

高深寬比磁性奈米管磁力影像 擷取技術

Magnetic Force Microscopy of High Aspect Ratio Magnetic Nano-Cylinder Structure

郭政宜、黃郁宸、吳仲卿

Cheng-Yi Kuo, Yu-Chen Huang, Jong-Ching Wu

以掃描探針顯微鏡掃描高深寬比元件時，容易造成影像失真，甚至發生破壞樣品及探針的情況。在本文中，我們利用填充光阻輔助平坦化的方式，在不影響原本的磁性薄膜結構下，大幅降低高深寬比磁性奈米管與周遭的高低差，並成功擷取管端表面的磁力顯微影像。由於此結構為三維的磁性元件，因此在其翻轉過程中，管端表面之暫穩態不同於薄磁性環的典型漩渦態，而是兩組頭對頭與尾對尾的垂直磁區壁結構。模擬的磁區動態翻轉與磁力顯微儀的實驗結果相吻合。

When the high aspect ratio of magnetic nano-cylinder structures are probed by magnetic force microscopy (MFM), the distorted images are often observed and yet the samples/tips are easily destructed mutually. In order to solve this problem, we report a technique of planarizing magnetic nano-cylinder array by spin-coating photoresist. The height difference of the nano-cylinder from the surrounding is greatly reduced and the corresponding magnetic images are successfully obtained. Due to the nature of a three-dimensional magnetic configuration, it is obviously found that the intermediate state of the top end reveals two head-to-head and tail-to-tail transverse domain walls rather than a typical flux-closure vortex state in thin magnetic rings. The experimental results are well fitted with numerical simulations.

一、前言

磁力探針顯微鏡常用來觀測磁性薄膜表面的磁區結構，多年來已成為了解磁區翻轉行為的一大利器，在以往的研究中，常見用於了解二維圖案化磁性薄膜中的磁化翻轉情況，但是磁性薄膜的高低差通常僅數十奈米。然而隨著製程技術的進步，研究的領域由二維結構逐漸往三維的結構發展，若要利

用磁力探針顯微鏡探測三維磁性材料的磁區分布情況，就必須改善使用探針掃描高低差大的表面時會遇到的問題，如影像形狀失真及易刮傷樣品等問題。所以在本文中，我們將會介紹掃描高深寬比磁性元件時常見的問題，以及如何利用填充光阻平坦化樣品的技術，取得高深寬比磁性奈米管端的磁力影像，克服大高低差所造成的掃描問題。

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 (與探針表面磁性金屬的飽和磁化量有關)，對磁區結構的橫向解析度大約在 50 nm 左右 (與探針針尖大小有關)，並且可以同時分析表面形貌和磁區結構之間的關聯性。

為了即時偵測在外加磁場下的磁力影像，我們將一組自製的電磁鐵加裝在本實驗室的 Digital Instruments Nanoscope IIIa Multi-Mode Scanning Probe Microscope 掃描式探針顯微鏡的樣品載台外側，如圖 2 所示，在樣品的範圍內可以提供均勻的磁場，由於電磁鐵鐵心距離的限制，目前可提供最大約 ± 540 高斯的水平磁場。

2. 磁性環薄膜中的磁區結構

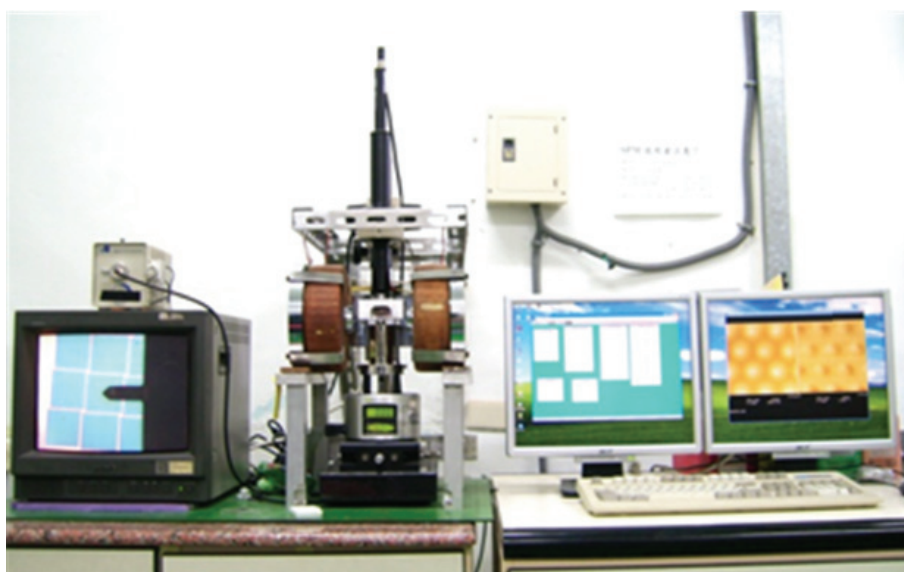
在環形磁性薄膜中，由於其特殊的幾何形狀，目前已經有數種典型的磁區結構被提出，而環型的幾何條件包括直徑、厚度以及相對的比例，將會主導磁區結構的排列以及隨磁場變化的演進情形。以圖 3 為例，分別是一系列的磁力顯微影像以及相對應的微磁學模擬結果⁽²⁾，環形薄膜的外徑和內徑分別為 5.0 微米以及 2.2 微米，厚度為 23 微米，磁場範圍從 +540 Oe 變化到 -540 Oe。圖 3(a) 為一個飽和磁化狀態，在外加磁場 540 Oe 時磁化方向都沿著外加磁場的方向，所以在左右兩側的邊緣都可以觀察到明顯的亮暗對比。當外加磁場降低時，環形的左右兩端分別出現一亮一暗的區域，如圖 3(b)，

這個對比是由垂直磁壁所造成的，除了兩端之外，其餘的地方並無明顯的對比，這是因為磁化方向順著環形排列幾乎無漏磁場，這個磁區結構排列狀態稱為洋蔥態。當磁場再降低至 54 Oe 時，兩側的垂直磁壁逐漸轉變成渦旋磁壁，而其他的區域大致不變，此狀態稱為漩渦對態，如圖 3(c)。在無外加磁場的殘磁態狀況下，它會形成一個封閉的磁區，漏磁場為零，所以整體的對比都是相同的，稱為漩渦態，如圖 3(d)。當磁場往負方向增加，在環形的下方出現一個渦旋核的狀態，如圖 3(e)，在以往的文獻⁽³⁾ 中，這個狀態通常發生在線寬較大的環形薄膜。當磁場繼續往負方向增加，磁區結構就會再回到洋蔥態及飽和磁化態。

由於磁性鑄型薄膜具有形狀異向性，所以當線寬愈粗或是膜厚愈厚，在翻轉過程中就會有愈多種磁區結構的變化，而圖 3 則包含了目前環形磁性薄膜中會形成的磁區結構。在過往的研究中⁽³⁾，當環的半徑愈小或線寬愈細，其翻轉過程會簡化到只有洋蔥態及漩渦態，但這些環形結構的膜厚都在數 10 奈米左右，可視為 2 維系統，因此，若將線寬縮小至 20 奈米，膜厚增至數百奈米，讓環形結構變成 3 維的系統，磁區壁的移動或變化將不再只受限在平面的環形上，亦會在環的側壁上移動，那麼在環形上表面觀測到的磁力影像是否還是如圖 3 中磁區結構，亦或有新的磁區結構出現，則是我們在本文中將要探討的。

圖 2.

Digital Instruments Nanoscope IIIa Multi-Mode Scanning Probe Microscope 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。



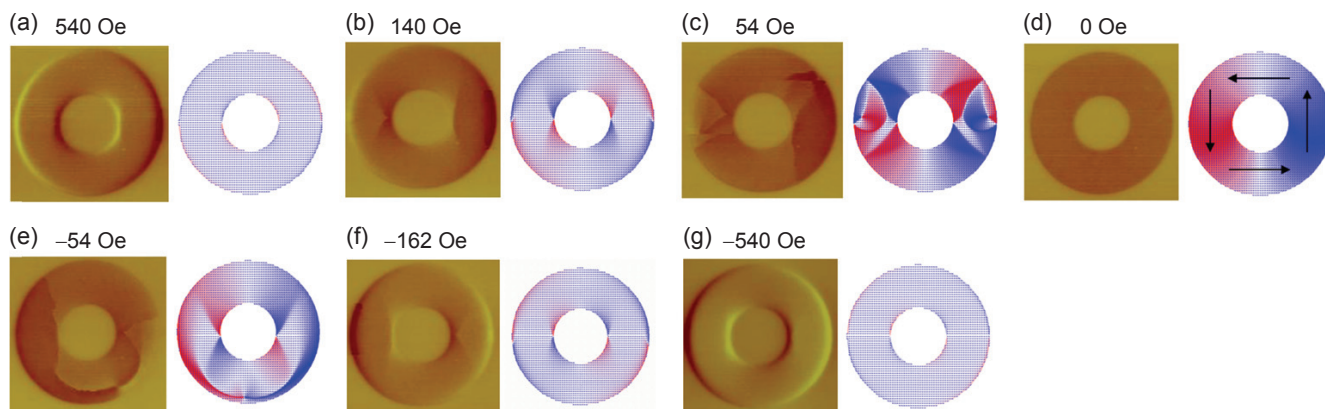


圖 3. 外徑 5.0 微米、內徑 2.2 微米、厚度為 23 奈米的鎳鐵環形薄膜在不同外場下的磁力影像與微磁模擬的磁區影像⁽²⁾。其狀態分別為 (a) 飽和態 (quasi-uniform state)，(b) 洋蔥態 (onion state)，(c) 漩渦對態 (vortex-pair state)，(d) 漩渦態 (flux-closure vortex state)，(e) 漩渦核態 (vortex-core state)，(f) 反向洋蔥態 (reverse onion state)，(g) 反向飽和態 (reverse quasi-uniform state)。

3. 磁性管狀結構的磁化翻轉情況

在近年的研究中⁽⁴⁾，有學者利用陽極氧化鋁 (AAO) 做為模板鍍製奈米鈷管，如圖 4(a)，其外徑為 115 奈米，管壁厚度為 15 奈米，深寬比可達到 1000，可視為無限長的管狀結構。利用超導量子干涉儀測量該樣品的磁特性，如圖 4(b)，發現無論外加磁場是沿 x 軸或是 z 軸方向，其磁滯曲線皆為 S 狀，這是因為磁性管的殘磁態為螺旋態 (curl

mode)，如圖 4(b) 中的示意圖。因此若取單一奈米鈷管做磁力探針顯微鏡的掃描，如圖 4(c) 及 (d)，會由於螺旋態屬於封閉磁區，使得磁力影像呈現無明顯對比的狀態。

在本文中我們所要探討的磁性元件是介於 2 維環形薄膜與無限長管狀結構間的 3 維有限長磁性奈米管，並取得奈米管上端的磁力影像，以了解磁性奈米管在不同外加磁場下的翻轉情形。

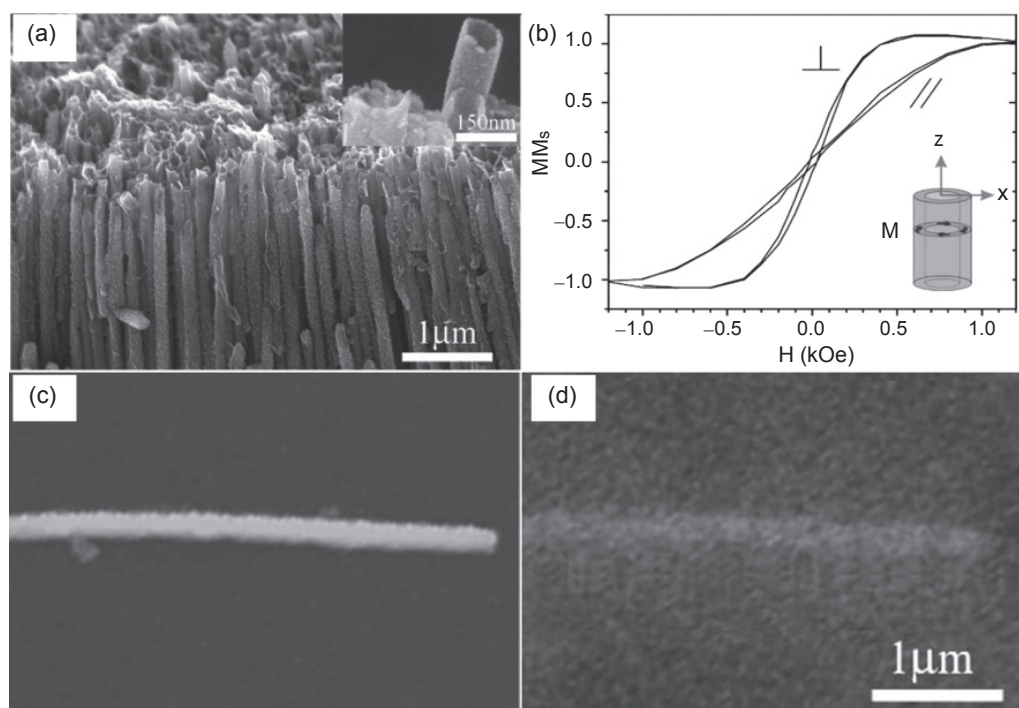


圖 4. (a) 高深寬比奈米鈷管電子顯微影像，其外徑為 115 奈米，管壁 15 奈米。(b) 以超導量子干涉儀測得的磁滯曲線，其中 \perp 表示磁場沿 x 軸方向， \parallel 表示磁場沿 z 軸方向。以磁力探針顯微鏡掃描單一平躺於矽基板上的奈米鈷管，可得到 (c) 表面形貌圖，與 (d) 磁力影像圖⁽⁴⁾。

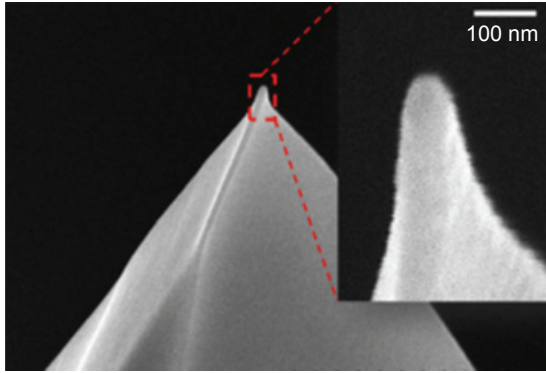


圖 5. 商用磁性探針 (PPP-MFMR) 的電子顯微鏡影像。由圖可知此探針頭寬度約 50 奈米，而針尖較細的長度約為 200 奈米，且探針形狀接近三角錐狀。

三、樣品高度對掃描影像的影響

在磁區結構研究的發展中，隨著製程技術的進步，研究的方向逐漸從平坦的薄膜進展到有高低差的磁性元件，而當磁性元件逐漸縮小或增厚時，所取得的影像就容易受探針影響。以下將會介紹磁膜高度對掃描影像的影響及改善的方式。

1. 磁膜高度對影像的取得的影響

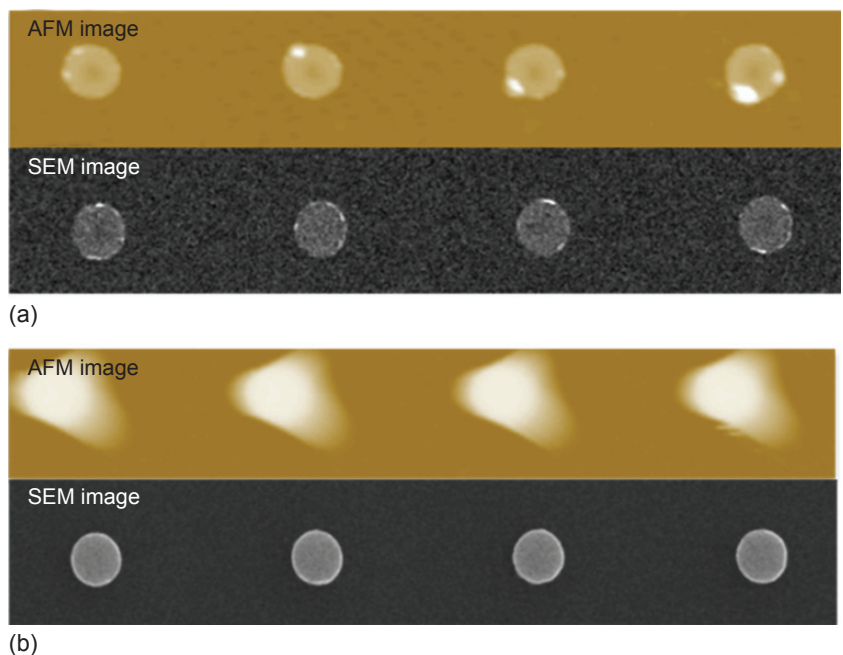
探針顯微影像的品質與所使用的探針粗細有關。圖 5 為商用磁性探針 (PPP-MFMR) 的電子顯

微鏡影像及其針尖放大圖，由此圖可知探針尖端的寬度約為 50 奈米，而針尖細長部分的長度約 200 奈米，因此當我們以此探針掃描一般的樣品，如圖 6(a)，其薄膜厚度為 30 奈米，直徑 350 奈米的圓形鎳鐵薄膜，探針影像與電子顯微影像都能正確的顯示出圓形的結構。但是，當掃描元件換成高度 500 奈米的圓形鎳鐵元件時，如圖 6(b)，探針影像已明顯變形，僅在高度最高處還可看到圓形的形狀，但整體形狀呈現三角形狀，這是因為其高度已超過針尖前端細長的部分，而探針主體為三角錐狀，因此在元件實際位置的外圍的影像皆是受探針形狀影響而產生的失真影像，使得元件形狀變成三角形而非原本的圓形，這種現象容易發生於高深寬比的圓柱或是圓洞的掃描上。

除掃描影像會失真外，在掃描高深寬比元件時也會遇到探針與樣品互相損壞的情形，如果被掃描的元件較為堅硬，探針頭容易被磨損；被掃描的元件表面較軟，則樣品容易被探針刮傷。圖 7 為掃描過的磁性探針和鎳鐵奈米管陣列，該奈米管的內徑為 260 奈米，外徑 300 奈米，高度 300 奈米，管的中心處為負電子阻劑，即該掃描元件為被鎳鐵金屬包覆的電子阻劑。由圖 7(a) 可看到，在掃描過後，探針頭尖端最細的部分已被磨損，且探針上也沾黏上所掃描的元件，因此該探針掃描的解析度會變低，且由於上面沾黏的是磁性材料，所以也會影

圖 6.

(a) 直徑 350 奈米、高度 30 奈米圓形鎳鐵薄膜的原子力顯微影像 (上) 及電子顯微影像 (下)。由於薄膜厚度不高，所以原子力顯微影像還能正確顯示出元件的表面形貌。(b) 直徑 350 奈米、高度 500 奈米圓形鎳鐵薄膜的原子力顯微影像 (上) 及電子顯微影像 (下)。由於元件高度過高，從原子力顯微鏡所顯示的表面形貌已經失真，其三角狀的形狀是反應出所以用的探針形狀。



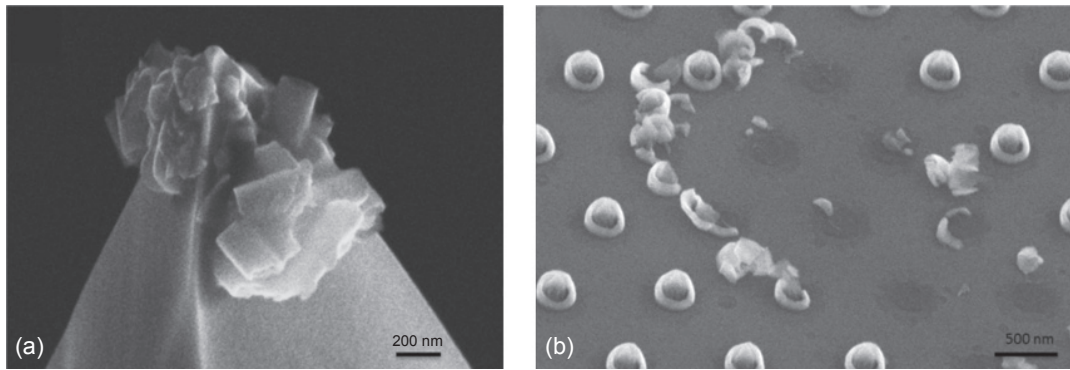


圖 7. (a) 掃描高深寬比磁性奈米管陣列後，探針的電子顯微影像。可看到探針上沾黏上許多所掃描的磁性元件，且針尖最細的部分也被磨掉了。(b) 以磁性探針掃描後的高深寬比磁性奈米管陣列，圖中黑點為被刮起元件的殘留物。

響到磁力影像的訊號。圖 7(b) 為被掃描過樣品傾斜 30 度的電子顯微影像，可看到被掃過區域上的元件有些被整個刮除，僅剩一點點的負阻劑殘留在上面，而掃描區域邊緣的元件則是被探針劃開，所以在元件的位置上僅剩一半的鎳鐵環及負阻劑，而邊緣也有被探針破壞後推至旁邊的鎳鐵環的部分碎片。

所以要掃描高深寬比磁性元件的磁力影像，首先就必須先克服元件高低差所造成的破壞，我們才有機會取得該樣品的磁力訊號。

2. 解決高低差的方法

為降低樣品的高低差，我們在待掃描的樣品上塗布電子束微影術所使用的電子阻劑，將樣品填平，而阻劑的種類及塗布轉速，則可依樣品的高低差做合適的選擇。圖 8 為待掃磁力影像的高深寬比磁性奈米管陣列，內徑為 260 奈米，外徑 300 奈米，高度 420 奈米，它是以電子束微影術在基板上先製作出負電子阻劑 (ma-N2405) 的圓柱陣列，隨後濺鍍上厚度 20 奈米的鎳鐵合金，再利用離子蝕刻機將基板及圓柱上方的鎳鐵去除，留下圓柱邊緣

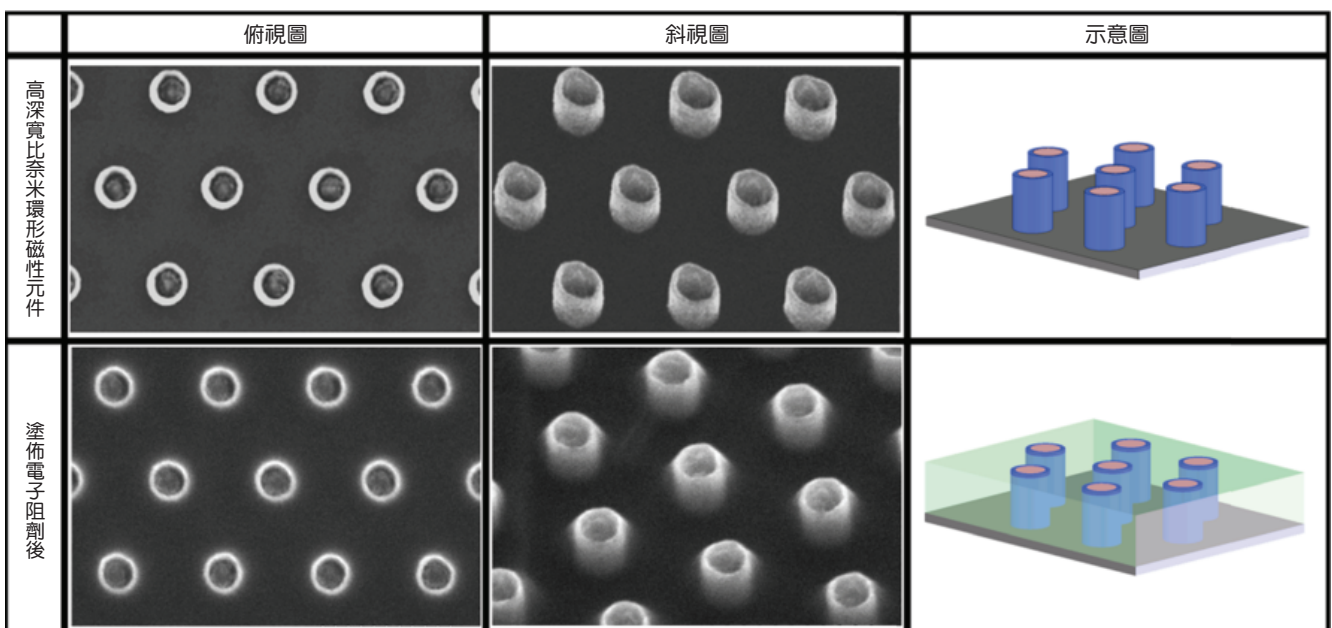
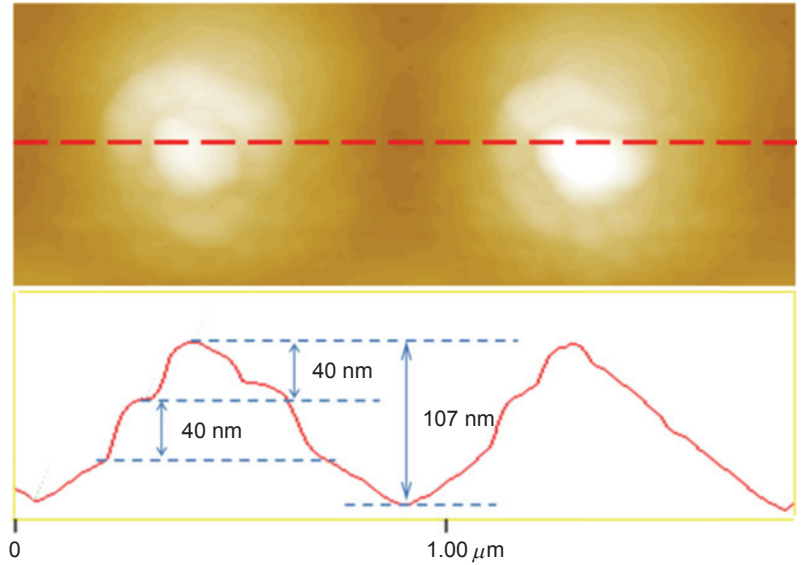


圖 8. 高深寬比奈米磁性環形陣列的電子顯微影像，其內徑為 260 奈米，外徑 300 奈米，高度 420 奈米，側視圖為傾斜 30 度所拍攝的影像。

圖 9. 塗佈電子阻劑 (6% PMMA) 後的高深寬比磁性奈米管陣列的原子力顯微影像。上圖為表面形貌圖，下圖為紅色虛線處的剖面圖。



的鎳鐵薄膜，形成高深寬比的磁性奈米管，且由於元件高度為 420 奈米，我們選擇正電子阻劑 (6% PMMA) 做為填平劑，因為它塗布後的厚度約為 400 奈米左右。由圖 8 的塗布後的斜視圖可看出元件周圍已填滿電子阻劑，僅露出奈米管上端一小部分。

由圖 9 的原子力顯微影像圖可看出，塗布後的表面並非完美的平面，但已把高低差由原本的 420 奈米降至 107 奈米。而由於磁性奈米管經過離子蝕刻，所以上端並非完美的斷面，且電子阻劑亦無完整包覆環形元件，所以圖 9 的表面形貌圖所呈現的不是如圖 8 電子顯微影像的完美環形結構。

四、高深寬比磁性奈米管之磁力影像

為了解高深寬比磁性奈米管陣列在外加磁場下的翻轉情況，我們先以磁光科爾效應 (magneto-optical Kerr effect, MOKE) 測量該陣列的磁滯曲線，如圖 10(a)。從磁滯曲線可發現在翻轉過程中有暫穩態的形成，但由於此結構與本文一開始所介紹的環形最大的不同在於其線寬只有 20 奈米，且高度有 420 奈米，屬於高深寬比管狀結構，因此為進一步了解其磁化翻轉情況，我們亦以磁性模擬軟體 (object oriented micro magnetic framework, OOMMF) 模擬該結構的磁滯曲線及內部磁矩的排

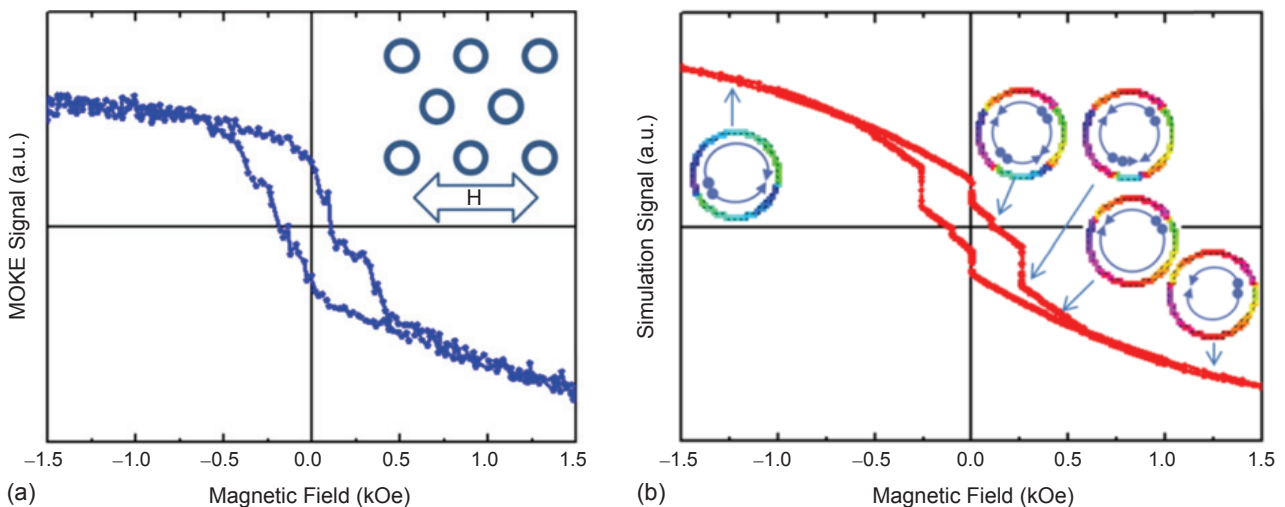


圖 10. 高深寬比磁性奈米管陣列的磁滯曲線⁽⁵⁾。(a) 以磁光科爾效應 (MOKE) 所測得的磁滯曲線，外加磁場方向如內部圖示。(b) 以磁性模擬軟體 (OOMMF) 所模擬出的磁滯曲線與上緣的磁矩排列狀況。

列情形，如圖 10(b) 所示。由模擬圖可發現暫穩態形成時，磁性奈米管的上方形成了兩組頭對頭及尾對尾的垂直磁壁結構，當磁場逐漸加大，其中一組頭對頭及尾對尾的垂直磁壁 (兩磁壁間的磁矩方向與外加磁場方向相反) 會互相靠近，進而相消，使得整體的磁區結構形成反向的洋蔥態⁽⁵⁾。

圖 11 是以電子阻劑填平後的高深寬比磁性奈米管陣列之磁力顯微影像⁽⁶⁾，外加磁場由 -530 Oe 降至零後，再加至 $+514$ Oe，而圖中的對比則定義亮處為 S 極，暗處為 N 極。在磁場為 -530 及 $+514$ Oe 時，其狀態是飽和磁化態，所以可看到元件呈現一半亮一半暗的狀態。當磁場開始下降到 -61 Oe 時，狀態變成洋蔥態，管端的對比變小，只剩左右兩端有垂直磁壁。但值得注意的是兩個磁壁的位置並非在 x 軸上 (圓的 0 度與 180 度的位子上，角度為與正 x 軸的夾角)，而是在圓的 225 及 315 度的位置，如圖中的示意圖所示。當磁場降為 -17 Oe 時，上端 $1/4$ 的磁矩發生翻轉，使它形成

兩組頭對頭及尾對尾的垂直磁壁結構，即在 45 及 225 度處是亮對比， 135 及 315 度處是暗對比，而此狀態會一直維持到 56 Oe 時，下端 $1/4$ 處與外場相反方向的磁區會慢慢縮小，因此管端的下半部磁力影像的對比會慢慢變弱。至 80 Oe 時，位在管端下方的一組頭對頭及尾對尾的垂直磁壁會完全相消，形成反向的洋蔥態，此時剩下的一組頭對頭及尾對尾的垂直磁壁會在圓的 45 及 135 度的位子上，所以我們可看到磁力影像中僅剩管端的上半部還可看到的明暗的對比，而隨磁場持續加大至 514 Oe，此奈米鐵環會形成反向飽和磁化態。

若比較圖 10(b) 中的模擬結果與圖 11 的磁力顯微影像，可發現結果相當符合。一般低維度的磁性環形元件，若線寬很細 (如數十奈米) 時，通常翻轉過程會由洋蔥態到封閉渦旋態，再到反向的洋蔥態，過程中元件中不會出現多磁區的現象，但在高深寬比鐵環元件中，可發現在磁化翻轉過程中會出現兩組頭對頭及尾對尾的垂直磁壁。這是

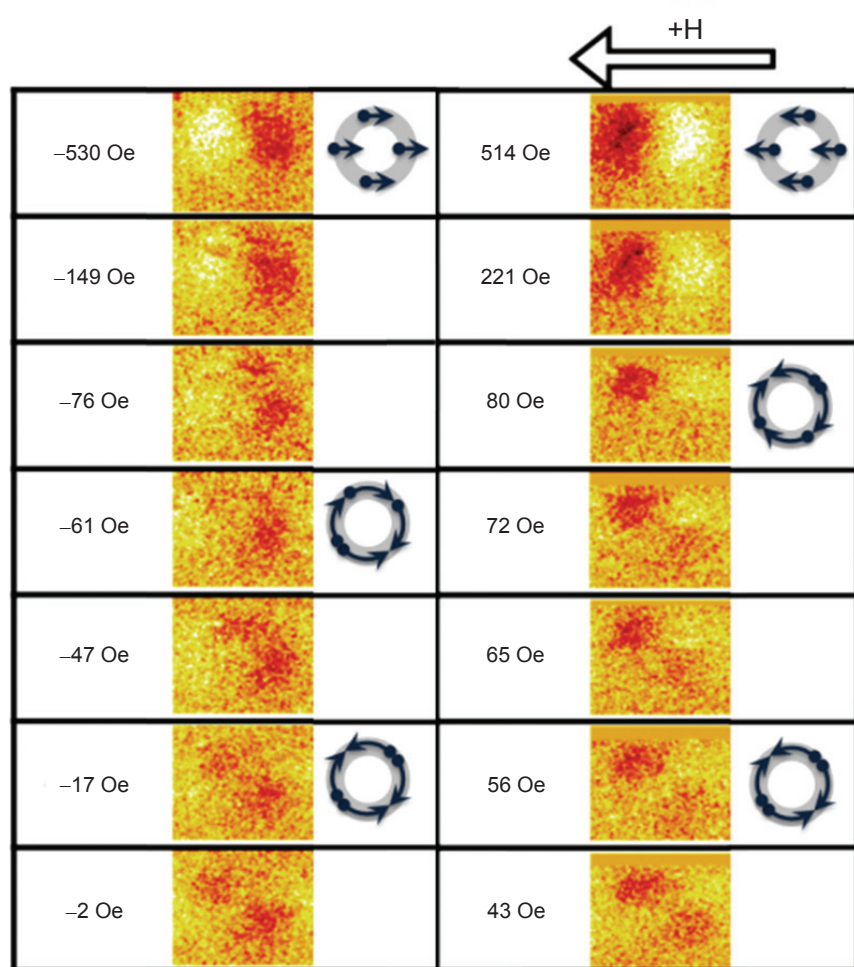


圖 11. 高深寬比磁性奈米管陣列的磁力顯微影像⁽⁶⁾，掃描元件為圖 9 中左側的元件。外加磁場方向如上端所示，磁場大小由 -530 Oe 逐漸降低到 -2 Oe 後，再往正方向增加到 514 Oe。

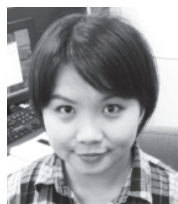
因為在磁化翻轉過程中，環形的側壁上也有磁區壁的生成與移動 (由 3D-OOMMF 模擬得知)，進而影響到環形上表面的翻轉行為。

五、總結

利用阻劑坦平化的方式，縮小高深寬比磁性樣品與周遭的高度差，可以讓我們順利取得高深寬比磁性奈米管的磁力影像，並發現其磁化翻轉過程中會出現二組頭對頭與尾對尾的垂直磁壁結構，且形成洋蔥態時，兩端的垂直磁壁並非是水平對稱。這些結果都是因為在三維磁性薄膜中，管壁上的磁區壁移動與生成，直接影響到管端磁區結構的變化，而如何進一步利用磁力探針顯微鏡取得管壁上的磁力影像，將會是另外一種挑戰。

參考資料

1. Digital Instruments (DI) 操作手冊。
2. L. K. Lin *et al.*, *Phys. Stat. Sol. (c)*, **4**, 4360 (2007).
3. 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)。
4. Dongdong Li *et al.*, *Adv. Mater.*, **20**, 4575 (2008).
5. Y. C. Huang *et al.*, *J. Vac. Sci. Technol. B*, **30**, 06FF07 (2012).
6. Y. C. Huang *et al.*, *Journal of Applied physics*.



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.



黃郁宸先生為國立彰化師範大學光電科技研究所碩士。

Yu-Chen Huang received his M.S. in photonics from 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.