

特邀综述

# 基于深紫外激光-光发射电子显微技术的高分辨率磁畴成像\*

吕浩昌<sup>1)2)#</sup> 赵云驰<sup>2)#</sup> 杨光<sup>1)</sup> 董博闻<sup>1)</sup> 祁杰<sup>1)</sup> 张静言<sup>1)</sup> 朱照照<sup>2)</sup>  
 孙阳<sup>2)</sup> 于广华<sup>1)</sup> 姜勇<sup>1)</sup> 魏红祥<sup>2)</sup> 王晶<sup>2)</sup> 陆俊<sup>2)</sup> 王志宏<sup>2)</sup>  
 蔡建旺<sup>2)</sup> 沈保根<sup>2)1)</sup> 杨峰<sup>3)</sup> 张申金<sup>3)</sup> 王守国<sup>1)2)†</sup>

1) (北京科技大学材料科学与工程学院材料物理与化学系, 北京 100083)

2) (中国科学院物理研究所, 磁学国家重点实验室, 北京 100190)

3) (中国科学院理化技术研究所, 功能晶体与激光技术重点实验室, 北京 100190)

(2020年1月13日收到; 2020年2月14日收到修改稿)

基于磁二色效应的光发射电子显微镜磁成像技术是研究薄膜磁畴结构的一种重要研究手段, 具有空间分辨率高、可实时成像以及对表面信息敏感等优点. 以全固态深紫外激光 (波长为 177.3 nm; 能量为 7.0 eV) 为激发光源的光发射电子显微技术相比于传统的光发射电子显微镜磁成像技术 (以同步辐射光源或汞灯为激发源), 摆脱了大型同步辐射光源的限制; 同时又解决了当前阈激发研究中由于激发光源能量低难以实现光电子直接激发的技术难题, 在实验室条件下实现了高分辨磁成像. 本文首先对最新搭建的深紫外激光-光发射电子显微镜系统做了简单介绍. 然后结合超高真空分子束外延薄膜沉积技术, 成功实现了  $L1_0$ -FePt 垂直磁各向异性薄膜的磁畴观测, 其空间分辨率高达 43.2 nm, 与利用 X 射线作为激发源的光发射电子显微镜磁成像技术处于同一量级, 为后续开展高分辨磁成像提供了便利. 最后, 重点介绍了在该磁成像技术方面取得的一些最新研究成果: 通过引入 Cr 的纳米“台阶”, 成功设计出 FePt 的 (001) 与 (111) 双取向外延薄膜; 并在“台阶”区域使用线偏振态深紫外激光观测到了磁线二色衬度, 其强度为圆二色衬度的 4.6 倍. 上述研究结果表明: 深紫外激光-光发射电子显微镜磁成像技术在磁性薄膜/多层膜体系磁畴观测方面具备了出色的分辨能力, 通过超高真空系统与分子束外延薄膜制备系统相连接, 可以实现高质量单晶外延薄膜制备、超高真空原位传输和高分辨磁畴成像三位一体的功能, 为未来磁性薄膜材料的研究提供了重要手段.

**关键词:** 光发射电子显微镜, 深紫外激光, 磁圆/线二色, 高分辨磁成像

**PACS:** 68.37.Xy, 42.55.-f, 87.64.ku, 68.37.-d

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200083

## 1 引言

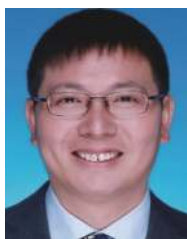
近年来, 随着自旋电子学的快速发展, 磁性薄膜材料在超高密度信息存储与逻辑运算方面展现出广阔的应用前景<sup>[1-8]</sup>. 而磁畴结构作为磁性材料

的基本特性, 在蕴含丰富物理图像的同时也与材料性能息息相关, 因此成为相关领域的研究热点<sup>[9-16]</sup>. 薄膜体系中的磁畴结构受材料种类、晶体结构、表面/界面结构、各向异性、杂质与缺陷、以及器件尺寸等诸多因素影响<sup>[17-23]</sup>, 在材料的器件化应用中具有重要意义.

\* 国家自然科学基金 (批准号: 51625101, 51961145305, 51971026, 51431009) 和中央高校基本科研业务费 (批准号: FRF-TP-16-001C2) 资助的课题.

# 共同第一作者.

† 通信作者. E-mail: [sgwang@ustb.edu.cn](mailto:sgwang@ustb.edu.cn)



王守国, 北京科技大学教授、博士生导师、国家杰出青年基金获得者、国家重点研发计划首席科学家. 1996 年本科毕业于安徽大学, 获理学学士学位; 2001 年研究生毕业于中国科学院固体物理研究所, 获凝聚态物理博士学位; 2001 年至 2007 年, 先后在新加坡国立大学、德国马普微结构物理研究所和英国牛津大学从事研究工作; 2007 年底回国, 加入中国科学院物理研究所磁学国家重点实验室; 2015 年 12 月调入北京科技大学材料科学与工程学院. 主持的项目主要包括: 国家重点研发计划、国家杰出青年基金、基金委重点项目、国家重大科学仪器设备开发专项子课题、中国科学院仪器研制项目、基金委面上项目、科技部中国-以色列国际合作项目等. 共发表 SCI 学术论文 130 余篇, 其中包括 *Adv. Mater.*, *Nat. Commun.*, *Phys. Rev. Lett.*, *J. Am. Chem. Soc.*, *Phys. Rev. B*, *Appl. Phys. Lett.*, *Nanoscale*, *ACS Appl. Mater. Int.* 等期刊. 目前担任中国电子学会应用磁学分会副主任委员兼秘书长; 中国金属学会功能材料分会副秘书长; 中国材料研究学会纳米材料与器件分会副秘书长; 中国金属学会材料科学分会常务理事; 中国材料研究学会青年工作委员会常务理事等. 担任《Rare Metals》(稀有金属英文版) 和《International Journal of Minerals, Metallurgy and Materials》等期刊编委.

磁成像技术可以直观地呈现样品的磁畴结构, 同时也能够对外场 (磁场、电场、自旋极化电流等) 调控作用下的薄膜磁畴变化开展实时观测, 因此获得了越来越广泛的应用. 磁成像技术的基本原理是利用光子或电子等与物质磁矩的相互作用, 从而形成可探测的光电信号, 最终转化为图像. 目前, 磁成像技术主要包括磁光克尔显微镜、磁力显微镜、洛伦兹透射电子显微镜、自旋极化低能电子显微镜以及基于磁二色效应的光发射电子显微镜 (photo emission electron microscopy, PEEM) 等. 上述磁成像技术各具特色, 实验中针对所测量的材料体系和不同外在条件 (如低温、高压、强场) 来选择合适的技术, 例如: 磁光克尔显微镜对样品的要求较低, 可以非常方便地对薄膜、块材样品进行磁畴观察, 但空间分辨率相对较低; 洛伦兹透射电子显微镜具有较高的空间分辨率, 但制备样品的工艺十分复杂, 技术要求较高, 难度较大; 基于磁二色效应的光发射电子显微技术在观察磁畴方面具有其独特的优势, 不仅能够更为直观地对磁畴结构进行实时成像并进行定量分析, 还能结合表面形貌与微结构等信息, 给出更为清晰、更加全面的物理图像, 是目前开展磁畴成像、磁化翻转、磁性定量分

析等研究的有力工具<sup>[24–31]</sup>.

PEEM 系统在阈激发模式下一般是采用高压 Hg 灯 (光子能量为 4.9 eV) 作为激发光源, 主要用于样品表面形貌的观察. 20 世纪 80 年代以来, 随着大型同步辐射装置在国际上的快速发展, PEEM 技术开始采用 X 射线作为激发源 (X-ray PEEM, X-PEEM), 并应用于磁性薄膜样品的磁畴成像观测. PEEM 磁成像技术利用的是偏振态 X 光激发的磁二色效应, 相关实验的开展需要依托于大型同步辐射光源. 简单来说, 所谓同步辐射指的是具有相对论性的带电粒子在电磁场作用下发出的辐射. 与其他光源相比, 同步辐射强度高, 能量可调, 同时具有偏振性与高准直性等优点. 因此, 结合不同的测试需求, 科研人员可以利用同步辐射光源开展多种科学研究, 如小角 X 射线散射、X 射线吸收谱的精细结构测定、角分辨光电子能谱与真空紫外电离质谱等. 通过椭圆偏振波荡器装置, 同步辐射光源还可以产生圆偏振态或线偏振态的 X 射线, 专门用于磁性样品磁二色谱的测定与磁畴成像.

根据所使用 X 射线偏振状态的不同, 采用 X-PEEM 可实现 X 射线磁圆二色 (X-ray magnetic circular dichroism, XMCD) 谱与 X 射线磁线二色 (X-ray magnetic linear dichroism, XMLD) 谱的测定. XMCD 技术的物理基础是磁性材料对于具有不同旋性的圆偏振态 X 射线的吸收程度不同, 即存在“二色性”<sup>[32]</sup>. 当入射 X 射线的能量超过某一阈值时, 能够实现芯能级电子激发, 将会出现共振吸收现象. 对于磁性材料而言, 选择定则的限制与交换作用引发的能带劈裂使得样品对于左旋偏振态与右旋偏振态 X 射线的吸收存在差异, 体现为不同强度的吸收谱信号<sup>[32–41]</sup>, 这种强度差异可直接正比于原子磁矩, 因此, XMCD 技术常用来测定磁矩的大小和方向, 有关这方面的内容可以参考复旦大学吴义政教授<sup>[32]</sup>和南京大学丁海峰等<sup>[42]</sup>的综述文章. 而 XMLD 的机理与 XMCD 略有不同, 需要采用线偏振态 X 射线激发, 起源于交换相互作用和自旋-轨道相互作用引起的相对于样品易磁化轴的电荷各向异性. 在铁磁材料和反铁磁材料中, 自旋轨道耦合使得自旋和晶格相互作用, 产生宏观的“易磁化”轴, 使自旋沿着这个轴取向. 宏观磁轴的存在使得偏振矢量与磁轴平行和垂直的 X 射线的吸收强度产生差异, 形成磁线二色性. 目

前, XMCD 技术主要用来研究铁磁和亚铁磁材料的磁性行为, 而 XMLD 技术则被广泛用来研究反铁磁材料, 特别是对薄膜表面的反铁磁性轴的取向的测定, 以及对反铁磁性畴成像<sup>[43–49]</sup>.

以此为基础将电子显微技术与同步辐射光源结合后, 可利用 XMCD/XMLD 实现高分辨的磁畴成像, 相关的装置有 X 射线透射显微镜、X 射线扫描透射显微镜与 X 射线光发射电子显微镜 (X-PEEM) 等. 对于 PEEM 技术而言, 与阈激发过程产生光电子不同, X-PEEM 主要收集跃迁吸收过程中产生的二次电子, 依据电子产额的差异形成图像衬度. 与其他技术相比, PEEM 具有表面信息敏感与实时成像等优势, 可以用于动态过程与时间分辨的相关实验研究. 与 X 射线磁二色谱技术类似, X-PEEM 在进行磁成像时可以通过选择不同波长的 X 射线来实现元素分辨功能, 并通过“加和定则”进行自旋磁矩与轨道磁矩的定量计算<sup>[31,34,50–53]</sup>, 具有十分强大的磁性表征能力.

与此同时, X-PEEM 技术也具有其局限性, 依托于大型同步辐射光源装置, 使得实验的开展在空间与时间上受到了严苛的限制. 伴随着近年来理论研究的不断深入, 价带电子在激发过程中的磁二色效应被证实<sup>[33–35,43]</sup>, 这就为使用其他光源替代同步辐射光源在 PEEM 系统中进行磁二色效应研究与磁畴观察提供了可能. 在利用阈激发 PEEM 进行磁畴观察的初期实验探索中, 极化的高压 Hg 灯被用作激发光源. 例如: Marx 等<sup>[44,54]</sup> 使用光子能量为 4.9 eV 的线偏振态 UV 光在 Fe 薄膜中观测到了 0.37% 的磁线二色衬度. 此后, 单色性与偏振性更好的激光成为光源的另一选择, 比如: Nakagawa 和 Yokoyama<sup>[55]</sup> 使用波长为 325 nm 的 HeCd 激光通过对光电流的探测成功观察到了铁

磁金属表面的阈激发磁二色信号. 在结合偏振调制功能后, 不同波长的激光开始被应用到阈激发 PEEM 磁成像观测实验中, 比如波长为 635, 405, 325 和 267 nm<sup>[55–61]</sup> 的圆偏振态激光等. 但这类应用的技术瓶颈在于: 上述激光的光子能量均未达到在单质铁磁金属与含有重金属的铁磁合金表面直接实现阈激发的能量要求 (常见铁磁金属 Fe, Co, Ni 功函数分别为 4.5, 5.0, 5.2 eV<sup>[62]</sup>, 而含有重金属的铁磁合金功函数更高). 为实现光电子激发, 研究人员需对材料表面功函数进行调制, 目前通用的做法是利用沉积 Cs 等方式降低表面功函数<sup>[59,60,63,64]</sup>, 而这一过程不可避免地干预了样品表面本征状态, 也在一定程度上导致磁衬度信号的衰减与空间分辨率的损失. 更为重要的是上述降低表面功函数的方法, 仅仅适用于比激发源能量稍高的金属磁性薄膜 (如 Fe), 而对于功函数更高的金属-重金属合金薄膜, 则无能为力. 因此, 采用具有更高光子能量的激光作为激发光源是解决上述技术瓶颈的唯一方法.

## 2 深紫外全固态激光器-光发射电子显微镜系统

### 2.1 KBBF 晶体与 177.3 nm 深紫外激光

深紫外波段的电磁辐射 (波长小于 200 nm) 主要依靠同步辐射和气体放电等传统方式获取, 虽保持了波长短、波段宽的优点, 但因受实验设备、能量分辨率、光子通量等因素的限制, 无法应用于阈激发磁成像的相关实验研究<sup>[65]</sup>. 相比之下, 深紫外全固态激光 (deep-ultraviolet diode-pumped solid-state laser, DUV-DPL) 优势突出, 具有体积小、效率高、稳定性好等特点 (如表 1 所列).

表 1 三种光源的特性比较<sup>[65]</sup>  
Table 1. Properties comparing of the three source<sup>[65]</sup>.

	Source		
	DUV-DPL	Synchrotron radiation	Gas discharge laser
Energy resolution/meV	~0.26	1–5	~1.2
Photon circulation	10 <sup>14</sup> –10 <sup>15</sup>	10 <sup>10</sup> –10 <sup>12</sup>	~10 <sup>12</sup>
Photon flux density/photon·s <sup>-1</sup> ·cm <sup>-2</sup>	10 <sup>19</sup> –10 <sup>20</sup>	10 <sup>12</sup> –10 <sup>14</sup>	<10 <sup>14</sup>
Wavelength range/nm	170–210	1–210	58.5
Mode of operation	ns, ps, fs pulse	ps pulse	continuous wave
Detection depth/nm	~10 (bulk effect)	0.5–2 (skin effect)	~0.5 (skin effect)

然而, 深紫外全固态激光的输出一般是利用非线性光学晶体通过倍频过程实现, 这要求晶体需要满足: 1) 至少达到 150 nm 的紫外截止边; 2) 能实现宽波段相位匹配的高双折射率. 而传统晶体如  $\text{LiB}_3\text{O}_5$  (LBO) 与  $\beta\text{-BaB}_2\text{O}_6$  (BBO) 均因结构或光学特性不能同时满足以上两个条件, 无法实现倍频. 为此, 中国科学院理化技术研究所的陈创天院士与许祖彦院士所领导的团队<sup>[66]</sup>利用  $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$  (KBBF) 晶体并结合棱镜耦合技术发明了 KBBF-PCT (prism-coupled technique) 器件并通过倍频过程成功实现了波长为  $\lambda = 177.3$  nm, 光子能量为  $h\nu = 7.0$  eV 的深紫外激光的输出. 这一全新的光源技术随后被应用于能量分辨率优于 1 meV 的角分辨光电子能谱系统, 开展材料的费米面与能带结构研究; 以及作为激发光源用于具有像差校正系统的 PEEM 系统中并实现了优于 5 nm 空间分辨率的 PEEM 图像观测, 主要开展催化行为的动态研究 (非磁)<sup>[67,68]</sup>.

### 2.2 深紫外激光偏振态的调制

由于 PEEM 磁成像过程中磁畴的衬度与入射光的偏振状态存在关联, 激光偏振态可调对于利用 DUV-PEEM 系统开展磁畴成像的研究尤为重要, 因此需要在光路系统中引入偏振调制模块. 通过使用  $\lambda/4$  波片可实现圆偏振态旋性的切换 (图 1(a)), 通过使用  $\lambda/2$  波片来实现线偏振态偏振

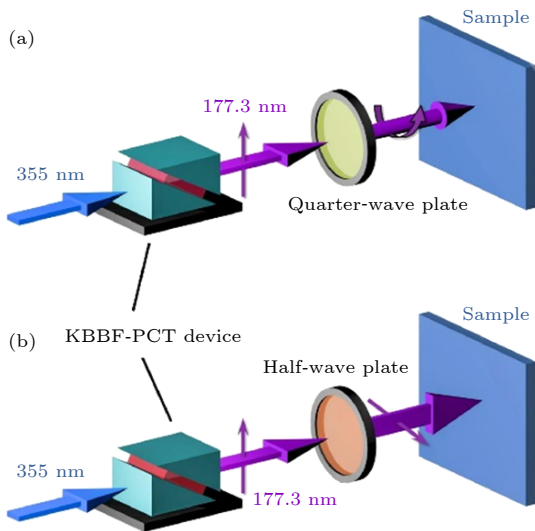


图 1 (a) 通过  $\lambda/4$  波片输出圆偏振态 DUV 激光; (b) 通过  $\lambda/2$  波片调制 DUV 激光线偏振态<sup>[69]</sup>  
 Fig. 1. Schematic drawings of the DUV laser optical system with (a) circular and (b) linear polarizations<sup>[69]</sup>.

方向的连续可变 (图 1(b))<sup>[69]</sup>. 以此为基础, 177.3 nm 深紫外激光将可用于磁性薄膜体系中近费米能级光电子激发的磁二色效应研究与磁畴结构观察.

### 2.3 深紫外激光-光发射电子显微镜系统

在本系统中, 波长为 177.3 nm 深紫外激光源以图 2 所示的方式接入 PEEM 系统, 激光穿过 PEEM 系统中的棱镜与能量选择器之间的狭缝并从物镜孔中射出, 以几乎正入射的状态到达样品表面, 此时激光圆形光斑直径约为 1 mm.

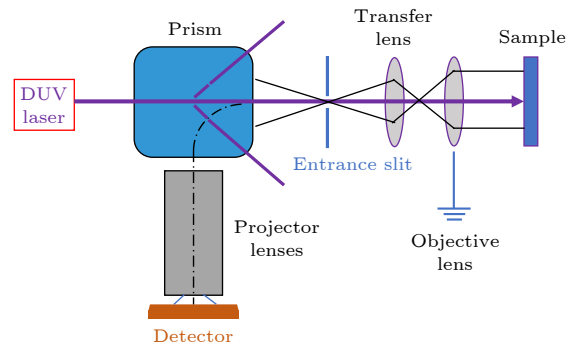


图 2 深紫外激光与 PEEM 的连接示意图  
 Fig. 2. Optical system of the DUV-PEEM system.

据此, 接入了深紫外激光源的 PEEM 系统可使用正入射的深紫外激光 (光子能量  $h\nu = 7.0$  eV) 与斜入射高压 Hg 灯输出的紫外光 (称为 UV 光, 光子能量  $h\nu = 4.9$  eV) 进行 PEEM 观测. 需要指出的是, PEEM 系统可结合其低能电子显微镜 (low energy electron microscopy, LEEM) 和低能电子衍射 (low energy electron diffraction, LEED) 技术, 实现多模式协同工作, 如图 3 所示<sup>[69]</sup>.

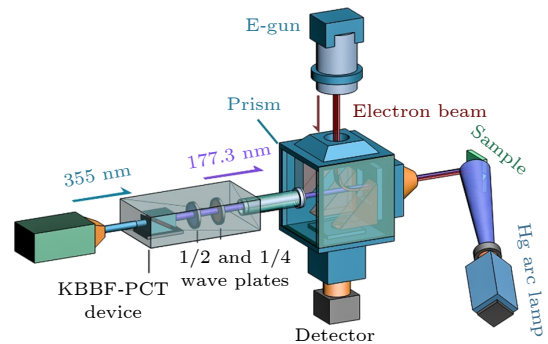


图 3 深紫外激光-光发射电子显微镜系统装置示意图<sup>[69]</sup>  
 Fig. 3. A schematic layout of the DUV laser-based LEEM/PEEM system<sup>[69]</sup>.

## 2.4 光发射电子显微镜系统与超高真空分子束外延系统的连接

由于 PEEM 成像技术对样品表面的平整度与洁净度要求极为严苛, 为此我们构建了联合实验系统, 将上述 PEEM 系统与超高真空分子束外延 (MBE) 系统通过超高真空管道与中间腔体相互连接 (如图 4 所示), 使得样品从制备、传输、直到表征测量的整个过程不脱离超高真空环境, 可实现高质量单晶外延薄膜制备、样品传输、与高分辨 PEEM/LEEM 观测等一系列实验流程。

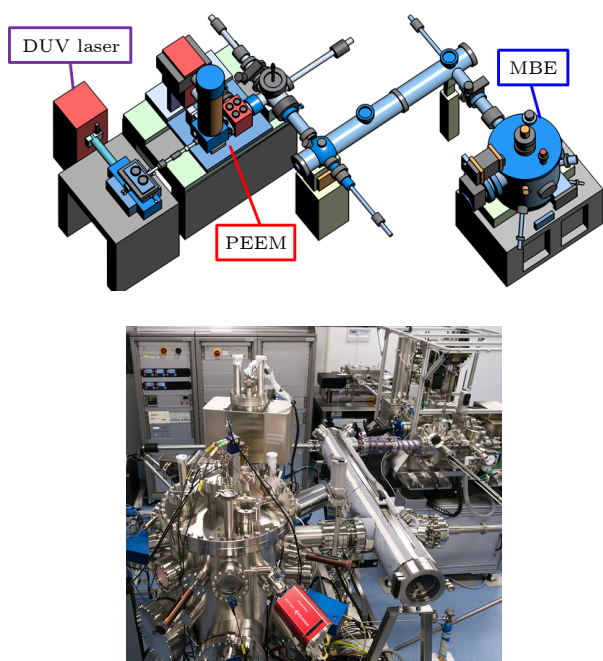


图 4 MBE-PEEM 系统连接示意图和实物照片

Fig. 4. Schematic setup and photo of MBE-PEEM combined system.

## 3 阈激发光发射电子/低能电子显微镜的空间分辨率

电子显微镜的空间分辨率通常指图像中邻近区域间可辨认空间几何长度的最小距离, 能够反映系统对精细结构的解析能力. 具体测定方法是: 通过对存在衬度的区域进行线扫描, 由此得到的图像强度曲线会呈现“台阶”状的变化规律, 以“台阶”高度的 16% 与 84% 之间相对应的物理距离定义为空间分辨率. 本文利用上述方法首先对 PEEM 系统使用高压 Hg 灯作为激发光源时的空间分辨率进行了测定. 实验中选取具有 (0001) 取向的 Ru 单晶

样品为研究对象, 让少量 C 原子在 Ru 表面吸附, 由于 C 与 Ru 原子的功函数存在较大的差异, 从而形成 PEEM 观测中的图像衬度. 图 5 给出了相关的实验结果, 其中图 5(a) 中亮区 (1) 对应 Ru (0001) 表面, 暗区 (2) 与 (3) 对应表面有碳原子分布区域, 同为暗区存在衬度是由于不同层数碳原子之间亦存在功函数差异<sup>[70]</sup>. 在图 5(a) 所示的 PEEM 图像中选取一个跨过区域 (2) 与 (3) 边界的位置 (如图中标记所示) 进行强度线扫描, 结合图像灰度数值、观测视野大小与 CCD 传感器像素阵列信息可得到图 5(b) 所示的光电子收集强度关于空间位置的变化曲线<sup>[71]</sup>. 根据上述方法, 测得 UV-PEEM 空间分辨率约为 8.9 nm, 证明了该系统具有高空间分辨 PEEM 表面观测的能力。

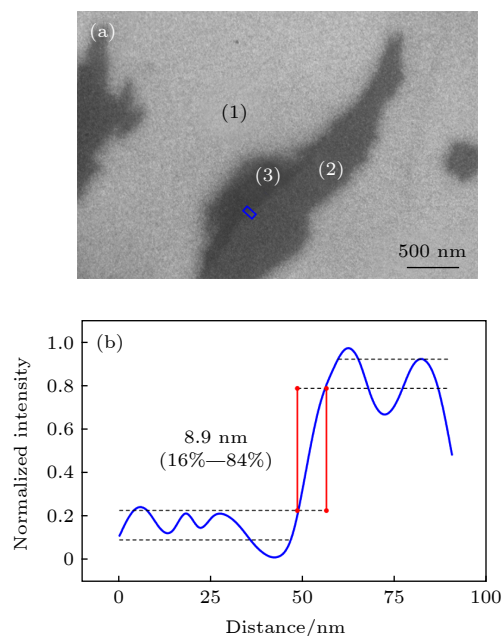


图 5 (a) Hg 灯激发下碳原子吸附于 Ru (0001) 表面的 PEEM 图像; (b) 在 PEEM 图像所示位置进行线扫描的归一化强度曲线与计算得到的空间分辨率<sup>[71]</sup>

Fig. 5. (a) PEEM image of multilayer graphene on Ru (0001) taken with Hg arc lamp; (b) spatial resolution calculated from obtained PEEM image<sup>[71]</sup>.

当切换至 LEEM 模式时, 系统可使用冷场发射枪作为电子束源, 其电子光路如图 6 所示. 电子束发射后在 15 kV 加速电压下进入棱镜系统发生 90° 偏转并穿过物镜后正入射至样品表面. 在 LEEM 工作模式下, 除了可利用更高空间分辨率进行精细的表面形貌观察外, 还能通过 LEED 模式对样品表面重构、缺陷与晶面取向进行分析, 更深入地探究电子与材料表面的相互作用。

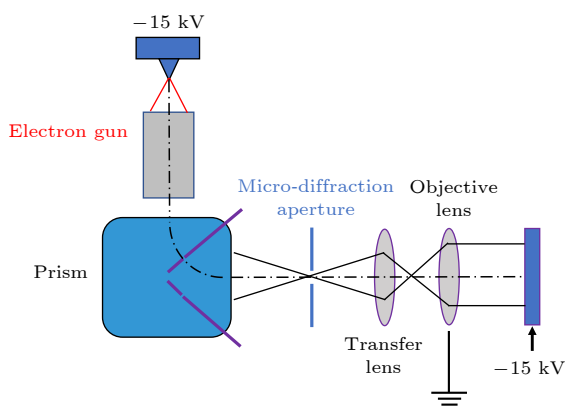


图 6 LEEM 模式的电子光路系统 (电子枪部分)

Fig. 6. Optical system of LEEM (E-Gun).

采用具有 (001) 取向的单晶 Si 衬底来测定 LEEM 的分辨率. 图 7(a) 给出了暗场像模式下所获得的 Si (001) 表面的 LEEM 图像, 其中内插图 7(b) 为该区域的 LEED 图谱, 可以观测到 LEEM 模式下 Si (001) 表面对应  $(2 \times 1)$  与  $(1 \times 2)$  重构的互为反相的暗场像衬度. 据此, 通过选择图像中标定的区域并使用与上述 PEEM 实验中相同的方法, 在图 7(c) 所示的强度曲线中测定出 LEEM 空间分辨率为 4.6 nm, 优于 PEEM 模式下的 8.9 nm, 进一步证明了 LEEM 技术可以对样品的表面信息进行更为精细地解析<sup>[71]</sup>.

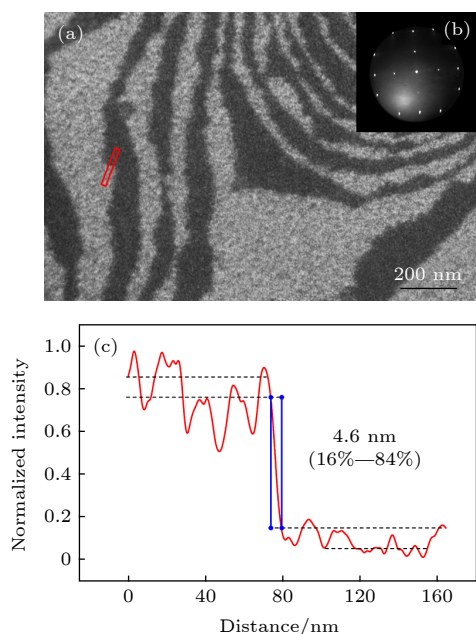


图 7 (a) Si (001) 的 LEEM 暗场像; (b) Si (001) 表面的  $(2 \times 1)$  重构 LEED 图像; (c) 在 LEEM 图像所示位置进行线扫描的归一化强度曲线与计算得到的空间分辨率<sup>[71]</sup>

Fig. 7. (a) Dark field image and (b) LEED pattern of a  $(2 \times 1)$  reconstructed Si (001) surface; (c) spatial resolution calculated from obtained LEEM image<sup>[71]</sup>.

#### 4 DUV-PEEM 系统的空间分辨率和能量分辨率

深紫外激光光源成功接入 PEEM 系统后, 利用相同的方法可对 PEEM 系统使用 177.3 nm 深紫外激光作为激发光源时的空间分辨率及能量分辨率分别进行测定. 实验中, 以生长在 (0001) 取向单晶 Ru 表面上的岛状 PbO 薄膜为研究的材料对象. 图 8(a) 给出了生长在 Ru 单晶表面岛状 PbO 的 PEEM 图像, 可以看出, 岛状的 PbO 与 Ru (0001) 的功函数衬度差别显著, 可被 PEEM 系统明确观测到; 图 8(b) 中的归一化灰度曲线对应图 8(a) 所示 PEEM 图像中的标记位置, 由此测得 DUV-PEEM 成像的空间分辨率为 18.3 nm, 这一结果有力地证明了深紫外激光作为激发光源可用于高空空间分辨率 PEEM 成像观测<sup>[71]</sup>.

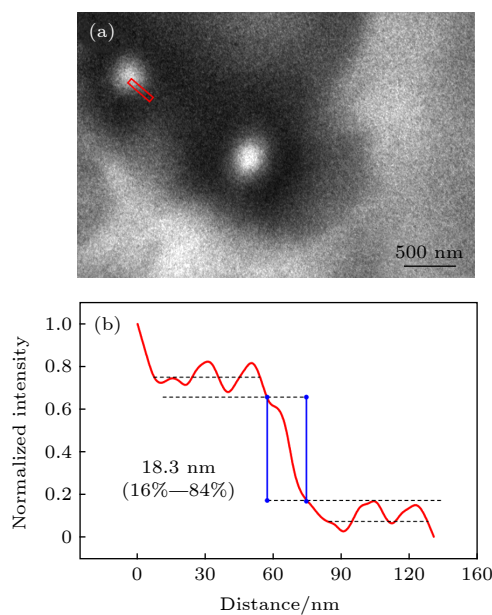


图 8 (a) 单晶 Ru (0001) 表面生长的岛状 PbO 的 DUV-PEEM 图像; (b) 在 PEEM 图像所示位置进行线扫描的归一化强度曲线与计算得到的空间分辨率<sup>[71]</sup>

Fig. 8. (a) DUV-PEEM image of PbO islands on Ru(0001); (b) spatial resolution calculated from obtained PEEM image<sup>[71]</sup>.

此外, 利用能量狭缝可在色散模式下对 DUV-PEEM 系统的能量分辨率进行测定, 其基本原理如图 9(a) 所示. 图 9(b) 所示为采集自 Ru (0001) 表面生长的岛状 PbO 样品的深紫外激光-光发射谱图, 据此可得到图 9(c) 所示费米边附近的强度曲线, 通过测量谱线高度 16%—84% 位置所对应

的动能差并扣除激光本征线宽与热效应的影响后,测定 DUV-PEEM 系统能量分辨率为 0.19 eV,表明以 177.3 nm 深紫外激光作为激发光源具有高能量分辨率.

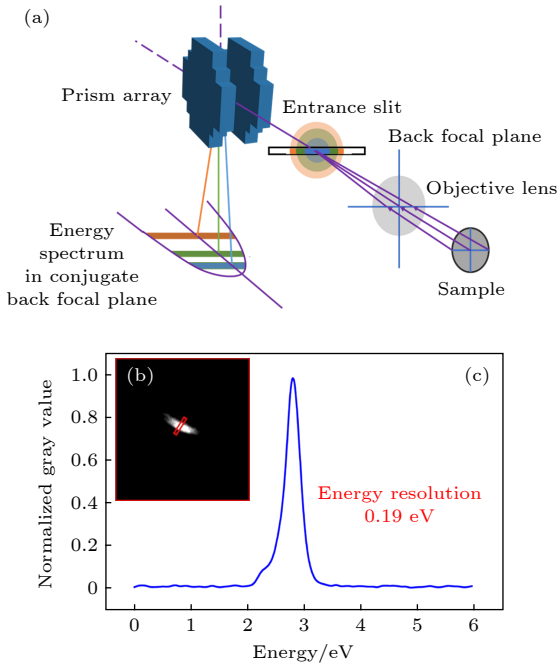


图 9 (a) PEEM 系统能量狭缝的结构示意图; (b) 色散模式下采集得到的单晶 Ru (0001) 上生长岛状 PbO 样品的深紫外激光-光发射谱图; (c) 线扫描得到的费米边附近激光光发射谱的归一化强度曲线

Fig. 9. (a) Schematic drawing of energy filter in PEEM system; (b) DUV-photo emission spectrum obtained from island-shaped PbO grown on Ru (0001) in dispersion mode; (c) normalized line profile with the calculated spatial resolution from selected area marked in panel (b).

## 5 DUV-PEEM 系统在单晶外延 FePt 薄膜磁畴结构研究中的应用

### 5.1 PEEM 磁成像中的磁二色性

前期的工作表明,磁二色性的本质来源于自旋-轨道耦合<sup>[33,43]</sup>,分为磁圆二色性(magnetic circular dichroism, MCD)和磁线二色性(magnetic linear dichroism, MLD).对 XMCD 而言,在铁磁材料中,因价电子态出现 Stoner 分裂,位于费米面附近自旋方向不同的电子态密度存在差异,对旋性不同的 X 射线激发的光电子会基于选择定则跃迁,产生不同强度的共振吸收,从而产生 XMCD<sup>[34,35,55]</sup>.与芯能级激发类似,近费米面能级光激发的磁二色性也和价电子带中的自旋-轨道耦合密不可分.在

铁磁材料具有自旋极化特性的能带结构中,自旋-轨道耦合引发的对称性破缺导致自旋方向不同的能带之间发生杂化后简并解除,使得对光电子的激发产生偏振依赖关系<sup>[43]</sup>.目前,对于光发射磁二色性效应的物理图像,已经有了一些具体的理论计算与实验结果,机理相对清晰.例如:Kuch 等<sup>[34,35]</sup>在垂直磁化的单晶 Ni (001) 薄膜体系中观测到了价带光电子激发过程中的 MCD 信号,同时结合能带理论计算给出了具体的阐释;Rampe 和 Güntherodt<sup>[43]</sup>在单晶 Fe (110) 体系中实现了 MLD 的观测,所采用的手段为角分辨光电子能谱技术,理论解释较为统一,认为磁二色信号来源于自旋-轨道耦合引起的轨道杂化对费米面附近能带结构的影响.

### 5.2 单晶 FePt 薄膜的 DUV-PEEM 磁成像研究

深紫外激光光源具有光子能量高的优势,可对 3d 磁性金属、重金属以及其合金薄膜表面实现光电子激发.下面将以 L1<sub>0</sub>-FePt 薄膜为研究对象,基于 DUV-PEEM 系统进行磁畴结构的观测和分析<sup>[69]</sup>.

L1<sub>0</sub>-FePt 合金具有面心四方结构,实验中利用 MBE 技术成功制备出具有 (001) 晶体取向的高质量单晶 L1<sub>0</sub>-FePt 薄膜样品,采用与 L1<sub>0</sub>-FePt/MgO/ L1<sub>0</sub>-FePt 磁性隧道结工作<sup>[72]</sup>中类似的样品结构和制备工艺,如图 10(a) 所示.相关的磁性测量数据表明该样品具有良好的垂直磁各向异性,其中磁滞回线如图 10(a) 所示 (1 Oe = 10<sup>3</sup>/(4π) A/m).

图 10(b) 给出了 LEEM 观测所得的图像,实验结果表明样品表面呈“岛状”形貌,同时结合 LEED 技术测定了 FePt 薄膜为 (001) 取向高质量单晶外延结构.随后,在 PEEM 工作模式下以波长为 177.3 nm 的深紫外激光作为激发源对上述薄膜样品进行磁成像实验.分别采用左旋和右旋的圆偏振态激光对 FePt 薄膜的同一区域进行 PEEM 图像采集,通过将左旋与右旋偏振态激光的 PEEM 图像做除法运算,从而将非磁的表面信息(如形貌、功函数差异等)扣除,最终得到了仅保留磁信息的 PEEM 图像<sup>[73]</sup>,如图 10(c) 所示.从图 10(c) 可以看出,FePt 表面的磁畴形状为“迷宫”畴,呈现出 L1<sub>0</sub>-FePt 薄膜磁畴的典型特征.为进一步确认

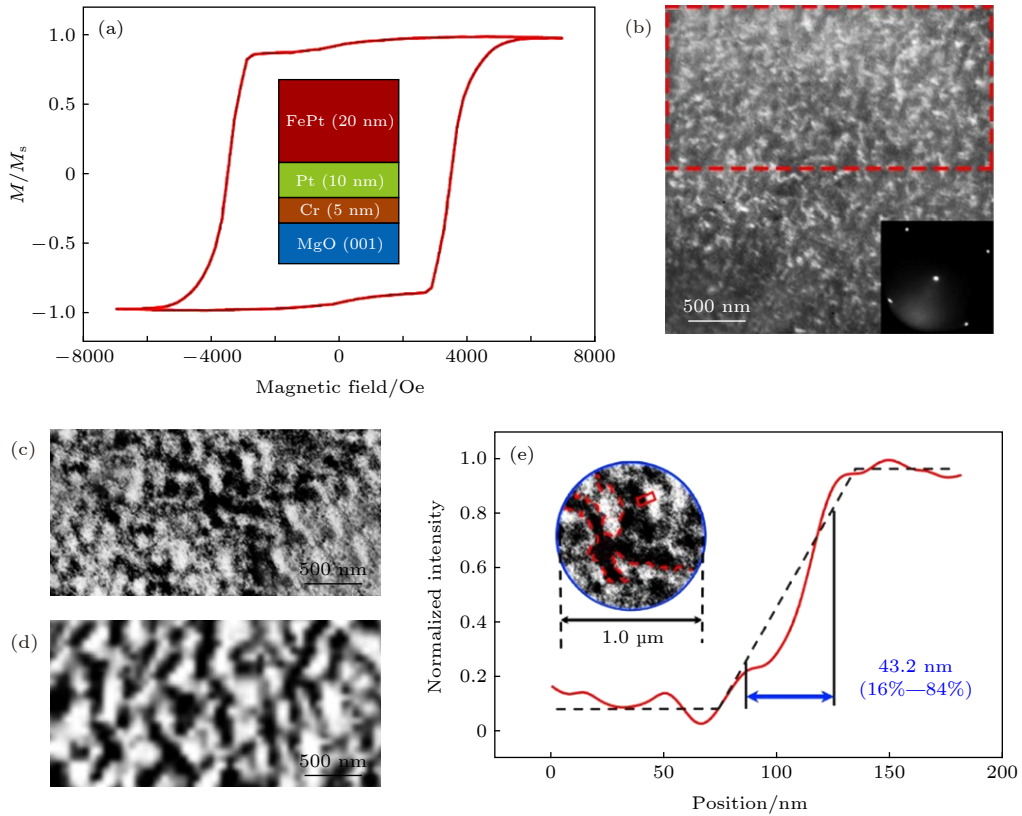


图 10 (a) MgO/Cr (5 nm)/Pt (10 nm)/FePt (20nm) 结构样品垂直于膜面的磁滞回线; (b) FePt 薄膜的 LEEM 图像 ( $E_p = 8.6$  eV), 插图所示为该区域的 LEED 图像 ( $E_p = 16.3$  eV); (c) 图 (b) 红色方框标识区域使用圆偏振 DUV 获得的 PEEM 磁畴图像; (d) 使用磁力显微镜采集同一样品的磁畴照片; (e) 插图所示视野内对 DUV-PEEM 磁畴成像空间分辨率的测定<sup>[69]</sup>

Fig. 10. (a) Schematic structure and out-of-plane hysteresis loop of MgO (001) sub. /Cr (5 nm)/Pt (10 nm)/FePt (20 nm) films; (b) LEEM image ( $E_p = 8.6$  eV) and LEED ( $E_p = 16.3$  eV) pattern (inset) of FePt film; (c) magnetic domain (contrast enhanced) of the area marked by a red dashed rectangle in (b) taken with circularly polarized DUV laser; (d) magnetic domain image of the FePt films with the same structure obtained by magnetic force microscopy; (e) normalized line profile with the estimated spatial resolution from selected area marked in inset<sup>[69]</sup>.

图像衬度的磁性起源, 图 10(d) 给出了磁力显微镜对同一样品进行表面磁畴结构的观测结果. 将 PEEM 磁畴图像 (图 10(c)) 和磁力显微镜磁畴图像 (图 10(d)) 进行比较, 可以看出: 尺寸和形状近乎相同的磁畴结构再次证明经过图像处理后的 DUV-PEEM 图像中的衬度真实地反映了样品的磁畴结构. 这是国际上首次采用深紫外激光作为激发光源, 在 PEEM 系统中成功地对样品表面直接激发观察到清晰的磁畴图像.

目前, 采用大型同步辐射光源的 X 射线作为激发源的 X-PEEM 磁成像技术分辨率通常在 20—100 nm 范围内<sup>[30,74–77]</sup>. 通过在图 10(e) 所示的视野中红色方框标注的区域进行图像灰度线扫描, 得到了相应的归一化强度曲线, 最终计算得到其磁成像的空间分辨率约为 43.2 nm, 这意味着在普通实验室条件下即可实现的 DUV-PEEM 技术在磁成像空间分辨率方面与大型同步辐射条件下才能完

成的 X-PEEM 技术处于同一水平, 更加方便研究人员在普通实验室中开展高分辨磁成像观测.

此外, 磁圆二色效应的强弱可以通过不对称度 (magnetic dichroism asymmetry) 来定量表示, 不对称度数值越高表明磁圆二色信号越强, 磁畴衬度的对比度越强. 较高磁畴衬度的对比度能够更好地呈现磁畴结构, 其计算方法为

$$A_{\text{MCD}} = \frac{(I_{\text{R}}/I_{\text{L}})_1 - (I_{\text{R}}/I_{\text{L}})_2}{(I_{\text{R}}/I_{\text{L}})_1 + (I_{\text{R}}/I_{\text{L}})_2},$$

其中  $I_{\text{R}}$  与  $I_{\text{L}}$  分别为右旋光与左旋光对应的图像强度,  $I_{\text{R}}/I_{\text{L}}$  由运算后的磁畴图像给出, 区域 1 与区域 2 对应其中的亮区与暗区, 计算得到  $A_{\text{MCD}}$  的值为 2.2%. 对于正入射的线偏振光, 由于垂直磁各向异性薄膜中磁矩方向垂直于激光偏振方向, 所以不论电场矢量在偏振面内怎样转动, 其与磁矩的相对关系都是等效的, 因此产生的磁圆二色信号在理论



上应为零,这在实验中也得到了证实.

单晶外延生长的 FePt 薄膜晶体结构取决于先它生长的种子层 (Pt 层), 而 Pt 层的晶体取向又可以通过缓冲层 (这里选择 Cr 插层) 来进行有效的调控<sup>[72,78,79]</sup>. 利用 MBE 系统中配置的垂直双挡板, 可以在 MgO (001) 衬底上设计出 Cr 的“台阶”底层结构 (图 11(a) 所示)<sup>[69]</sup>, 诱导实现 Pt 种子层 (001) 和 (111) 两种晶向各占据表面一半的共存状态.

图 11(b) 给出了双晶体取向 Pt 种子层结构的 UV-PEEM 成像, 视野中两侧区域呈现出明显衬度差异, 其中标记 A, B 与 C 分别对应视野中暗区、亮区与边界区位置 (图中蓝色标记), 结合 LEEM/LEED 技术对两侧区域进行更为精确的分析<sup>[69]</sup>. 标记 A 处的 LEEM 图像中呈现的清晰原子台阶形貌与锐利的六重对称性 LEED 图谱, 如图 11(c) 所示, 证明了该处是高质量 Pt (111) 面; 标记 B 处则呈现岛状形貌的 LEEM 图像及形成  $(5 \times 1)$  重构的四重对称性 LEED 图谱, 如图 11(d) 所示, 这也是高质量 Pt (001) 面的典型特征; 而标记 C 位置为 Pt(111) 晶面与 (001) 晶面区域的分界, 可通过不同电子初始能量下的 LEEM 图像得以确定, 如

图 11(e) 所示, 证实了两侧衬度的差异是由晶面取向不同导致的功函数差异造成的<sup>[80]</sup>. 图 11(f) 给出了 Pt 种子层选区 (图 11(b) 中红色线框内) DUV-PEEM 图像, 可以看出清晰的图案. 对图 11(f) 图像区域, 采用不同线偏振态深紫外激光激发, 获得对应的图像, 扣除非磁信息后获得的图像如图 11(g) 所示. 可以看出, 经过运算后 (扣除非磁本底) 的图像, 在 Pt 双取向的“台阶”分界处没有呈现出依赖于激光偏振方向的线二色信息, 证明了线偏振的调制在非磁表面不具有线二色性. 类似的结论在圆偏振深紫外激光实验中也得到了证实.

在上述 Pt (111) 和 Pt (001) 共存的基础上, 采用 MBE 技术, 继续生长 20 nm 厚的 FePt 铁磁薄膜, 采用 DUV-PEEM 对其磁畴结构进行观察. 由于 FePt 薄膜的外延结构依然取决于其底层的 Pt 薄膜, 可以推测 FePt 薄膜也将出现两种晶体取向共存的现象.

图 12(a) 为紫外汞灯为光源的 PEEM 图像, 从 UV-PEEM 图像中仍然能够看到不同晶体取向的 FePt 间形成的功函数衬度<sup>[69]</sup>. 图中明暗两区域的晶体取向可以通过 LEED 图谱给出, 如图 12(b)

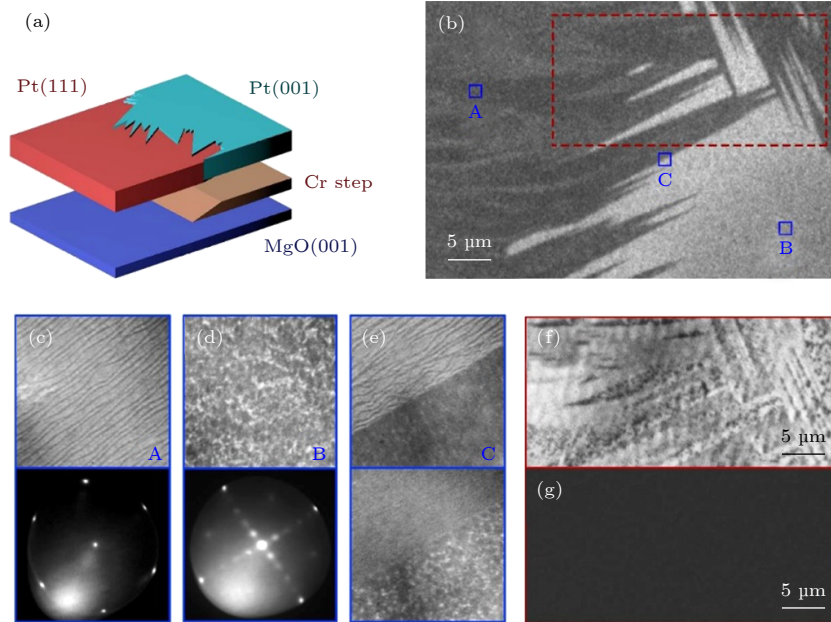


图 11 (a) Cr 纳米台阶上外延生长的 Pt 种子层结构示意图; (b) Pt 种子层的 UV-PEEM 图像; (c) 暗区 A 对应的 LEEM 与 LEED 图像; (d) 亮区 B 对应的 LEEM 与 LEED 图像; (e) 过渡区域的 LEEM 图像 (区域 A, B 与 C 的位置在 (b) 图中标出); (f) Pt 种子层选区 ((b) 图中红色线框) DUV-PEEM 图像; (g) 与 (f) 图同区域的线二色 DUV-PEEM 图像<sup>[69]</sup>.

Fig. 11. (a) Schematic drawing of a Pt seed layer with Cr step. (b) UV PEEM image of Pt seed layer consisting of two orientations. LEEM and LEED patterns of the selected areas marked by blue rectangles in panel (b): (c) dark area A, (d) light area B and (e) boundary area C. (f) DUV-PEEM image of the selected area marked by a red dashed rectangle in panel (b). (g) Linear dichroism image of the same area as panel (f)<sup>[69]</sup>.

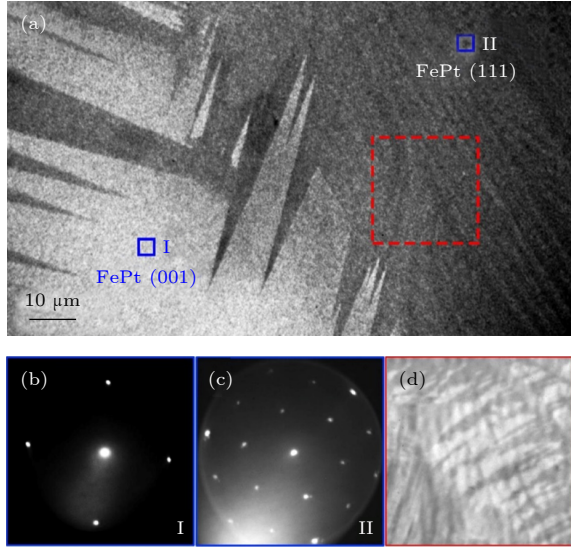


图 12 (a) 在具有双晶体取向的 Pt 种子层上生长 FePt 后的 UV-PEEM 图像; (b) 区域 I ((a) 图标标注位置) 的 LEED 图像; (c) 区域 II 的 LEED 图像; (d) 使用线偏振态深紫外激光在选定区域 ((a) 图红色线框标记位置) 采集的 DUV-PEEM 图像<sup>[69]</sup>

Fig. 12. (a) UV-PEEM image of FePt film deposited on Pt seed layer with two orientations. LEED patterns of selected areas marked by blue rectangles in panel (a): (b) light area I and (c) dark area II. (d) DUV-PEEM image of the selected area marked by a red dashed rectangle in panel (a) taken with linearly polarized laser<sup>[69]</sup>.

和图 12(c) 所示. 与在 Pt 表面观测到的结果类似, FePt 薄膜表面同样实现了 (001) 与 (111) 两种取向共存的状态. 将光源从紫外汞灯换成深紫外激光后再次进行表面结构观察, 图 12(d) 为图 12(a) 中邻近两晶体取向边界的暗区 (红色线框标注位置) 的深紫外激光 PEEM 图像. 可以明显看出与 UV-PEEM 图像相比, DUV-PEEM 图像呈现出了更多的样品表面信息. 采用旋性不同的圆偏振态激光对上述 FePt 薄膜样品区域进行 DUV-PEEM 图像采集, 通过除法运算来扣除非磁表面的信息, 可以得到该区域的磁圆二色衬度, 对应的磁畴结构如图 13(a)–(c) 所示<sup>[69]</sup>. 与之前 (001) 取向 L1<sub>0</sub>-FePt 表面得到的磁畴图像相比, 该区域磁畴结构差异明显, 呈“块状”形态且尺寸更大. 经过计算得到该区域的  $A_{MCD}$  数值为 2.5%, 与之前的实验结果相近.

值得指出的是, 除上述的 MCD 衬度外, 该区域 PEEM 图像具有明显的 MLD 衬度, 且其显示的磁畴结构与圆二色信号下的磁畴结构相一致, 如图 13(d)–(f) 所示<sup>[69]</sup>. 与 MCD 不对称度计算类似, 计算得到的  $A_{MLD}$  值为 11.5%, 为  $A_{MCD}$  的 4.6 倍, 说明在纳米台阶的过渡区域 MLD 远强于 MCD.

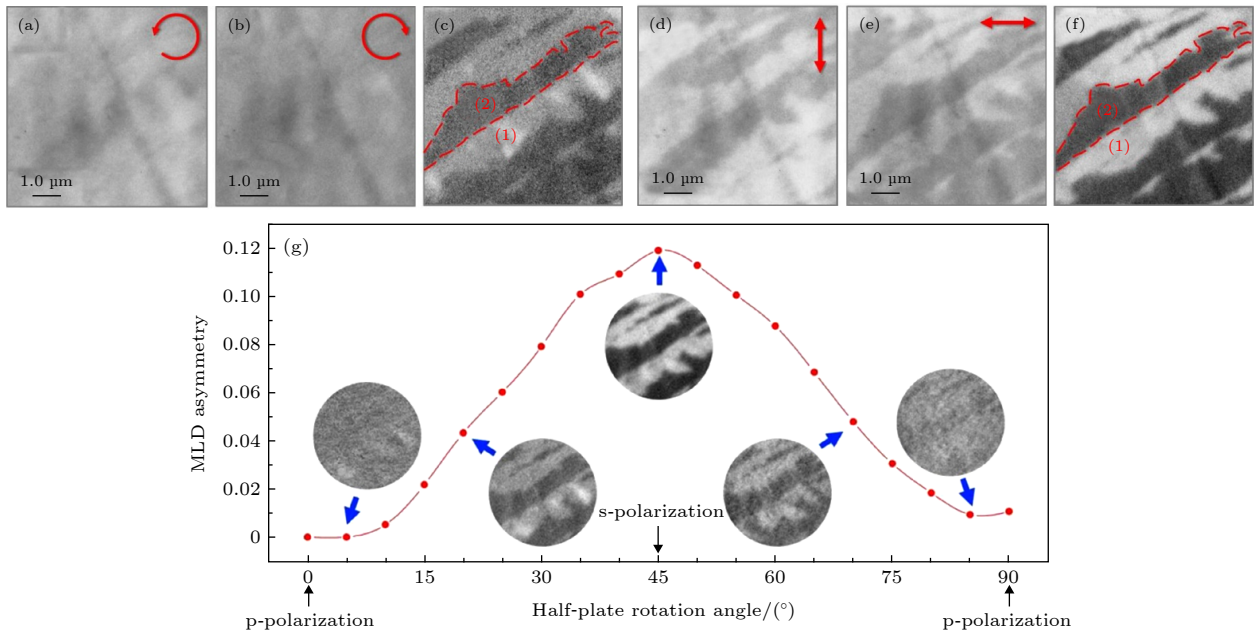


图 13 在同一视野下分别使用 (a) 左旋与 (b) 右旋的圆偏振态深紫外激光采集的 DUV-PEEM 图像; (c) 计算得到的 MCD 磁畴图像; 在同一视野下分别使用偏振方向为 (d) 竖直与 (e) 水平的线偏振态激光采集的 DUV-PEEM 图像; (f) 计算所得 MLD 磁畴图像; (g) 磁圆二色衬度随激光偏振方向的变化规律<sup>[69]</sup>

Fig. 13. DUV-PEEM images taken with (a) left-circularly polarized and (b) right-circularly polarized light; (c) MCD image of FePt film; (d), (e) DUV-PEEM images taken with linearly-polarized laser (polarization shown by red arrow); (f) MLD image of FePt film; (g) polarization dependent MLD asymmetry for the selected area<sup>[69]</sup>.

由于线偏振光的偏振方向可通过  $\lambda/2$  波片实现连续变化, 因此磁衬度随偏振方向的依赖关系能够较为完整地给出 (图 13(g) 所示<sup>[69]</sup>). 类似的实验方法在以线偏振态激光或者 X 射线激发的 PEEM 系统中开展对多铁材料  $\text{BiFeO}_3$  铁电畴的观察以及反铁磁有序排列的研究中就使用过<sup>[81,82]</sup>, 该区域下测定的 MLD 磁畴成像的空间分辨率为 47.1 nm, 该数值与 MCD 模式对应的磁畴图像接近. 需要指出的是, 对于该过渡区域出现的 MLD 衬度, 我们尚且需要更为深入的认识, 目前更进一步的研究工作正在开展, 伴随该体系中价带电子结构、晶体结构与磁结构等物理图像之间的关联逐步清晰, 有望对于这一新奇的实验现象予以清晰地阐释. 总之, 以上的实验结果仍有力地证实了深紫外激光 PEEM 磁成像技术具备对磁性薄膜体系进行磁畴成像的能力, 这一进展将使得 PEEM 技术可在摆脱同步辐射光源限制的前提下使用深紫外激光开展高空间分辨和高能量分辨磁畴结构研究成为可能.

## 6 总结与展望

基于磁二色效应的 PEEM 磁成像技术具有空间分辨率高、可实时成像以及对表面信息更为敏感等优势, 在使用波长为 177.3 nm、能量为 7.0 eV 的深紫外激光作为激发源后, 可成功克服传统 X-PEEM 技术依赖大型同步辐射装置的短板, 解决了目前磁性薄膜阈激发研究中由于光源能量低难以实现光电子直接激发的难题. 利用 DUV-PEEM 系统, 以垂直磁各向异性 FePt 薄膜为研究对象, 首次从实验上证明其在磁畴成像方面具备出色的分辨能力, 在普通实验室中实现了高分辨磁成像, 该技术有望成为未来磁性材料研究的重要手段.

本研究中采用超高真空分子束外延薄膜制备技术与光发射电子显微镜联合系统 (MBE-PEEM) 成功实现了高质量单晶外延薄膜制备、超高真空原位传输和高分辨磁畴成像三位一体的功能, 系统尽管刚安装和调试完毕, 却已经获得了空间分辨率优于 50 nm 的磁成像. 但需要指出的是, 该技术虽然在空间分辨率方面已经能够与 X-PEEM 处于同一水平, 但仍存在一些局限性. 由于光电子产生于近费米能级激发过程以及入射光子能量不可调等特点, 使其目前无法兼顾实现元素分辨功能及对自旋/轨道磁矩进行的定量分析, 例如: DUV-PEEM 的

磁畴图像中衬度标度与自旋的对应关系目前尚无法明确给出, 这方面工作还处于探索阶段. 此外, DUV-PEEM 的磁成像分辨率仍具有进一步提高的空间, 光源与电子光学系统的进一步完善可为该技术的改进提供更多的可能性. 前期的工作表明, 磁二色信号与磁性样品费米面附近的态密度密切相关, 因此利用费米面以下较小范围内 (如费米面下 0.5 eV) 的电子来成像才可能获得较高的空间分辨率. 遗憾的是本研究中的 DUV-PEEM 系统使用的深紫外激光能量为 7.0 eV, 远高于普通 3d 磁性金属的功函数 (约为 5.0 eV) 或者 FePt 合金薄膜 (大于 5.0 eV), 因此该深紫外激光作为激发源将激发出费米面以下更深能级的电子, 利用上述电子进行显微成像将大大降低其空间分辨率. 在未来的研究中, 我们拟通过 PEEM 系统中的能量选择器对激发出来的电子能量进行筛选, 最终进行磁成像, 有望获得更强的磁二色信号, 并进一步提高其空间分辨率和该技术对磁畴结构的解析能力.

此外, 近费米能级光电子激发的磁二色效应中蕴含着丰富的物理图像, 与材料的晶体结构、能带结构以及电子结构等关联密切, 同时自旋-轨道耦合作用的存在也使得光电子激发过程变得更为复杂, 对这一领域的很多问题目前还没有明确的定论, 更加深入的理论分析与精确的实验论证亟需展开, 特别是微磁学模拟与能带结构计算的结合, 预期可以对价带电子在近费米能级的能量状态与自旋相关的物理图像进行更为准确的分析.

## 参考文献

- [1] Hoffmann A, Bader S D 2015 *Phys. Rev. Appl.* **4** 047001
- [2] Wolf S A, Awschalom D D, Buhrman R A, Daughton J M, Von M S, Roukes M L, Chtchelkanova A Y, Treger D M 2001 *Science* **294** 1488
- [3] Osaka T, Takai M, Hayashi K, Ohashi K, Saito M, Yamada K 1998 *Nature* **392** 796
- [4] Ohnuma S, Fujimori H, Masumoto T, Xiong X Y, Ping D H, Hono K 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 946
- [5] Pan L, Bogy D B 2009 *Nat. Photonics* **3** 189
- [6] Tregenza T, Butlin R K, Wedell N 2000 *Nature* **407** 150
- [7] Allwood D A, Xiong G, Cooke M D, Faulkner C C, Atkinson D, Vernier N, Cowburn R P 2002 *Science* **296** 2003
- [8] Tudosa I, Stamm C, Kashuba A B, King F, Siegmann H C, Stöhr J, Ju G, Lu B, Weller D 2004 *Nature* **428** 831
- [9] Parkin S S P, Hayashi M, Thomas L 2008 *Science* **320** 190
- [10] Allwood D A, Xiong G, Faulkner C C, Atkinson D, Petit D, Cowburn R P 2005 *Science* **209** 1688
- [11] Jue E, Safeer C K, Drouard M, Lopez A, Balint P, Buda-Prejbeanu L, Bouille O, Auffret S, Schuhl A, Manchon A,

- Miron I M, Gaudin G 2016 *Nat. Mater.* **15** 272
- [12] Ma E Y, Cui Y T, Ueda K, Tang S, Chen K, Tamura N, Wu P M, Fujioka J, Tokura Y, Shen Z X 2015 *Science* **350** 538
- [13] Yoshimura Y, Kim K J, Taniguchi T, Tono T, Ueda K, Hiramatsu R, Moriyama T, Yamada K, Nakatani Y, Ono T 2015 *Nat. Phys.* **12** 157
- [14] Wagner K, Kakay A, Schultheiss K, Henschke A, Sebastian T, Schultheiss H 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 432
- [15] Currivan-Incorvia J A, Siddiqui S, Dutta S, Evarts E R, Zhang J, Bono D, Ross C A, Baldo M A 2016 *Nat. Commun.* **7** 10275
- [16] Jiang W, Upadhyaya P, Zhang W, Yu G, Jungfleisch M B, Fradin F Y, Pearson J E, Tserkovnyak Y, Wang K L, Heinonen O, te Velthuis S G E, Hoffmann A 2015 *Science* **349** 283
- [17] Hsiao C H, Yao Y D, Lo S C, Chang H W, Ouyang C 2015 *Appl. Phys. Lett.* **107** 142407
- [18] Pollath S, Wild J, Heinen L, Meier T N G, Kronseider M, Tutsch L, Bauer A, Berger H, Pfeleiderer C, Zweck J, Rosch A, Back C H 2017 *Phys. Rev. Lett.* **118** 207205
- [19] Cai K, Yang M, Ju H, Wang S, Ji Y, Li B, Edmonds K W, Sheng Y, Zhang B, Zhang N, Liu S, Zheng H, Wang K 2017 *Nat. Mater.* **16** 712
- [20] Je S G, Kim D H, Yoo S C, Min B C, Lee K J, Choe S B 2013 *Phys. Rev. B* **88** 214401
- [21] Welp U, Vlasko-Vlasov V K, Liu X, Furdyna J K, Wojtowicz T 2003 *Phys. Rev. Lett.* **90** 167206
- [22] Speckmann M, Oepen H P, Ibach H 1995 *Phys. Rev. Lett.* **75** 2035
- [23] Chen G, Ma T, N'Diaye A T, Kwon H, Won C, Wu Y, Schmid A K 2013 *Nat. Commun.* **4** 2671
- [24] Zhang S, Kronast F, van der Laan G, Hesjedal T 2018 *Nano Lett.* **18** 1057
- [25] Da Col S, Jamet S, Rougemaille N, Locatelli A, Mentès T O, Burgos B S, Afid R, Darques M, Cagnon L, Toussaint J C, Fruchart O 2014 *Phys. Rev. B* **89** 180405
- [26] Moubah R, Elzo M, El. Moussaoui S, Colson D, Jaouen N, Belkhou R, Viret M 2012 *Appl. Phys. Lett.* **100** 042406
- [27] Nolting F, Scholl A, Stöhr J, Seo J W, Fompeyrine J, Siegwart H, Locquet J P, Anders S, Lüning J, Fullerton E E, Toney M F, Scheinfein M R, Padmore H A 2000 *Nature* **405** 767
- [28] Zhao T, Scholl A, Zavaliche F, Lee K, Barry M, Doran A, Cruz M P, Chu Y H, Ederer C, Spaldin N A, Das R R, Kim D M, Baek S H, Eom C B, Ramesh R 2006 *Nat. Mater.* **5** 823
- [29] He Q, Chu Y H, Heron J T, Yang S Y, Liang W I, Kuo C Y, Lin H J, Yu P, Liang C W, Zeches R J, Kuo W C, Juang J Y, Chen C T, Arenholz E, Scholl A, Ramesh R 2011 *Nat. Commun.* **2** 225
- [30] Boule O, Vogel J, Yang H, Pizzini S, de Souza C D, Locatelli A, Mentès T O, Sala A, Buda-Prejbeanu L D, Klein O, Belmeguenai M, Roussigne Y, Stashkevich A, Cherif S M, Aballe L, Foerster M, Chshiev M, Auffret S, Miron I M, Gaudin G 2016 *Nat. Nanotechnol.* **11** 449
- [31] Cheng X M, Keavney D J 2012 *Rep. Prog. Phys.* **75** 026501
- [32] Wu Y Z 2010 *Physics* **39** 406 (in Chinese) [吴义政 2010 物理 **39** 406]
- [33] Kuch W, Schneider C M 2001 *Rep. Prog. Phys.* **64** 147
- [34] Kuch W, Gilles J, Kang S S, Imada S, Suga S, Kirschner J 2000 *Phys. Rev. B* **62** 3824
- [35] Kuch W, Dittschar A, Meinel K, Zharnikov M, Schneider C M, Kirschner J 1996 *Phys. Rev. B* **53** 11621
- [36] Stöhr J 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **200** 470
- [37] Andersson C, Sanyal B, Eriksson O, Nordstrom L, Karis O, Arvanitis D, Konishi T, Holub-Krappe E, Dunn J H 2007 *Phys. Rev. Lett.* **99** 177207
- [38] Yu P, Lee J S, Okamoto S, Rossell M D, Huijben M, Yang C H, He Q, Zhang J X, Yang S Y, Lee M J, Ramasse Q M, Erni R, Chu Y H, Arena D A, Kao C C, Martin L W, Ramesh R 2010 *Phys. Rev. Lett.* **105** 027201
- [39] Baruth A, Keavney D J, Burton J D, Janicka K, Tsybal E Y, Yuan L, Liou S H, Adenwalla S 2006 *Phys. Rev. B* **74** 054419
- [40] Bernien M, Miguel J, Weis C, Ali M E, Kurde J, Krumme B, Panchmatia P M, Sanyal B, Piantek M, Srivastava P, Baberschke K, Oppeneer P M, Eriksson O, Kuch W, Wende H 2009 *Phys. Rev. Lett.* **102** 047202
- [41] Park J, An K, Hwang Y, Park J G, Noh H J, Kim J Y, Park J H, Hwang N M, Hyeon T 2004 *Nat. Mater.* **3** 891
- [42] Ding H F, Dong G S, Jin X F 1998 *Physics* **27** 621 (in Chinese) [丁海峰, 董国胜, 金晓峰 1998 物理 **27** 621]
- [43] Rampe A, Güntherodt G 1998 *Phys. Rev. B* **57** 14370
- [44] Marx G K L, Elmers H J, Schönhense G 2000 *Phys. Rev. Lett.* **84** 5888
- [45] Arenholz E, van der Laan G, Chopdekar R V, Suzuki Y 2007 *Phys. Rev. Lett.* **98** 197201
- [46] Wu J, Choi J, Scholl A, Doran A, Arenholz E, Wu Y Z, Won C, Hwang C, Qiu Z Q 2009 *Phys. Rev. B* **80** 012409
- [47] Scholl A, Stöhr J, Lüning J, Seo J W, Fompeyrine J, Siegwart H, Locquet J P, Nolting F, Anders S, Fullerton E E, Scheinfein M R, Padmore H A 2000 *Science* **287** 1014
- [48] Ohldag H, Scholl A, Nolting F, Anders S, Hillebrecht F U, Stöhr J 2001 *Phys. Rev. Lett.* **86** 2878
- [49] Schwickert M M, Guo G Y, Tomaz M A, O'Brien W L, Harp G R 1998 *Phys. Rev. B* **58** 4289
- [50] Wadley P, Howells B, Železný J, Andrews C, Hills V, Champion R P, Novák V, Olejník K, Maccherozzi F, Dhessi S S, Martin S Y, Wagner T, Wunderlich J, Freimuth F, Mokrousov Y, Kuneš J, Chauhan J S, Grzybowski M J, Rushforth A W, Edmonds K W, Gallagher B L, Jungwirth T 2016 *Science* **351** 587
- [51] Sanchez-Barriga J, Varykhalov A, Springholz G, Steiner H, Kirchschrager R, Bauer G, Caha O, Schierle E, Weschke E, Unal A A, Valencia S, Dumst M, Braun J, Ebert H, Minar J, Golias E, Yashina L V, Ney A, Holy V, Rader O 2016 *Nat. Commun.* **7** 10559
- [52] Rodríguez A F, Nolting F, Bansmann J, Kleibert A, Heyderman L J 2007 *J. Magn. Magn. Mater.* **316** 426
- [53] Scholl A, Ohldag H, Nolting F, Stöhr J, Padmore H A 2002 *Rev. Sci. Instrum.* **73** 1362
- [54] Marx G K L, Jubert P O, Bischof A, Allenspach R 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 2925
- [55] Nakagawa T, Yokoyama T 2006 *Phys. Rev. Lett.* **96** 237402
- [56] Nakagawa T, Yokoyama T, Hosaka M, Katoh M 2007 *Rev. Sci. Instrum.* **78** 023907
- [57] Hild K, Maul J, Meng T, Kallmayer M, Schönhense G, Elmers H J, Ramos R, Arora S K, Shvets I V 2008 *J. Phys. Condens. Matter* **20** 235218
- [58] Hild K, Emmel J, Schönhense G, Elmers H J 2009 *Phys. Rev. B* **80** 224426
- [59] Nakagawa T, Watanabe K, Matsumoto Y, Yokoyama T 2009 *J. Phys. Condens. Matter* **21** 314010
- [60] Kronseider M, Minár J, Braun J, Günther S, Woltersdorf G, Ebert H, Back C H 2011 *Phys. Rev. B* **83** 132404
- [61] Taniuchi T, Kotani Y, Shin S 2015 *Rev. Sci. Instrum.* **86** 023701

- [62] Michaelson H B 1977 *J. Appl. Phys.* **48** 4729
- [63] Nakagawa T, Yokoyama T 2012 *J. Electron. Spectrosc.* **185** 356
- [64] Nakagawa T, Yamamoto I, Takagi Y, Yokoyama T 2010 *J. Electron. Spectrosc.* **181** 164
- [65] Xu Z Y 2009 *Chin. J. Las.* **36** 1619 (in Chinese) [许祖彦 2009 *中国激光* **36** 1619]
- [66] Chen C T, Lu J H, Togashi T, Sugauma T, Sekikawa T, Watanabe S, Xu Z Y, Wang J 2002 *Opt. Lett.* **27** 637
- [67] Ning Y X, Fu Q, Bao X H 2016 *Acta. Phys. Chim. Sin.* **32** 171 (in Chinese) [宁艳晓, 傅强, 包信和 2016 *物理化学学报* **32** 171]
- [68] Cao N, Fu Q, Bao X H 2012 *Bull. Chin. Acad. Sci.* **27** 103 (in Chinese) [曹凝, 傅强, 包信和 2012 *中国科学院院刊* **27** 103]
- [69] Zhao Y C, Lyu H C, Yang G, Dong B W, Qi J, Zhang J Y, Zhu Z Z, Sun Y, Yu G H, Jiang Y, Wei H X, Wang J, Lu J, Wang Z H, Cai J W, Shen B G, Zhan W S, Yang F, Zhang S J, Wang S G 2019 *Ultramicroscopy* **202** 156
- [70] Cui Y, Fu Q, Bao X 2010 *Phys. Chem. Chem. Phys.* **12** 5053
- [71] Zhao Y C 2019 *Ph. D. Dissertation* (Beijing: Institute of Physics, Chinese Academy of Science) (in Chinese) [赵云驰 2019 博士学位论文 (北京: 中国科学院物理研究所)]
- [72] Yang G, Li D L, Wang S G, Ma Q L, Liang S H, Wei H X, Han X F, Hesjedal T, Ward R C C, Kohn A, Elkayam A, Tal N, Zhang X G 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 083904
- [73] Hopster H, Oepen H P 2005 *Magnetic Microscopy of Nanostructures* (Berlin: Springer) p138
- [74] Stöhr J, Scholl A, Regan T J, Anders S, Lüning J, Scheinfein M R, Padmore H A, White R L 1999 *Phys. Rev. Lett.* **83** 1862
- [75] Taniuchi T, Yasuhara R, Kumigashira H, Kubota M, Okazaki H, Wakita T, Yokoya T, Ono K, Oshima M, Lippmaa M, Kawasaki M, Koinuma H 2007 *Surf. Sci.* **601** 4690
- [76] Schmidt T, Sala A, Marchetto H, Umbach E, Freund H J 2013 *Ultramicroscopy* **126** 23
- [77] Sandig O, Herrero-Albillos J, Römer F M, Friedenberger N, Kurde J, Noll T, Farle M, Kronast F 2012 *J. Electron. Spectrosc.* **185** 365
- [78] Lairson B M, Visokay M R, Sinclair R, Hagstrom S, Clemens B M 1992 *Appl. Phys. Lett.* **61** 1390
- [79] Cillessen J F M, Wolf R M, de Leeuw D M 1993 *Thin Solid Films* **226** 53
- [80] Nieuwenhuys B E, Sachtler W M H 1973 *Surf. Sci.* **34** 317
- [81] Holcomb M B, Martin L W, Scholl A, He Q, Yu P, Yang C H, Yang S Y, Glans P A, Valvidares M, Huijben M, Kortright J B, Guo J, Chu Y H, Ramesh R 2010 *Phys. Rev. B* **81** 134406
- [82] Sander A, Christl M, Chiang C-T, Alexe M, Widdra W 2015 *J. Appl. Phys.* **118** 224102

INVITED REVIEW

# High resolution imaging based on photo-emission electron microscopy excited by deep ultraviolet laser\*

Lü Hao-Chang<sup>1)2)#</sup> Zhao Yun-Chi<sup>2)#</sup> Yang Guang<sup>1)</sup> Dong Bo-Wen<sup>1)</sup>  
 Qi Jie<sup>1)</sup> Zhang Jing-Yan<sup>1)</sup> Zhu Zhao-Zhao<sup>2)</sup> Sun Yang<sup>2)</sup>  
 Yu Guang-Hua<sup>1)</sup> Jiang Yong<sup>1)</sup> Wei Hong-Xiang<sup>2)</sup> Wang Jing<sup>2)</sup>  
 Lu Jun<sup>2)</sup> Wang Zhi-Hong<sup>2)</sup> Cai Jian-Wang<sup>2)</sup> Shen Bao-Gen<sup>2)1)</sup>  
 Yang Feng<sup>3)</sup> Zhang Shen-Jin<sup>3)</sup> Wang Shou-Guo<sup>1)2)†</sup>

1) (*Department of Materials Physics and Chemistry, School of Materials Science and Engineering, University of Science and Technology Beijing, Beijing 100083, China*)

2) (*State Key Laboratory of Magnetism, Institute of Physics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

3) (*Key Laboratory of Functional Crystals and Laser Technology, Technical Institute of Physics and Chemistry, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100190, China*)

( Received 13 January 2020; revised manuscript received 14 February 2020 )

## Abstract

Magnetic imaging technology based on photo-emission electron microscopy (PEEM) has become an important and powerful tool for observing the magnetic domain in spintronics. The PEEM can get access to real-time imaging with high spatial resolution and is greatly sensitive to the spectroscopic information directly from the magnetic films and surfaces through photoemission process with variable excitation sources. Moreover, the breakthrough in the deep ultraviolet (DUV) laser technology makes it possible to realize domain imaging without the limitation of synchrotron radiation facilities or the direct excitation of photoelectrons due to the high enough photon energy of the source in the current threshold excitation study. In this review article, the deep ultraviolet photo-emission electron microscopy system is first introduced briefly. Then, a detailed study of the magnetic domain observation for the surface of  $L1_0$ -FePt films by the DUV-PEEM technique is presented, where a spatial resolution as high as 43.2 nm is successfully achieved. The above results clearly indicate that the DUV-PEEM reaches a level equivalent to the level reached by X-ray photoemission imaging technique. Finally, a series of recent progress of perpendicular FePt magnetic thin films obtained by the DUV-PEEM technique is provided in detail. For example, a stepped Cr seeding layer is used to form the large-area epitaxial FePt films with (001) and (111) two orientations, where magnetic linear dichroism (MLD) with large asymmetry is observed in the transition area of two phases. The signal of MLD is 4.6 times larger than that of magnetic circular dichroism. These results demonstrate that the magnetic imaging technology based on DUV-PEEM with excellent resolution ability will potentially become an important method to study magnetic materials in the future.

**Keywords:** photo-emission electron microscopy, deep ultraviolet laser, magnetic circular/linear dichroism, high resolution magnetic imaging

**PACS:** 68.37.Xy, 42.55.-f, 87.64.ku, 68.37.-d

**DOI:** 10.7498/aps.69.20200083

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51625101, 51961145305, 51971026, 51431009) and the Fundamental Research Fund for the Central Universities, China (Grant No. FRF-TP-16-001C2).

# These authors contributed equally.

† Corresponding author. E-mail: [sgwang@ustb.edu.cn](mailto:sgwang@ustb.edu.cn)