁结构和成像速度快等优点, 但是这种方法也有以下缺点: ① 由于离焦状态下样品边缘具有菲涅尔强衍射, 使得该方法不适用于太小受限结构的磁分辨<sup>[41]</sup>; ② 作为一种间接获得磁相位的方法, 传统输运强度分析(transport of intensity equation, TIE)技术解析磁结构的过程中可能会引入一些人为的磁信息, 造成严重的偏差<sup>[42]</sup>。电子全息技术是一种正焦模式下直接表征磁相位的方法, 能够非常准确和定量地解析磁结构<sup>[34-37]</sup>, 但是这种方法也有以下缺点: ① 电子全息模式观测到的是干涉条纹<sup>[34]</sup>, 不能直观反映磁结构, 不适用于一些快速磁结构动力学响应的表征; ② 由于干涉所需的参考光束需要经过真空, 因此电子全息只能表征靠近样品边缘的磁结构, 有效观测尺寸大约为  $1 \mu\text{m}$ <sup>[37]</sup>。差分相位分析扫描透射模式也是一种正焦状态下直接探测磁矩的方式(图 3), 具有磁成像精度高、范围广等优点, 特别是能够精确表征样品缺陷处的磁结构信息<sup>[13, 15, 16, 38-40]</sup>, 但是该方法也有以下缺点: ① 扫描聚焦模式成像较慢(数十秒以上), 不适用于实时磁结构动力学表征; ② 扫描聚焦模式下会对样品造成损伤。从以上讨论可以得出, 相比于传统洛伦茨模式, 电子全息和差分相位分析都是更为精确的磁相位表征技术, 但是电子全息只适用于一些小样品的表征, 而差分相位分析技术并不受到样品尺寸的限制, 可以表征任意尺寸磁样品的磁结构。

本文将着重介绍差分相位分析方法在偶极磁斯格明子材料的新型磁结构表征中的近期科研进展。

### 3 差分相位分析磁畴表征

#### 3.1 三维磁斯格明子与磁泡

由于单轴磁晶各向异性、偶极-偶极相互作用、交换

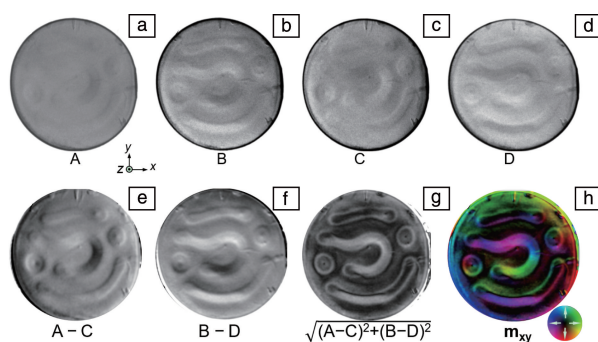


图 3 差分相位分析方法分析磁畴的过程<sup>[13, 15, 16, 38-40]</sup>: (a~d) 扫描透射模式下, 4 个分立的差分衬度探头 A、B、C 和 D 得到聚焦电子束穿过一个直径为 1550 nm 的  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米盘的衬度图像; (e) 探头 A 和 C 的差分衬度, 与样品中沿着  $y$  轴的磁场强度成正比; (f) 探头 B 与 D 的差分衬度, 与样品中沿着  $x$  轴的磁场强度成正比; (g) 通过  $\sqrt{(A-C)^2 + (B-D)^2}$  计算出的整个面内磁场强度分布图; (h) 最终重构的面内场强分布图

Fig. 3 Analysis procedure for determining the magnetic structure in a 1550 nm  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  disc by using differential phase contrast scanning TEM<sup>[13, 15, 16, 38-40]</sup>: (a~d) differential phase contrast component images from the four segments of the detectors A, B, C and D, respectively; (e) differential phase contrast component obtained by subtracting C from A ( $A-C$ ), which is proportional to the field component along the  $y$  axis; (f) differential phase contrast component obtained by subtracting D from B ( $B-D$ ), which is proportional to the field component along the  $x$  axis; (g) total in-plane field strength obtained from  $\sqrt{(A-C)^2 + (B-D)^2}$ ; (h) in-plane magnetization mapping

相互作用和外磁场赛曼能的竞争, 中心对称单轴磁性材料能够形成局域的柱状磁畴结构, 该结构被称为磁泡(图 1b)<sup>[20, 43, 44]</sup>。虽然磁泡在 20 世纪 70~90 年代得到了大量的研究, 并构建了磁泡存储器等功能性器件<sup>[45]</sup>, 但由于该器件的大尺寸(微米尺度)不适用于紧凑的器件设计而逐渐被淘汰<sup>[43]</sup>。最近, 新型涡旋局域磁结构斯格明子的发现也重新引起了研究人员对传统磁泡的广泛兴趣<sup>[21, 22, 31, 42, 46-54]</sup>。

依据柱状磁畴的畴壁磁化分布, 磁泡可分为类型 I 拓扑非平庸磁泡和类型 II 拓扑平庸磁泡<sup>[21]</sup>。其中具有闭合畴壁的类型 I 磁泡具有与磁斯格明子相同的拓扑性, 也被称为斯格明子磁泡<sup>[31, 51-54]</sup>。特别地, 最近的研究发现了直径小于 50 nm 的斯格明子磁泡和自旋转移力矩驱动磁泡动力学行为<sup>[17, 31, 54]</sup>。这些研究成果也预示着传统磁泡可以被用来构建新型高性能自旋电子学器件<sup>[18]</sup>。为简便表述, 后文将中心对称晶体中的类型 I 斯格明子磁泡和类型 II 磁泡分别称为磁斯格明子和磁泡。



虽然中心对称晶体中的磁斯格明子和磁泡结构已经得到了很好的理论解析<sup>[55]</sup>,但在近期采用透射电镜研究磁泡材料磁畴工作中发现了复杂的“多拓扑态”磁结构<sup>[22, 47]</sup>。这些复杂磁结构与传统磁斯格明子和磁泡结构有很大差异,同时一直没有得到很好的物理解释,限制了磁泡材料的未来应用性。

分析可知,这些复杂“多拓扑态”磁结构均是通过透射电镜洛伦茨模式得到,且解析的磁结构被认为是二维的。传统洛伦茨模式表征磁结构是通过 TIE 技术解析过焦、正焦和欠焦菲涅尔磁衬度得到的。而为了得到更清晰的磁结构, TIE 技术通常需要设定滤波参数来过滤噪音和非磁背景,但滤波也可能会得到偏离真实情况的磁结构<sup>[42]</sup>;同时 TIE 技术也不适用于解析传统均匀铁磁磁畴<sup>[14, 16]</sup>。透射电镜技术得到的是沿着样品厚度方向的积分磁化分布,但以往的研究认为磁结构在厚度方向为磁化均匀的<sup>[22, 47]</sup>。

作者团队<sup>[16]</sup>采用透射电镜差分相位分析-扫描透射模式和三维微磁学计算模拟相结合的方式,系统地研究了 Kagome 中心对称晶体材料  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  中的复杂“多拓扑态”——多环和  $\Phi$  形-圆弧形磁涡旋结构,如图 4 所示。 $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  是一类室温单轴铁磁体<sup>[56-61]</sup>,单轴磁化易轴在室温下沿着  $c$  轴。同时,  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  为低品质因子材料,即单轴磁晶各向异性  $K_u$  小于  $\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2$ ,  $\mu_0$  和  $M_s$  分别为真空磁导率和饱和磁化率。通过三维微磁学计算模拟发现<sup>[62]</sup>,对于低品质因子的  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  薄片样品,强的偶极-偶极相互作用会导致磁斯格明子和磁泡沿着厚度方向发生连续自旋扭转,形成界面涡旋状磁结构。因此,上述模拟结果表明,  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米薄片样品的磁斯格明子和磁泡沿着厚度方向不是均匀磁化的(图 4e 和 4f),因此在透射电镜解析的磁结构中必须考虑厚度方向的积分磁化分布。同时,利用差分相位分析进一步得到了  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米薄片样品的多环状和圆弧形涡旋磁结构(图 4a 和 4b),发现其与传统洛伦茨模式解析磁结构有很大差异,但与三维微磁模拟的磁斯格明子和磁泡的积分磁化分布高度一致(图 4c 和 4d)。这些研究结果表明,“多拓扑态”起源于传统中心对称材料中的三维磁斯格明子和磁泡结构,磁结构的复杂性是由于非均匀三维磁结构投射到二维平面后的积分相加所导致的。

### 3.2 靶磁泡的发现及其磁场驱动演化过程

$\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  的磁晶各向异性具有强温度依赖性,单轴磁各向异性常数  $K_u$  随着温度降低而减小,因此易磁化方向会由高温时的  $c$  轴转变到低温时的  $ab$  易磁化面,即温度诱导自旋重取向<sup>[61]</sup>。本课题组<sup>[13]</sup>制备了不同尺寸受限  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米盘,利用差分相位分析研究了其零磁场下的

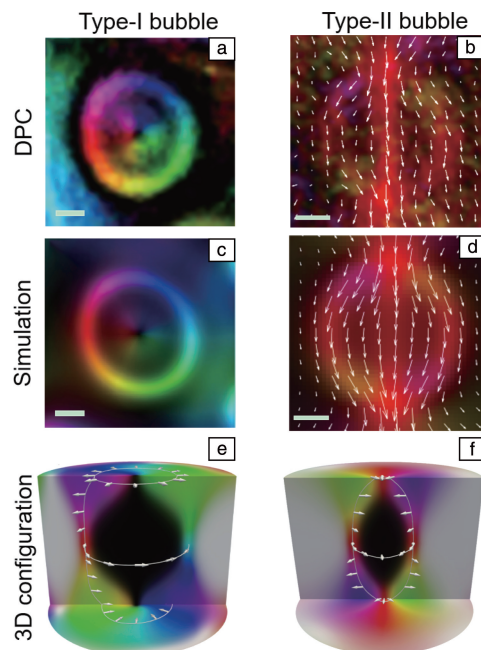


图 4  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米结构中类型 I 斯格明子磁泡和类型 II 拓扑平庸磁泡的三维磁结构<sup>[16]</sup>: (a, b) 差分相位分析方法得到的面内自旋分布; (c, d) 三维微磁模拟得到的平均面内磁化分布; (e, f) 三维微磁模拟得到的厚度调制磁结构

Fig. 4 3D spin texture of type-I Skymion bubble and type-II topologically trivial bubble in the  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  nanostructure<sup>[16]</sup>: (a, b) in-plane magnetization mappings of two types of bubbles obtained from differential phase contrast technique; (c, d) average in-plane magnetization mappings of two types by 3D micromagnetic simulation; (e, f) depth-modulated 3D magnetic bubbles by 3D micromagnetic simulation

磁畴演化行为,如图 5 所示。由于在传统洛伦茨模式离焦磁表征模式下,受限小尺寸样品边缘强的菲涅尔衍射条纹给磁结构解析带来极大的干扰,因此正焦模式下工作的差分相位分析技术更适用于精确研究受限体系下的磁畴结构。

不同于在高温 300 K 的条纹畴磁基态(图 5a),在低温 100 K 的易面磁化  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2(001)$  纳米盘中,偶极-偶极相互作用会诱导面内磁矩沿着圆盘边缘排列,形成经典的软磁磁涡旋结构(图 5b)。以软磁磁涡旋为种子磁结构,当升高温度到室温,易面磁纳米盘转变为垂直磁纳米盘,  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2(001)$  纳米盘中会形成多环靶态磁结构,命名其为“靶磁泡”(图 5c)。通过分析靶磁泡的中间层磁化分布,发现其自旋从中心到最外边缘旋转了  $\pi$  的整数( $k$ )倍(图 5d),因此中心对称晶体中的靶磁泡也可以被看作  $k\pi$ -磁斯格明子。这种自旋重取向导致的软磁磁涡旋到靶磁泡的转变可被微磁模拟重复出来(图 5e~5h)。



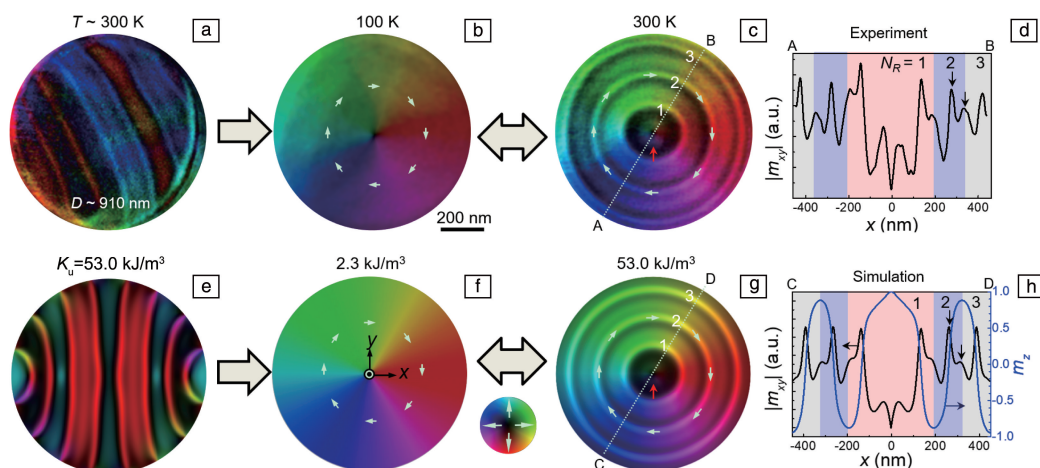


图 5 在  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米盘中通过在零磁场下加热到室温的方式, 利用差分相位分析技术观测到的室温下的条纹畴到低温下的软磁磁涡旋到室温下的靶磁泡 ( $k\pi$ -磁斯格明子) 的转变<sup>[13]</sup>: (a) 300 K 室温条纹畴; (b) 100 K 磁涡旋; (c) 300 K 室温靶磁泡; (d) 沿着图 5c 中 A 到 B 位置连线相关面内磁化强度; (e) 模拟的室温条纹畴; (f) 模拟的 100 K 磁涡旋; (g) 模拟的室温靶磁泡; (h) 模拟的沿着图 5g 中 C 到 D 位置连线相关面内磁化强度

Fig. 5 Transformation from a soft magnetic vortex at 100 K to a target bubble ( $k\pi$ -Skyrmion) at 300 K through zero-field warming in an  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  nanodisk obtained by differential phase contrast<sup>[13]</sup>: (a) experimental stripes at 300 K; (b) soft vortex at 100 K; (c) target bubble at 300 K; (d) position dependent in-plane magnetization amplitude along the line A to B in Fig. 5c; (e~g) simulated stripes with uniaxial magnetic anisotropy  $K_u = 53.0 \text{ kJ/m}^3$ , soft vortex with  $K_u = 2.3 \text{ kJ/m}^3$  and target bubbles with  $K_u = 53.0 \text{ kJ/m}^3$ ; (h) simulated position dependent in-plane magnetization amplitude along the line C to D in Fig. 5g

$k\pi$ -磁斯格明子的拓扑荷为 0 ( $k$  为奇数) 或 1 ( $k$  为偶数)。前期研究表明,  $k\pi$ -磁斯格明子具有  $k$  相关可调自旋波激发和多场调控磁性等特点, 其中  $2\pi$ -磁斯格明子 (也叫做类斯格明子 Skyrmionium) 被提出可以用来构建无垂直漂移赛道存储器 and 斯格明子互联器件等<sup>[63, 64]</sup>。但  $k\pi$ -磁斯格明子的研究多为理论模拟研究, 仅仅在极少数的磁系统中被观察到<sup>[65, 66]</sup>,  $k\pi$ -磁斯格明子 ( $k > 2$ ) 的实验发现尤其充满挑战。

通过以软磁磁涡旋为种子磁结构以及调节  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  (001) 纳米盘的直径, 得到了丰富的零磁场稳定的  $k\pi$ -磁斯格明子 ( $k = 2, 3, 4$  和 5)。与手性磁体中零磁场下两种简并的  $k\pi$ -磁斯格明子相比较, 理论上中心对称材料中的零磁场  $k\pi$ -磁斯格明子有  $2^{k+1}$  种。

此外, 之前的理论研究也预言了磁场诱导的  $k\pi$ -磁斯格明子的新颖磁性<sup>[67-70]</sup>, 但相关的实验研究还很少。因此, 本课题组<sup>[15]</sup>进一步利用差分相位分析研究了  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  (001) 纳米盘中的磁场演化行为, 如图 6 所示。磁场驱动下,  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  (001) 纳米盘  $k\pi$ -磁斯格明子主要呈现出 3 个特点: ① 零磁场下的不规则形状转变为高磁场下的轴对称形状 (图 6a); ② 磁场诱导  $k$  系数的减小; ③  $k\pi$ -磁斯格明子直径随磁场增强而连续减小 (图 6b)。

中心对称  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米盘中的  $k\pi$ -磁斯格明子具有室温和零磁场稳定性、丰富多重简并态以及利用外磁场和

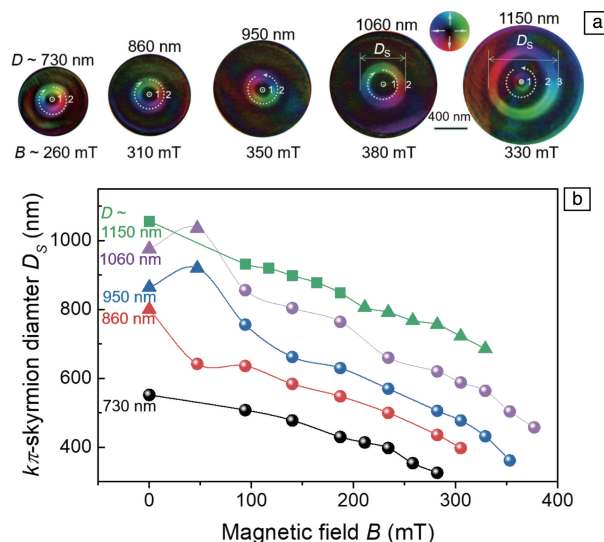


图 6  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米结构中采用差分相位分析技术观测到的磁场诱导的  $k\pi$ -磁斯格明子 (靶磁泡) 的磁演化行为<sup>[15]</sup>: (a) 实验观测的高磁场下稳定的圆形  $k\pi$ -磁斯格明子; (b)  $k\pi$ -磁斯格明子的直径随着磁场强度的变化关系, 图中正方形点、三角形点和圆形点分别代表  $4\pi$ 、 $3\pi$  和  $2\pi$  磁斯格明子

Fig. 6 Field-driven magnetic evolutions of  $k\pi$ -Skyrmion in  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  nanodisks obtained by differential phase contrast<sup>[15]</sup>: (a) round  $k\pi$ -Skyrmions stabilized at high fields; (b) field  $B$  dependent diameter of  $k\pi$ -Skyrmions, the square, triangle, and circle symbols in Fig. 6b denote the parameter  $k$  with values of 4, 3, and 2, respectively

纳米盘直径可实现可调  $k$  参数等特点, 有望进一步被应用于新型磁电子学器件的设计中。

### 3.3 可逆电流调控磁斯格明子-磁泡拓扑磁转换

中心对称  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  材料中有两种局域磁结构: 磁斯格明子和磁泡。传统的磁斯格明子基存储器是将磁斯格明子和铁磁态看作数据比特的“1”和“0”<sup>[29]</sup>。但是由于热扰动和斯格明子间的相互作用<sup>[33, 71]</sup>, 斯格明子的非定向运动会造成数据链的混乱。而为了抑制斯格明子的无序运动, 需要在传统斯格明子基存储器中的每个数据比特位构建人工缺陷, 这无疑会增加器件构建的成本。我们提出采用磁泡替代传统铁磁空隙当作数据比特“0”来构

建磁斯格明子-磁泡存储器, 如图 7a~7d 所示<sup>[18]</sup>。

当磁场完全垂直于  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2(001)$  纳米结构时, 为了使偶极-偶极相互作用能最小化, 柱状畴形成具有闭合磁畴的磁斯格明子稳定相。当磁场不是完全垂直于  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2(001)$  纳米结构而具有大的面内磁场时, 为了使赛曼能最小化, 柱状畴形成具有朝向面内磁场方向磁畴的磁泡稳定相。当磁场的倾斜角度适中时, 磁斯格明子和磁泡是稳定共存, 也是磁斯格明子-磁泡存储器实现的前提。在强受限  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2(001)$  纳米条带中, 通过施加一个  $5^\circ$  倾斜的磁场, 成功实现了磁斯格明子-磁泡单链(图 7e), 这种磁斯格明子-磁泡单链被当作一串数据比特。

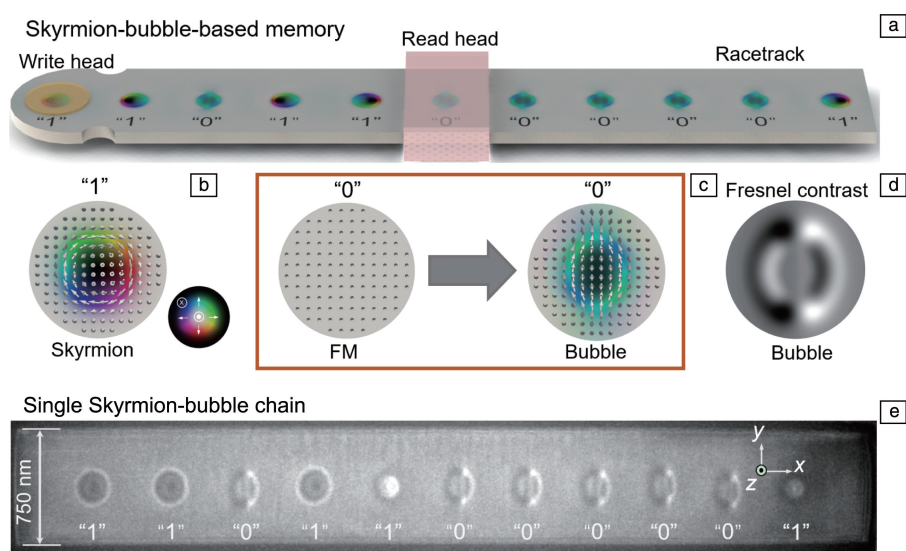


图 7 一种基于磁斯格明子和磁泡的存储器原型的提出<sup>[18]</sup>: (a) 斯格明子-磁泡存储器概念设计图; (b) 代表数据比特“1”的斯格明子磁结构; (c) 用磁泡替代铁磁来代表数据比特“0”; (d) 磁泡的非涅尔磁衬度; (e)  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米条带中实现的磁斯格明子-磁泡单链, 可以用来代表磁斯格明子-磁泡存储器中的一串“11011000001”数据链

Fig. 7 Propose of a magnetic memory based on Skyrmions and bubbles<sup>[18]</sup>: (a) schematic design of Skyrmion-bubble-based magnetic memory; (b) a Skyrmion representing the data bit “1”; (c) a bubble replacing ferromagnet to represent the data bit “0”; (d) Fresnel contrast of the bubble; (e) experimental realization of a single Skyrmion-bubble chain to represent the data bit “11011000001” in a  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  nanostripe

磁斯格明子和磁泡的拓扑荷分别为 1 和 0, 具有截然不同的拓扑相关物性, 如斯格明子霍尔效应和拓扑霍尔效应<sup>[72-75]</sup>。可控的磁斯格明子和磁泡的产生及其相互转换能够促进拓扑相关的磁电子学器件的开发。依据磁斯格明子和磁泡的产生机制, 通过倾斜外磁场能够有效调控磁斯格明子和磁泡的产生和转换<sup>[21, 50]</sup>。本课题组<sup>[19]</sup>研究了  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米盘中磁斯格明子和磁泡的稳定性以及他们之间磁场诱导的拓扑磁转换, 发现磁盘中磁斯格明子和磁泡的数量不仅与纳米盘直径有关, 还与磁场角度相关。当纳米盘直径减小到  $\sim 540$  nm 时, 该受限结构中最多只能稳定一个磁斯格明子或磁泡。通过固定外磁场

强度同时调节其相对于磁盘法向的角度, 成功实现了单斯格明子-单磁泡间可控的拓扑磁转换, 如图 8 所示。

两类磁状态间的拓扑磁转变可以用于器件的写入和删除等功能, 但磁场方法不兼容于当代和未来的电子学器件设计和应用, 而电学调控磁斯格明子-磁泡的拓扑转变的研究仍有待发掘。因此, 本课题组进一步探索了电流可控磁斯格明子-磁泡相互转变的可能性<sup>[17]</sup>。

在  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2(001)$  纳米薄片, 磁场小角度倾斜于薄片法向时, 磁斯格明子和磁泡都是稳定的磁状态。当设置磁斯格明子晶格为初始磁状态, 施加高密度纳秒电流脉冲后, 会发生磁斯格明子到磁泡的转变; 当设置磁斯格

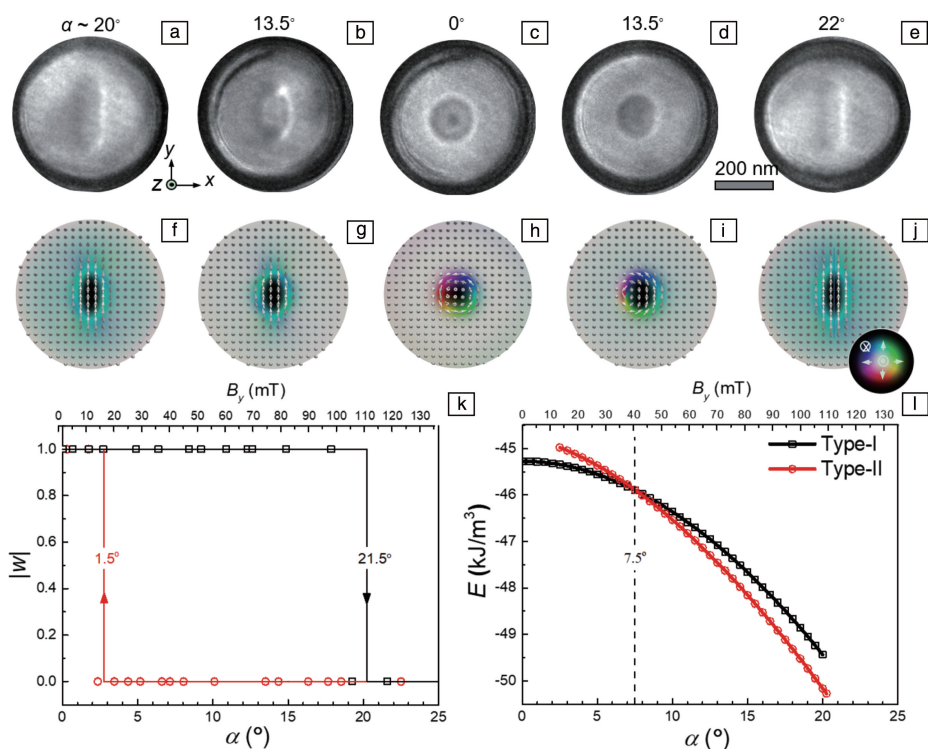


图 8  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米结构中磁场诱导的斯格明子-磁泡转换<sup>[19]</sup>: (a~e) 洛伦茨模式观测的斯格明子-磁泡转换, (f~j) 对应的微磁模拟的斯格明子-磁泡转变, (k) 斯格明子-磁泡转变过程中的拓扑数的变化, (l) 斯格明子-磁泡转变过程中的总自由能密度随磁场角度的变化

Fig. 8 Field-induced topological Skymion-bubble transformations in  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  nanodisks<sup>[19]</sup>: (a~e) Skymion-bubble transformations obtained by Lorentz-TEM, (f~j) corresponding Skymion-bubble transformations obtained by micromagnetic simulation, (k) winding number as a function of tilted field angle, (l) total free energy density as a function of tilted field angle

明子晶格为初始磁状态, 施加低密度纳秒电流脉冲后, 会发生磁泡到磁斯格明子的转变。重要的是, 通过调控电流幅度, 这种磁斯格明子-磁泡相互转变是完全可逆的, 如图 9 所示<sup>[17]</sup>。利用微磁学计算模拟发现, 电流可控磁斯格明子-磁泡相互转变可被归因于自旋转移力矩和焦耳热效应的综合作用。当施加高密度电流脉冲时, 电流的焦耳热会导致样品升温而发生热退磁, 而在两个电流脉冲的间隙, 样品又会降温而发生磁恢复过程。在热退磁的过程中, 样品的饱和磁场强度会降低, 而外加磁场强度固定不变, 因此会发生磁斯格明子到铁磁态的转变。由于磁场是倾斜于样品垂直方向的, 因此铁磁态是具有一定面内分量的倾斜铁磁态, 面内磁化分量平行于面内磁场分量。而在降温的磁化恢复过程中, 由于磁泡的畴壁磁化是与倾斜磁化背景一致, 因此磁泡更优先于磁斯格明子从倾斜磁化背景中产生。特别地, 即使磁泡的总自由能能量高于磁斯格明子, 这种磁斯格明子到倾斜铁磁到磁泡转变的过程也能够发生。而低密度脉冲电流诱导的磁泡到磁斯格明子的产生归因于自旋转移力矩效应。磁泡的能量要高于磁斯格明子, 自旋转移力矩相

当于一个外界激发, 能够使高能亚稳磁泡产生变形而处于一个非稳定状态, 从而能够越过能量势垒转变到低能磁斯格明子稳定态。

此外, 在  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2(001)$  纳米薄片, 在较低外磁场下, 磁泡会转变为条纹磁畴。之前的研究中已经能够实现电流控制条纹磁畴到磁斯格明子的转变, 但其逆过程磁斯格明子到条纹磁畴的转变还比较少见<sup>[31, 76-82]</sup>。通过高低纳秒脉冲电流切换, 同样能够实现磁斯格明子-条纹磁畴的可逆和可重复的拓扑磁转换。

## 4 结 语

本文阐述了将差分相位分析技术应用到偶极磁斯格明子/磁泡材料  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  中的新型磁结构观测和电驱动拓扑磁转变动力学研究中的进展, 研究结果表明, 差分相位技术推动了三维磁结构、靶磁泡/ $k\pi$ -磁斯格明子等新型磁结构的精确表征, 澄清了中心对称晶体中复杂磁结构的起源, 并为后续的新型磁结构相关自旋电子学的应用奠定了重要基础。本课题组也提出了磁斯格明子-磁泡存储器的概念设计, 并在实验室实现了单链磁斯格明子-



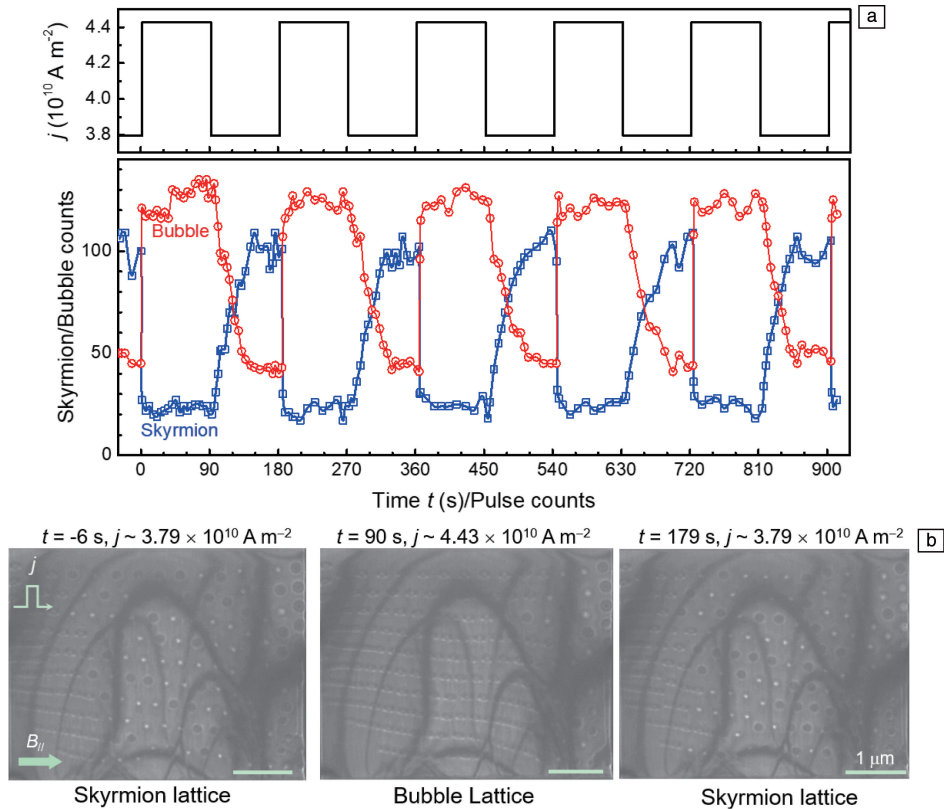


图 9  $\text{Fe}_3\text{Sn}_2$  纳米结构中通过切换电流密度大小实现可控的磁斯格明子-磁泡转换<sup>[17]</sup>: (a) 时间相关的电流密度和对应的磁斯格明子和磁泡的数目, (b) 磁斯格明子-磁泡转变过程中的欠焦洛伦茨磁衬度图

Fig. 9 Current-controlled Skyrmion-bubble transformations at two discrete current densities<sup>[17]</sup>: (a) current density and corresponding counts of Skyrmions and bubbles as a function of time, (b) snapshots of representative defocused Lorentz magnetic contrasts for the Skyrmion-bubble transformations

磁泡混合态, 进一步通过磁场调控实现了单个磁斯格明子-磁泡的可控拓扑磁转变, 更重要的是, 还通过电流调控实现了磁斯格明子-磁泡晶格之间可控的磁转变。

透射电镜表征技术未来发展的两个方向是磁结构的三维重构和原子尺度的高空间磁分辨<sup>[83-87]</sup>, 但是同样也存在巨大的技术挑战。譬如, 在外磁场存在的条件下, 磁结构的三维重构如何实现; 原子尺度的磁分辨也需要极为灵敏的磁响应。对这些困难的克服有望进一步推动高密度自旋电子学磁功能器件的开发, 因此上述问题值得磁学和电镜领域科学家们的持续探索。

#### 参考文献 References

- [1] ŽUTIĆ I, FABIAN J, DAS S S. Reviews of Modern Physics [J], 2004, 76(2): 323-410.
- [2] GOUREVITCH P, BOHN R, MCKENDRICK D. World Development [J], 2000, 28(2): 301-317.
- [3] MÜHLBAUER S, BINZ B, JONIEZ F, *et al.* Science [J], 2009, 323(5916): 915-919.
- [4] YU X Z, ONOSE Y, KANAZAWA N, *et al.* Nature [J], 2010, 465(7300): 901-904.
- [5] GÖBEL B, MERTIG I, TRETIKOV O A. Physics Reports [J], 2021, 895: 1-28.
- [6] NAGAOSA N, TOKURA Y. Nature Nanotechnology [J], 2013, 8(12): 899-911.
- [7] KANAZAWA N, SEKI S, TOKURA Y. Advanced Materials [J], 2017, 29(25): 1603227.
- [8] YU X Z, KANAZAWA N, ONOSE Y, *et al.* Nature Materials [J], 2011, 10(2): 106-109.
- [9] TANG J, WU Y, WANG W, *et al.* Nature Nanotechnology [J], 2021, 16(10): 1086-1091.
- [10] KEZSMARKI I, BORDACS S, MILDE P, *et al.* Nature Materials [J], 2015, 14(11): 1116-1122.
- [11] BOULLE O, VOGEL J, YANG H, *et al.* Nature Nanotechnology [J], 2016, 11(5): 449-454.
- [12] NAYAK A K, KUMAR V, MA T, *et al.* Nature [J], 2017, 548(7669): 561-566.
- [13] TANG J, KONG L, WU Y, *et al.* ACS Nano [J], 2020, 14(9): 10986.
- [14] CHEN Y, LV B, WU Y, *et al.* Physical Review B [J], 2021, 103(21): 214435.

- [15] JIANG J, WU Y, KONG L, *et al.* Acta Materialia [J], 2021, 215: 117084.
- [16] TANG J, WU Y, KONG L, *et al.* National Science Review [J], 2021, 8(6): nwa200.
- [17] WEI W, TANG J, WU Y, *et al.* Advanced Materials [J], 2021, 33(33): 2101610.
- [18] WU Y, KONG L, WANG Y, *et al.* Applied Physics Letters [J], 2021, 118(12): 122406.
- [19] WU Y, TANG J, LYU B, *et al.* Applied Physics Letters [J], 2021, 119(1): 012402.
- [20] GRUNDY P J, HERD S R. Physica Status Solidi (a) [J], 1973, 20(1): 295–307.
- [21] LOUDON J C, TWITCHETT-HARRISON A C, CORTÉS-ORTUÑO D, *et al.* Advanced Materials [J], 2019, 31(16): 1806598.
- [22] HOU Z, REN W, DING B, *et al.* Advanced Materials [J], 2017, 29(29): 1701144.
- [23] ZHANG X, ZHOU Y, MEE S K, *et al.* Journal of Physics: Condensed Matter [J], 2020, 32(14): 143001.
- [24] ZHOU Y. National Science Review [J], 2019, 6(2): 210–212.
- [25] FERT A, CROS V, SAMPAIO J. Nature Nanotechnology [J], 2013, 8(3): 152–156.
- [26] KANG W, HUANG Y, ZHANG X, *et al.* Proceedings of the IEEE [J], 2016, 104(10): 2040–2061.
- [27] FERT A, REYREN N, CROS V. Nature Reviews Materials [J], 2017, 2(7): 17031.
- [28] CHRISTIAN H B, VINCENT C, HUBERT E, *et al.* Journal of Physics D: Applied Physics [J], 2020, 53(36): 363001.
- [29] ROMMING N, HANNEKEN C, MENZEL M, *et al.* Science [J], 2013, 341(6146): 636–639.
- [30] MATTEUCCI G, MISSIROLI G, NICHELATTI E. Journal of Applied Physics [J], 1991, 69(4): 1835–1842.
- [31] JIANG W, UPADHYAYA P, ZHANG W, *et al.* Science [J], 2015, 349(6245): 283–286.
- [32] TANG J, KONG L, WANG W, *et al.* Chinese Physics B [J], 2019, 28(8): 087503.
- [33] ZHENG F, RYBAKOV F N, BORISOV A B, *et al.* Nature Nanotechnology [J], 2018, 13(6): 451–455.
- [34] MCCARTNEY M R, AGARWAL N, CHUNG S, *et al.* Ultramicroscopy [J], 2010, 110(5): 375–382.
- [35] PARK H S, YU X, AIZAWA S, *et al.* Nature Nanotechnology [J], 2014, 9(5): 337–342.
- [36] LI Z A, ZHENG F, TAVABI A H, *et al.* Nano Letters [J], 2017, 17(3): 1395–1401.
- [37] BELEGGA M, SCHOFIELD M A, ZHU Y, *et al.* Applied Physics Letters [J], 2003, 83(7): 1435–1437.
- [38] KRAJNAK M, MCGROUTHER D, MANEUSKI D, *et al.* Ultramicroscopy [J], 2016, 165: 42–50.
- [39] MATSUMOTO T, SO Y G, KOHNO Y, *et al.* Science Advances [J], 2016, 2(2): e1501280.
- [40] MCGROUTHER D, LAMB R J, KRAJNAK M, *et al.* New Journal of Physics [J], 2016, 18(9): 095004.
- [41] DU H, CHE R, KONG L, *et al.* Nature Communications [J], 2015, 6: 8504.
- [42] YAO Y, DING B, CUI J, *et al.* Applied Physics Letters [J], 2019, 114(10): 102404.
- [43] SUZUKI R. Proceedings of the IEEE [J], 1986, 74(11): 1582–1590.
- [44] BONYHARD P, GEUSIC J, BOBECK A, *et al.* IEEE Transactions on Magnetics [J], 1973, 9(3): 433–436.
- [45] VOGELI O, CALHOUN B A, ROSIER L L, *et al.* The Use of Bubble Lattices for Information Storage [C]. AIP Conference Proceedings, American Institute of Physics, 1975, 24(1): 617–619.
- [46] MORIKAWA D, YU X Z, KANEKO Y, *et al.* Applied Physics Letters [J], 2015, 107(21): 212401.
- [47] YU X, TOKUNAGA Y, TAGUCHI Y, *et al.* Advanced Materials [J], 2017, 29(3): 1603958.
- [48] JE S G, JUNG M S, IM M Y, *et al.* Current Applied Physics [J], 2018, 18(11): 1201–1204.
- [49] TURNBULL L A, BIRCH M T, LAURENSEN A, *et al.* ACS Nano [J], 2020, 15(1): 387–395.
- [50] YU X, MOSTOVOY M, TOKUNAGA Y, *et al.* Proceedings of the National Academy of Sciences [J], 2012, 109(23): 8856–8860.
- [51] DING B, ZHANG J, LI H, *et al.* Applied Physics Letters [J], 2020, 116(13): 132402.
- [52] SCHOTT M, BERNAND-MANTEL A, RANNO L, *et al.* Nano Letters [J], 2017, 17(5): 3006–3012.
- [53] YANG Q, CHENG Y, LI Y, *et al.* Advanced Electronic Materials [J], 2020, 6(8): 2000246.
- [54] MONTOYA S A, COUTURE S, CHESS J J, *et al.* Physical Review B [J], 2017, 95(2): 024415.
- [55] ESCHENFELDER A H. Magnetic Bubble Technology [M]. Springer: Science & Business Media, 2012.
- [56] CAER G L, MALAMAN B, HAGGSTROM L, *et al.* Journal of Physics F: Metal Physics [J], 1979, 9(9): 1905–1919.
- [57] MALAMAN B, FRUCHAR D, CAER G L. Journal of Physics F: Metal Physics [J], 1978, 8(11): 2389–2399.
- [58] CAER G L, MALAMAN B, ROQUES B. Journal of Physics F: Metal Physics [J], 1978, 8(2): 323–336.
- [59] KIDA T, FENNER L A, DEE A A, *et al.* Journal of Physics: Condensed Matter [J], 2011, 23(11): 112205.
- [60] FENNER L A, DEE A A, WILLS A S. Journal of Physics: Condensed Matter [J], 2009, 21(45): 452202.
- [61] HERITAGE K, BRYANT B, FENNER L A, *et al.* Advanced Functional Materials [J], 2020, 30(36): 1909163.
- [62] VANSTEENKISTE A, LELIAERT J, DVORNIK M, *et al.* AIP Advances [J], 2014, 4(10): 107133.
- [63] CHEN R, LI Y, PAVLIDIS V F, *et al.* Physical Review Research [J], 2020, 2(4): 043312.
- [64] GOBEL B, SCHAFFER A F, BERAHDAR J, *et al.* Scientific Reports

- [J], 2019, 9(1): 12119.
- [65] ZHANG S, KRONAST F, VAN D L G, *et al.* Nano Letters[J], 2018, 18(2): 1057–1063.
- [66] FINAZZI M, SAVOINI M, KHORSAND A R, *et al.* Physical Review Letters[J], 2013, 110(17): 177205.
- [67] HAGEMEISTER J, SIEMENS A, RÓZSA L, *et al.* Physical Review B[J], 2018, 97(17): 174436.
- [68] RÓZSA L, HAGEMEISTER J, VEDMEDENKO E Y, *et al.* Physical Review B[J], 2018, 98(22): 224426.
- [69] SONG C, MA Y, JIN C, *et al.* New Journal of Physics[J], 2019, 21(8): 083006.
- [70] ZHAO R, HU C, JI L, *et al.* Science China Physics, Mechanics & Astronomy[J], 2020, 63(6): 1–8.
- [71] DU H, ZHAO X, RYBAKOV F N, *et al.* Physical Review Letters[J], 2018, 120(19): 197203.
- [72] SCHULZ T, RITZ R, BAUER A, *et al.* Nature Physics[J], 2012, 8(4): 301–304.
- [73] JIANG W, ZHANG X, YU G, *et al.* Nature Physics[J], 2017, 13(2): 162–169.
- [74] HUANG S X, CHIEN C L. Physical Review Letters[J], 2012, 108(26): 267201.
- [75] ZANG J, MOSTOVOY M, HAN J H, *et al.* Physical Review Letters[J], 2011, 107(13): 136804.
- [76] WOO S, SONG K M, HAN H S, *et al.* Nature Communications[J], 2017, 8(1): 15573.
- [77] LEMESH I, LITZIUS K, BÖTTCHER M, *et al.* Advanced Materials[J], 2018, 30(49): 1805461.
- [78] ANG C C I, GAN W, WONG G D H, *et al.* Physical Review Applied[J], 2020, 14(5): 054048.
- [79] BROCK J A, MONTOYA S A, IM M Y, *et al.* Physical Review Materials[J], 2020, 4(10): 104409.
- [80] BÜTTNER F, LEMESH I, SCHNEIDER M, *et al.* Nature Nanotechnology[J], 2017, 12(11): 1040–1044.
- [81] HE M, PENG L, ZHU Z, *et al.* Applied Physics Letters[J], 2017, 111(20): 202403.
- [82] ZHAO X, WANG S, WANG C, *et al.* Applied Physics Letters[J], 2018, 112(21): 212403.
- [83] GAO S, WANG P, ZHANG F, *et al.* Nature Communications[J], 2017, 8(1): 163.
- [84] MIDGLEY P A, DUNIN-BORKOWSKI R E. Nature Materials[J], 2009, 8(4): 271–280.
- [85] HIERRO-RODRIGUEZ A, QUIROS C, SORRENTINO A, *et al.* Nature Communications[J], 2020, 11(1): 6382.
- [86] SIMON P, WOLF D, WANG C, *et al.* Nano Letters[J], 2016, 16(1): 114–120.
- [87] KHANH N D, NAKAJIMA T, YU X, *et al.* Nature Nanotechnology[J], 2020, 15(6): 444–449.

(编辑 费蒙飞)