

圓形鑄型磁性薄膜中磁區翻轉之動態即時檢測

In Situ Imaging of Magnetization Reversal Process in Circular Patterned Magnetic Thin Film

郭政宜、吳仲卿

Cheng-Yi Kuo, Jong-Ching Wu

由於磁紀錄和磁感測相關元件深具潛力與應用價值，因此近年來磁膜中的微磁結構被廣泛的研究。在檢測磁膜微磁結構的技術中，磁力探針顯微儀為目前最佳的工具之一，該技術主要使用磁性探針，偵測薄膜表面的漏磁場強度，並將其強度以明或暗的對比表示。本文將介紹該技術，尤其應用在動態即時檢測磁區方面。檢測的樣品是以圓盤及圓環鑄型磁膜為例，其磁矩的排列會因為幾何形狀的影響，沿圓周邊緣排列形成渦旋態，幾乎沒有漏磁場，因此以磁力探針顯微術偵測其磁力影像，除了圓盤中央的渦旋中心可被磁針偵測到外，圓盤與圓環形的磁膜內沒有明暗對比。而透過外加磁場即時檢測磁膜內部的磁矩排列情況，我們得以觀測在不同外加磁場下，鑄型磁膜的即時磁力影像，藉以分析磁膜內磁區的翻轉行為。此類即時動態微磁影像的探究，將有助於磁元件的設計。

Due to practical potentials and applications on magnetic recording, field sensors and spin transistor, the magnetic domain structures of patterned magnetic thin films have been intensively investigated in the past decade or also. Magnetic force microscopy (MFM) is one of the commonly used techniques for detecting magnetization configuration in magnetic thin film, where MFM images the intensity variation of the field strayed from the sample surface. Thus, the stray field intensity sensed by the sharp magnetic probe is then displayed in bright and dark contrast. Herein, we introduce this MFM technique especially in the aspect of imaging the domain structures of disk- and ring-shaped magnetic thin films in-situ under an external magnetic field applied in the film plane. Notice that the magnetization of circular shape magnetic film orientates along the edges at remanent state to perform a flux closure domain, which is due to the shape effect. Consequently, there is no contrast on the MFM image except the vortex core in the central area of the disk shaped magnetic film. By applying an external magnetic field the magnetization configuration will start to evolve, thus the domain structures are successfully observed in high spatial resolution. This dynamic investigation of the magnetization reversal in the magnetic thin films may provide very useful information in designing the aforementioned devices.

一、前言

測量磁性薄膜磁特性常用的方法是振動樣品磁強計 (vibrating sample magnetometer, VSM)、交替梯度磁力儀 (alternate gradient magnetometer, AGM)、磁光柯爾效應 (magneto-optical Kerr effect, MOKE) 及磁阻 (magnetoresistance, MR)，但若想要明確了解磁膜內部的磁區結構及其翻轉情形，就必須要以磁力探針顯微鏡偵測其磁力影像。近年來為發展高密度磁性儲存記憶體，磁性元件必須要有可重複的翻轉行為及穩定的殘磁態，且要降低元件的漏磁場以減少元件與元件間的交互作用，圓形的元件就成了一种良好的選擇，因為圓形內部的磁矩會沿著圓周排列形成渦旋態，此封閉的磁化結構有最小的漏磁場。

在本文中我們將介紹以磁力探針顯微鏡觀測圓形磁性薄膜，如圓盤及圓環形鑄型磁膜，隨外加磁場變化時的磁區翻轉情形，以了解在圓盤及圓環內渦旋態生成、移動、消滅的方式，以及在翻轉過程中所形成的暫穩態之類型。除介紹單層圓形磁性薄膜的動態即時檢測磁區外，亦會介紹以目前應用廣泛的多層磁性薄膜製成的環形結構的動態即時檢測磁區。

二、原理簡介

以下我們將介紹磁力探針顯微鏡的操作原理及磁性薄膜形狀對磁區結構的影響。

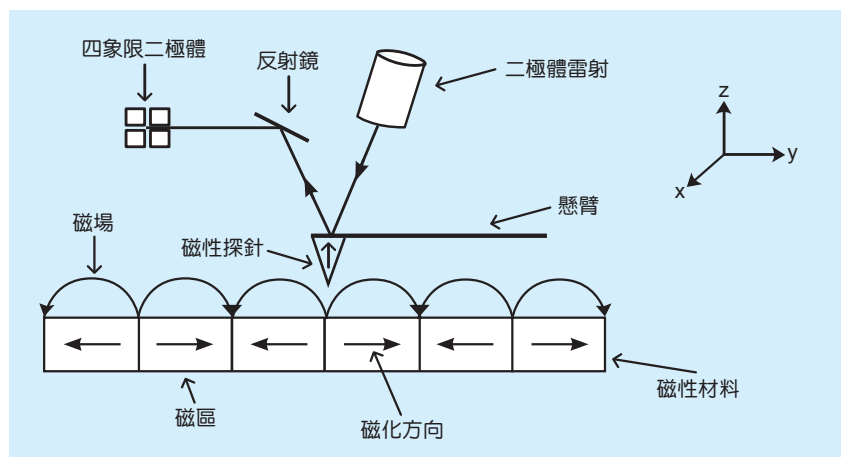
圖 1. 磁力顯微鏡偵測原理示意圖⁽¹⁾。打在探針的雷射光會被反射至四象限二極體上，當懸臂受力發生偏折時，反射至四象限二極體的雷射光位置亦會改變，此時透過回饋電路控制 z 軸，微調樣品與探針間距離，使掃描過程中兩者間交互作用力固定。

1. 磁力探針顯微鏡

磁力探針顯微鏡是掃描式探針顯微鏡的一種，主要用來觀測磁性薄膜中的磁區結構。其偵測方式是利用鍍有磁膜的微敲式探針接近待測磁膜的表面，藉由磁性探針與樣品之間的交互作用力使探針懸臂造成偏折，此時照射在感光二極體偵測器上的雷射光點發生偏移，再利用回饋電路控制具有三軸位移的壓電陶瓷掃描器的垂直位移，使得掃描過程中探針與樣品間的交互作用力維持固定，此時只要記錄掃描面上每點的垂直微調距離，便能得到影像，其裝置如圖 1 所示⁽¹⁾。

但樣品與探針間的作用力包含了凡得瓦力與磁力，因此為將所得訊號區分出表面高度變化與磁力訊號，必須使用兩段路徑的方式掃描，如圖 2 所示⁽¹⁾，在第一段掃描時，先以原子力顯微鏡 (atomic force microscope, AFM) 原理得到表面形貌，再以第一段掃描所得到的表面地形數據，將探針拉起一個固定的高度，使探針沿著第一段掃描的軌跡作第二次掃描，再記錄探針振動頻率、相位或振幅因磁力產生的變化，利用此種方式便可同時分別取得表面形貌影像及磁力影像。

由於磁針磁化方向垂直薄膜表面，因此可偵測磁膜中的垂直磁壁或漏磁場，而 MFM 所能偵測到的磁力梯度可達 10^{-6} N/m (與磁針表面所鍍磁性金屬有關)，對磁化結構的解析度大約在 50 nm 左右 (與所使用的探針針尖大小有關)，並且可以同時分析表面結構和磁區結構之間的關聯性。



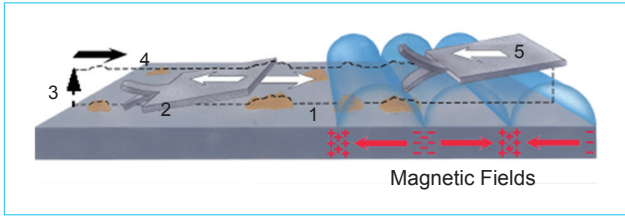


圖 2. 磁力顯微鏡兩段掃描示意圖⁽¹⁾。1、2 為第一段掃描路徑可取得表面形貌圖；3 為探針抬高的高度；4、5 則為第二段掃描路徑，即路徑與第一段掃描路徑相同，但向上位移了一個高度，可得到磁力影像。

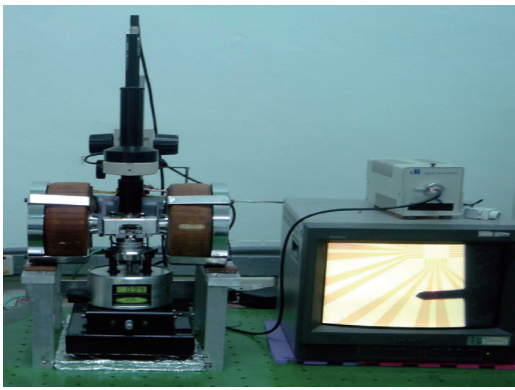


圖 3. Digital Instruments Nanoscope IIIa Multi-Mode 掃描式探針顯微鏡。在樣品載台外的電磁鐵可以提供穩定的水平磁場，而在載台上方的 CCD 訊號連接至右方的螢幕，可以在確認探針與待測樣品的位置。

為了即時偵測在外加磁場下的磁力影像，我們將本實驗室的 Digital Instruments Nanoscope IIIa Multi-Mode 掃描式探針顯微鏡的樣品載台外側加裝一組電磁鐵，如圖 3 所示，可以在掃描時提供最大 540 高斯的水平磁場。

2. 磁區結構的簡介

磁性薄膜的磁區排列方式會因其材料種類、大小及形狀而定，其排列方式會傾向使內部總磁能達到最低值，這就是形狀異向性，而磁能則包括交換能 (exchange energy)、異向能 (anisotropy energy)、靜磁能 (magnetostatic energy)、則曼能 (Zeeman

energy) 等。圖 4 為厚度 43 nm、大小不同的橢圓陣列磁力影像⁽²⁾，由圖中可看出，在長短軸比較大時，如 6×0.5 、 5×0.5 、 4×0.5 、 3×0.5 、 2.5×0.5 及 6×1 ($\mu\text{m} \times \mu\text{m}$) 的長橢圓，其磁區結構為單一磁區 (single domain)，在元件長軸的兩端有很強的漏磁場，因此磁力影像在長軸兩端有明顯的明暗對比。

當長短軸比縮小時，為降低磁膜內的總能量，磁膜中會出現磁區結構，如橫結磁區 (cross-tie)、渦旋磁區 (vortex)，或是橫結磁壁與多漩渦的混合態，其結構的形成是靜磁能與交換能競爭下的結果。而長短軸比接近 1 時，內部磁化會沿著圓周排列成渦旋態，中心會產生渦旋中心 (vortex core)，此時有最低的漏磁場，因此在圓形的內部無明暗對比，僅在渦旋中心形成一個亮點或暗點。

三、磁區翻轉情形

圓盤形與圓環形鑄型磁膜內部磁區結構會沿著圓周排列成渦旋態，當其受外加磁場影響時，磁膜內的渦旋中心會隨磁場變化而移動，因此可利用磁力探針顯微鏡即時檢測在外加磁場下圓形磁膜內的磁區情形，藉由觀測渦旋中心的移動方向，了解在殘磁態時渦旋態的旋向。以下將會介紹在不同材料、大小時，以磁力探針顯微鏡觀測渦旋態隨外加磁場的變化。

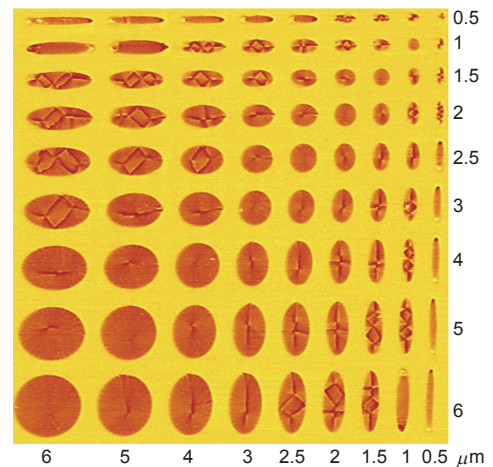


圖 4. 厚度 43 nm 鎳鐵橢圓陣列⁽²⁾。

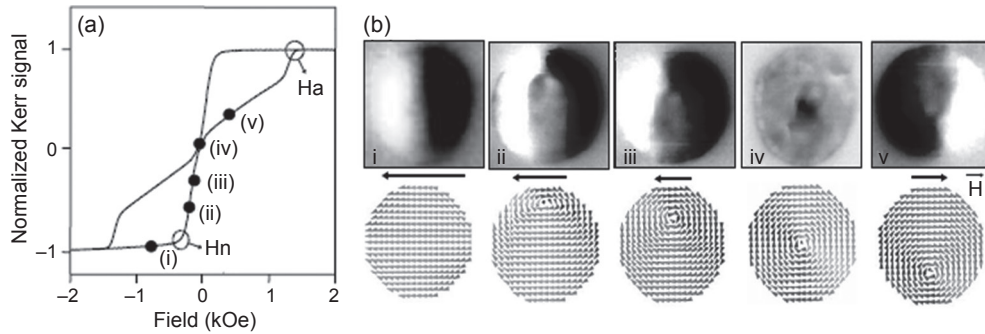


圖 5. (a) 厚度 30 nm、直徑 550 nm、間距 1500 nm 的鈷圓盤陣列以磁光科爾效應所測得的磁滯曲線。(b) 鈷圓盤的磁力影像及所對應的磁矩分布影像。圖中的 i 為飽和磁化態，即單一磁區結構；ii、iii、v 為變形的渦旋態；iv 為渦旋態。由於此圓盤陣列的間距大於直徑的 1 倍以上，因此可以忽略圓盤間的交互作用力，將其結果視同單一個圓盤的行為⁽³⁾。

1. 圓盤形磁性薄膜

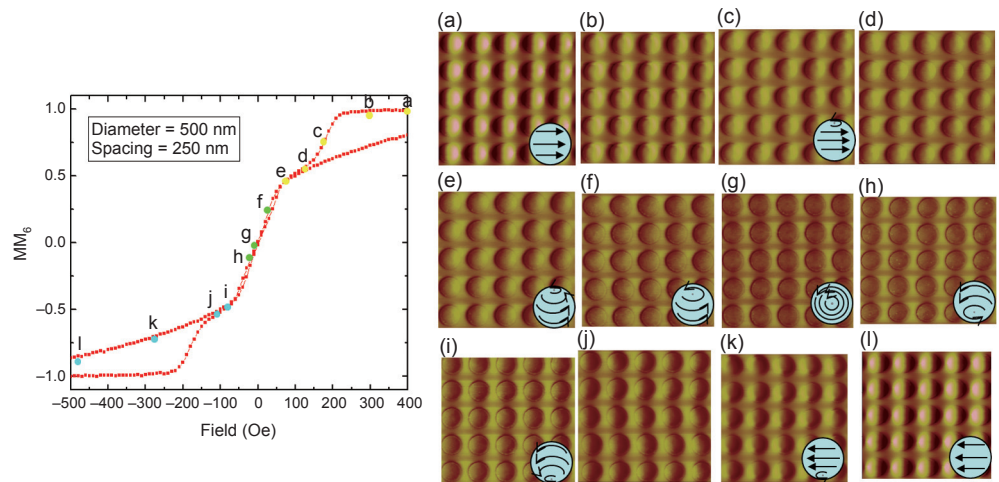
當圓盤形磁性薄膜置於外加磁場中，且有足夠磁場時，其磁區結構為飽和磁化態 (quasi-uniform state)，隨著磁場降低，圓盤內的磁矩會傾向沿邊緣排列，因此會在圓盤邊緣形成渦旋中心，並隨磁場降低而開始向圓心方向移動，其移動方向與外加磁場方向垂直，且當外加磁場降為零時，渦旋中心位置在圓盤的正中心，幾乎無漏磁場。

因此以磁力探針顯微鏡觀測到的磁力影像，如圖 5 所示⁽³⁾，在飽和磁化態時可觀測到圓盤分為兩對等分的明暗區域。在渦旋中心形成時，可觀測到僅在渦旋中心生成處有明暗對比，而在中心的另一邊緣的對比明顯降低；而當渦旋中心移至正中心時，由於除渦旋中心外，圓盤中的磁矩皆沿圓周排

成封閉渦旋，無漏磁場，因此磁針只會偵測到渦旋中心的訊號，故所得影像只會在圓盤中心有一個亮點或暗點。由圖 5 可發現該鈷金屬圓盤裡渦旋中心是由上而下的移動，因此可推測其形成渦旋態時的旋向是逆時針的旋轉方向。

當磁性圓盤陣列的間距變小，每一個圓盤內的磁矩翻轉行為會受到周圍圓盤的影響，在磁性圓盤間的交互作用下，使得渦旋中心隨磁場的移動速度不是等速移動，如圖 6 所示⁽⁴⁾，渦旋中心由圓盤上方形成後，移動約二分之一半徑的距離後有停滯的現象，因此在圖 6(d)、圖 6(e) 的渦旋中之位置無明顯改變，但圓盤內的明暗對比明顯降低，顯示在此過程中圓盤內的磁矩由平行外加磁場方向慢慢順著圓周排列，使得漏磁場大大降低。而在圖 6(e)

圖 6. 左圖為厚度 30 nm、直徑 500 nm、間距 250 nm 的鎳鐵圓盤陣列以交替梯度磁力儀測得的磁滯曲線。右圖為曲線中各點在同外加磁場下的磁力影像圖及內部磁矩排列示意圖⁽⁴⁾。



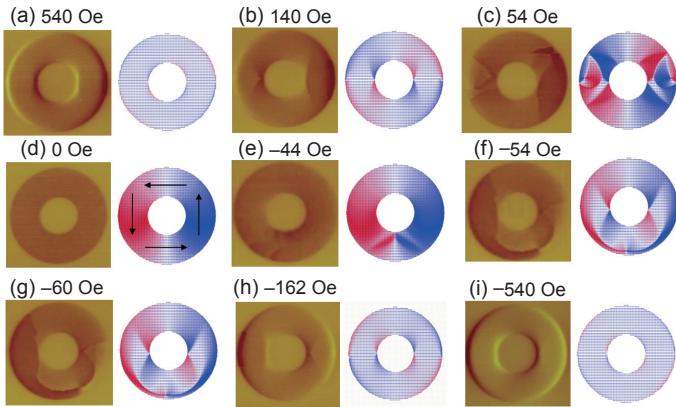


圖 7. 外徑 $5\ \mu\text{m}$ 、線寬 $1.4\ \mu\text{m}$ 、厚度 $23\ \text{nm}$ 的鎳鐵環形薄膜磁力影像及其微磁模擬圖，藍色表示向上的磁矩，紅色表示向下的磁矩⁽⁴⁾。

至圖 6(i) 中顯示在磁場正負 60 高斯範圍內，渦旋中心快速的由上半圓移至下半圓約二分之一半徑處後，才慢慢往邊緣移動並消失。

由以上兩個例子知道，藉由磁力探針顯微鏡取得在不同外加磁場下的即時影像，可以幫助我們了解磁性薄膜內的磁區排列結構及其翻轉情況，進而解釋所測得的磁滯曲線。

2. 鎳鐵圓環形鑄型薄膜

圓盤磁性薄膜的渦旋態會在中央形成渦旋中心，而渦旋中心是圓盤中唯一垂直膜面的磁化結構，若將圓盤中心挖空，形成環形結構，則磁膜內的磁矩會沿著圓周排列，形成渦旋態，此渦旋態不含渦旋中心，因此完全沒有漏磁場。而環形磁膜在外加磁場下的翻轉行為會因為外徑及線寬

大小有所不同，在其翻轉過程中可能出現的暫穩態，除渦旋態外，還有洋蔥態 (onion state)、渦旋對結構 (vortex-pair state) 及渦旋核結構 (vortex-core state)。

以外徑 $5\ \mu\text{m}$ 、線寬 $1.4\ \mu\text{m}$ 、厚度 $23\ \text{nm}$ 的鎳鐵環形薄膜為例⁽⁵⁾，它在外加磁場下的翻轉行為即包含上述幾個暫穩態，圖 7 為其磁力影像。在外加場為 $+540\ \text{Oe}$ 時其磁區結構為順著外加場方向的飽合磁化態，所以左半環與右半環都呈現右邊暗左邊亮的對比。隨著外加場減小，環的左右兩端開始出現一亮、一暗的三角區域，此區域為垂直磁壁，而這個狀態稱為洋蔥態。當外加場降至 $+54\ \text{Oe}$ 時，兩側的垂直磁壁開始轉變為渦旋磁壁，形成渦旋對結構，可看到磁力影像的左右兩端雖還是一亮一暗，但亮區及暗區內有蝴蝶結狀的磁區結構，且磁場繼續下降時渦旋磁壁會擴散開來。在進入殘磁態 ($0\ \text{Oe}$) 時，鎳鐵圓環已經進入沒有亮暗區別的渦旋態，此時其內部磁化方向皆沿著圓周繞成一圈排列。在 $-44\ \text{Oe}$ 時，可以發現在環的下方開始出現魚鱗狀的磁區結構，這表示在環的下方開始要形成渦旋結構 (nucleation)。在 $-54\ \text{Oe}$ 時，環下方出現了一個明暗對比相間的渦旋結構，這個狀態的磁區稱作渦旋核結構，而在這個磁區狀態後，隨著外加場的增加，這個渦旋磁區的兩翼也向環的兩端擴張，形成負方向的洋蔥態，到 $-540\ \text{Oe}$ 時，又形成負方向的飽合磁化態。

圖 8 為外徑 $5\ \mu\text{m}$ ，線寬為 1.0 、 0.8 、 0.5 、 $0.2\ \mu\text{m}$ ，厚度 $23\ \text{nm}$ 的鎳鐵環狀薄膜磁力顯微鏡影像⁽⁶⁾，由圖中可看出當線寬愈細，在翻轉過程中出現

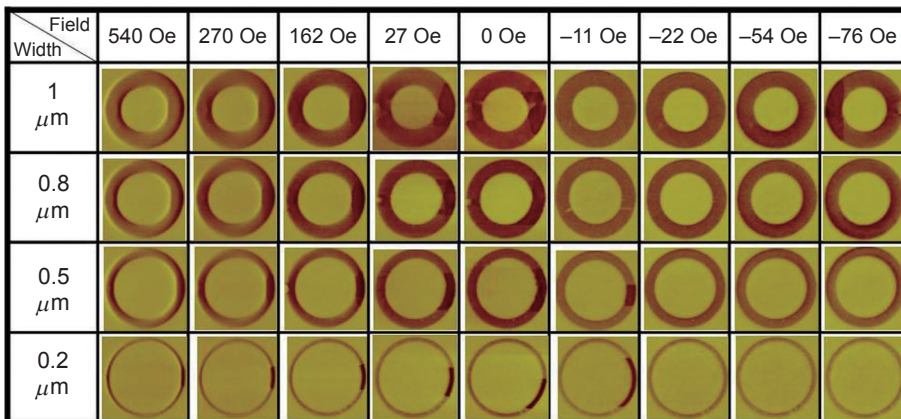
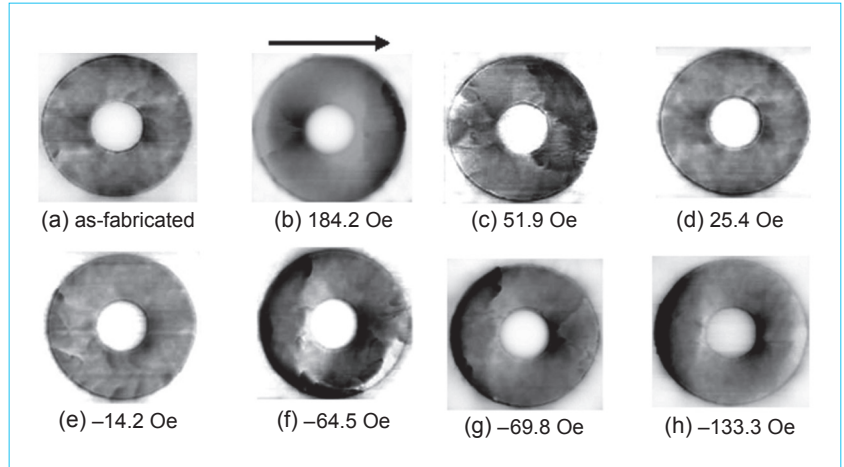


圖 8. 外徑 $5\ \mu\text{m}$ ，線寬 1.0 、 0.8 、 0.5 、 $0.2\ \mu\text{m}$ ，厚度 $23\ \text{nm}$ 鎳鐵環狀薄膜的磁力顯微鏡影像，外加磁場方向為水平方向⁽⁶⁾。

圖 9.

外徑 $4\ \mu\text{m}$ 、內徑 $1\ \mu\text{m}$ 的環形磁性穿隧結磁力影像，其薄膜結構為 Si/SiO₂-substrate/Ta 5/Cu 20/Ta 5/NiFe 2/Cu 5/MnIr 10/CoFe 4/Al-N 1.5/CoFe 4/NiFe 20/Ta 5-cap，厚度單位為奈米。(b)–(h) 為先施加 300 Oe 使其飽和後再降至圖中各磁場大小擷取磁力影像，而圖中箭頭為外加磁場的方向⁽⁷⁾。



的暫穩態就愈少，且即使不同線寬的鎳鐵環擁有相同的暫穩態，愈細的環就會愈慢進入該暫穩態中。

3. 環形磁性多層膜

近年來為發展磁阻式隨機存取記憶體 (magnetic random access memory, MRAM)，磁性多層膜如自旋閥薄膜 (spin valve) 及磁性穿隧結薄膜 (magnetic tunneling junction, MTJ) 被大量的研究，且為了提高磁記憶體的密度，降低元件本身的漏磁場以減少元件間的交互作用是必需的，此時環形結構就是個很好的選擇。

磁性穿隧結薄膜是一種磁性多層膜，其結構可簡單分為反鐵磁層 (antiferromagnetic)、固定層 (pinning layer)、絕緣層及自由層 (free layer)，其中固定層與自由層皆為鐵磁材料構成，固定層與反鐵磁層間的交換耦合作用 (exchange coupling) 使得固定層的磁化方向固定且不易受磁場影響發生磁化翻轉行為，而自由層則較易隨磁場變化而發生翻轉。當我們以磁力探針顯微鏡掃描磁性穿隧結薄膜時，探針所偵測到的訊號主要來自最上層的磁性薄膜，因此若要觀察自由層在不同外加磁場下的磁區結構，則自由層必須在最上層，我們才能夠偵測到自由層的磁力訊號。

圖 9 為外徑 $4\ \mu\text{m}$ 、內徑 $1\ \mu\text{m}$ 的環形磁性穿隧結在不同外加磁場下的磁力影像⁽⁷⁾。當磁性穿隧結薄膜以離子蝕刻製程製作成環狀結構，其自由層 (NiFe 4 nm/CoFe 20 nm) 的殘磁態為渦旋態，如

圖 9(a) 所示。在環形磁性穿隧結的外加磁場由 300 Oe 降至負方向磁場的過程中，所測得的磁力影像與上述的鎳鐵環形薄膜相同，因此可對照出圖 9(b) 為洋蔥態，圖 9(c) 為渦旋對結構，圖 9(d) 為渦旋態，圖 9(f) 為渦旋核結構，圖 9(g)、圖 9(h) 為反向洋蔥態。

由上述的研究我們可以了解，對於鐵磁性材料而言，環形結構中最穩定的磁區結構是渦旋態，因此環形的固定層在經過蝕刻製程後是否還保持在原本的方向就很值得再進行檢測。我們製作了只包含反鐵磁層及固定層的環形結構，並以磁力探針顯微鏡觀測其在無外加磁場時的磁區結構，如圖 10 所示⁽⁸⁾。我們可以看到圖中的環無論外徑及線寬是多

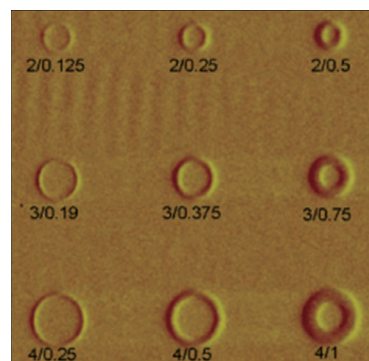


圖 10. 環形多層磁性薄膜在無外加磁場下的磁力影像。薄膜結構為 Ta 5 nm/NiFe 2 nm/Cu 5 nm/MnIr 10 nm/CoFe 4 nm/Ta 1 nm，圖中數字為圓環的外徑/寬，單位為微米⁽⁸⁾。

少，左半環與右半環均是左暗右亮，與鎳鐵圓環在大外加磁場下的形成飽和磁化態的對比相同，因此可確定每一個環內的磁化方向都是沿水平方向排列。

四、總結

以磁力探針顯微鏡檢測圓形磁性薄膜內的磁區結構及其隨磁場的翻轉行為，可在圓盤形單層磁性薄膜觀察到它由飽和磁化態到反向飽和磁化態的過程中會有渦旋中心的生成、移動及消滅，且渦旋中心的移動路徑與外加磁場方向垂直，由這些影像可以分析出在外加磁場影響下磁性圓盤內磁區的變化情形。

而對於圓環形磁性薄膜，無論是單層磁性薄膜或是磁性穿隧結薄膜的自由層，皆可觀測到洋蔥態、渦旋對結構、渦旋態及渦旋核結構的磁力影像，而這些結構的生成則與圓環外徑及線寬大小有關。

參考文獻

1. Digital Instruments (DI) 操作手冊.
2. 謝蔚諮, 奈米磁性薄膜磁矩翻轉行為研究, 彰化師大物理研究所碩士論文, 42 (2001).

3. M. Natali, *et al.*, *Physical Review Letters*, **88**, 157203 (2002).
4. 蔡郁菁, 奈米鎳鐵點陣列之磁化翻轉行為研究, 彰化師大物理研究所碩士論文, 42 (2008).
5. L. K. Lin, *et al.*, *Phys. Stat. Sol. (c)*, **4**, 4360 (2007).
6. 林呂圭, 鎳鐵環狀薄膜磁區翻轉及磁阻之研究, 彰化師大物理研究所碩士論文, 81 (2005).
7. C. C. Chen, *et al.*, *IEEE Transactions on Magnetics*, **42**, 2766 (2006).
8. C. C. Chen, *et al.*, *Japanese Journal of Applied Physics*, **48**, 053001 (2009).



郭政宜小姐現為國立彰化師範大學物理所博士候選人。

Cheng-Yi Kuo is currently a Ph.D. candidate in the Department of Physics at National Changhua University of

Education.



吳仲卿先生為美國奧勒岡大學物理學博士，現任國立彰化師範大學物理系教授。

Jong-Ching Wu received his Ph.D. in physics from University of Oregon, USA. He is currently a professor in the Department of Physics at National Changhua University of Education.