

Fe-Ni 合金薄膜的结构和磁性

李晓红 杨 正[†]

(兰州大学磁性材料研究所, 兰州 730000)

(2003 年 7 月 18 日收到, 2003 年 8 月 18 日收到修改稿)

用射频磁控溅射制备了 Fe-Ni 薄膜, 研究了薄膜成分、溅射条件及热处理温度对薄膜结构和磁性的影响. 通过选择适当的溅射条件和热处理温度, 可得到适合于磁头材料应用的高饱和磁化强度的 Fe-Ni 软磁薄膜.

关键词: Fe-Ni 薄膜, 磁头材料

PACC: 7550B, 7570, 7550S

1. 引 言

随着硬盘面密度的提高, 记录介质的矫顽力越来越高, 这就要求写入磁头的磁芯材料必须有更高的饱和磁化强度才能在记录介质上写入信息. 常用的坡莫合金 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 的饱和磁化强度 (M_s) 约为 $0.8 \times 10^6 \text{ A/m}$, 已不能满足要求. fcc 的 Fe-Ni 合金中 $\text{Ni}_{45}\text{Fe}_{55}$ 具有最高 M_s , 约为 $1.27 \times 10^6 \text{ A/m}$, 已开始代替 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 薄膜用于磁头, 有很好的性能^[1], 但相对于其他的软磁薄膜, 如 Fe-M-N^[2,3] 等, 对它的研究很少, 而且多用电镀方法制备. 多层膜作为磁性薄膜发展的主要方向, 多用溅射方法制备, 而用溅射法制备 Fe-Ni 合金单层膜不但制备工艺较为简单, 而且对于它的深入了解可以促进各种含有 FeNi 成分的磁性多层膜的研究. 因此我们用溅射法制备了 Fe-Ni 薄膜, 研究了薄膜成分、溅射条件以及热处理对薄膜磁性的影响. Fe-Ni 合金软磁薄膜, 除了做磁记录设备中的磁头外, 还广泛用作各类微磁器件或薄片式和编织式电感、微型变压器磁芯及其集成组件等^[4,5], 因此对这些薄膜的研究有实际应用价值.

2. 实验方法

薄膜的制备采用的是日本 ANELVA 公司生产的 SPF-312 型单靶平面磁控溅射台. 为了便于调整成分, 采用了复合靶, 即在直径为 153.4mm, 厚度为 1mm 的高纯铁靶 (99.99%) 上均匀地摆放 $4\text{mm} \times$

4mm 大小的高纯 Ni 片, 通过调整镍片的数量来调整薄膜的成分. 基片采用 $8\text{mm} \times 8\text{mm}$ 单晶 Si 基片 ((100)取向). 为了使薄膜产生单轴各向异性, 薄膜沉积的时候加了 $4.0 \times 10^3 \text{ A/m}$ 的磁场. 溅射条件的变化范围如表 1 所示. 通常的溅射条件是溅射气压 0.27 Pa, 溅射功率 390W, 基片与靶的距离 5.0cm.

薄膜的磁性由日本东英公司生产的 TOEI VSM-5S-15 振动样品磁强计 (VSM) 测量, 微结构由日本 Rigaku 公司生产的 D/MAX-RB 全自动 x 射线衍射仪测量, 使用的是 $\text{CuK}\alpha$ 射线, 薄膜的成分由日本日立公司的 Hitachi 180-80 原子吸收光谱测量, 膜厚由 6JA-780028 型干涉显微镜测量.

表 1 薄膜的制备条件

项目	条件
本底真空/Pa	2.7×10^{-5} — 5.3×10^{-5}
溅射功率/W	330—570
基片与靶的距离/cm	5.0—10.0
溅射气压/Pa	0.27—4.26
基片条件	水冷
薄膜厚度/nm	~ 100

3. 结果及讨论

3.1. 成分对 Fe-Ni 合金薄膜的结构和磁性的影响

在块体 $\text{Fe}_{1-x}\text{Ni}_x$ 样品中, bcc 相只存在于 $x < 0.26$, 当 $x > 0.34$ 时只存在 fcc 相, 在这两个成分之

[†]E-mail: yangz@lzu.edu.cn, 电话: 0931-8912816(O), 8911289(H).

间, bcc 和 fcc 相共存. 在我们所考察的成分范围中, 镍含量从 40 at.% 到 85 at.%, XRD 的结果只发现了 fcc 相, 在薄膜镍含量为 40at.%—50at.%, 没有发现如文献 6, 7 所说的两种相 α (bcc) 和 γ (fcc) 并存的情况. 在所做的这一成分范围, 无论从 XRD 或是磁性测量的结果都没发现 FeNi 和 FeNi₃ 有序相^[8, 9]. 图 1 给出了不同成分的 XRD 图. 所有成分的薄膜都出现了 (111) 峰, 其他的峰, 如 (200) (222) 在一些薄膜中也有出现, 但一般 (111) 峰都很强, 即薄膜有 (111) 取向, 这和许多文献^[10, 11] 中的结果一样. 用谢乐公式从 (111) 峰计算的晶粒大小一般在 20nm 左右.

室温下饱和磁化强度和矫顽力随成分的变化示于图 2. M_s 随成分的变化同块材的相同, 而且数值也符合得很好. 随着镍含量的增加, 矫顽力减小. 在镍含量为 79% 时达最小. 矫顽力随镍含量的变化主要是由磁晶各向异性系数和磁致伸缩系数随镍含量的变化引起的^[12]. 随镍含量的增加, 单轴各向异性增强. 在镍含量比较低的时候, 矫顽力比较高, 面内两个互相垂直方向的磁滞回线形状相近.

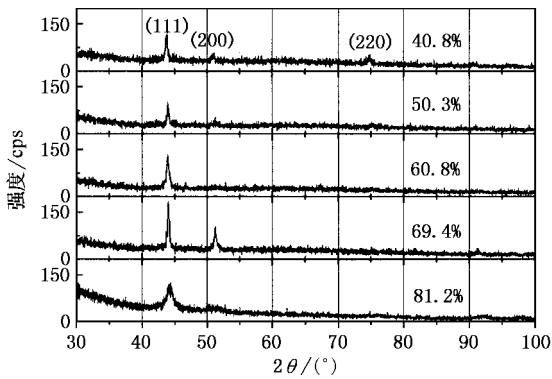


图 1 不同成分的 Fe-Ni 薄膜的 XRD

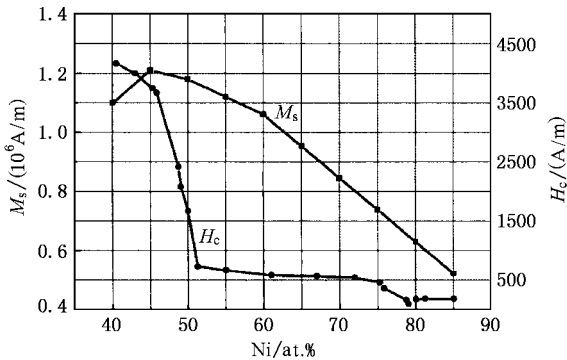


图 2 饱和磁化强度和矫顽力随成分的变化

3.2. 溅射功率对薄膜的影响

从图 2 可以看到低镍含量 (~45%) 的铁镍合金薄膜具有最高的饱和磁化强度, 而且这一成分的铁镍合金的电阻率也比通常用的含镍 81% 的坡莫合金高一倍. 因此低镍含量的铁镍合金更适合于磁头和高频应用. 下面我们集中研究溅射条件对这一成分的薄膜的结构和磁性的影响.

溅射功率的影响概括于表 2. 在这一功率范围, 沉积速率随溅射功率近似成线性变化. 由于溅射功率的不同会引起靶中原子溅射产额的不同, 而不同元素的原子其溅射产额随入射 Ar 离子能量的变化不一样, 所以溅射功率的变化, 有可能使薄膜的成分发生变化. 随着溅射功率的增加, 薄膜中镍的含量减小, 说明镍的溅射产额随着溅射功率的增加要比铁的小.

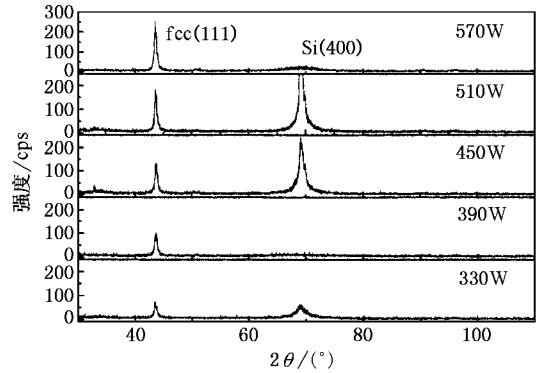


图 3 薄膜的 XRD 随溅射功率的变化

表 2 溅射功率的影响

溅射功率 /W	沉积速率 / (nm/min)	Ni 含量 /at. %	晶粒大小 /nm	M_s / 10^6 A/m	$H_{c//}$ / (kA/m)	$H_{c\perp}$ / (kA/m)
330	3.9	47.0	14.7	1.26	1.4	1.0
390	5.2	45.5	16.8	1.27	3.8	3.9
450	6.4	44.5	20.6	1.26	4.4	4.5
510	7.6	43.2	21.5	1.24	5.0	4.9
570	8.7	42.0	21.4	1.21	4.3	4.5

薄膜的结构与溅射功率的关系在图 3 中给出. XRD 中除来自 Si 基片的 (400) 峰外, 只出现了 Fe-Ni 的 fcc(111) 峰, 这说明薄膜有很强的 (111) 取向. 由于膜的厚度的增加, 铁镍的 (111) 峰的强度随功率的增加有明显的提高. 从铁镍 (111) 峰根据 Scherrer 公式可得出晶粒尺寸, 随着溅射功率的增加, 晶粒先增

加较快,然后趋于不变.当溅射功率提高时,沉积原子有更高的能量,会提高成核密度,增加粒子在基片表面的迁移率.前者使薄膜中的晶粒数量增多,尺寸减小,后者则会促进晶粒的生长.两者相互制约,使得随着溅射功率的增加晶粒先增大,后趋于不变.

饱和磁化强度的变化主要是由于薄膜成分的变化引起的,在功率较低的时候,饱和磁化强度比同一成分的块材的低则主要是因为薄膜不是很致密的缘故造成的.表2中 $H_{c//}$ 表示溅射时所加磁场方向的矫顽力,而 $H_{c\perp}$ 则表示在膜面内垂直于此方向的矫顽力.矫顽力的变化与晶粒尺寸大小有密切关系.当晶粒尺寸 D 小于交换作用长度 L_{ex} 时,由于随机各向异性作用的结果^[13,14],有效磁晶各向异性会随着晶粒尺寸的减小而减小,成六次方变化.如果晶粒尺寸近似等于 L_{ex} ,则磁化过程由磁晶各向异性常数 K_1 决定.在此晶粒尺寸上,发现 H_c 趋向一最大值.如果晶粒尺寸超过畴壁宽度,畴壁能在晶粒内形成,则 H_c 按照 D^{-1} 规律减小.对不同条件下制备的薄膜,矫顽力与晶粒大小的关系并不完全相同,这主要是因为矫顽力并不是由磁晶各向异性惟一决定的.对应于矫顽力极大值的晶粒尺寸是 $(L_0)_{real}$, 实验中得到的值约为 22nm,这个尺寸是比较小的,但从块体材料的 A 和 K_1 数据得到的 $(L_0)_{theoretic}$ 要远远大于 $(L_0)_{real}$,通常 A 取 10^{-11}Jm^{-1} ,对于 45Ni55Fe 的 K_1 约为 $1.0 \times 10^3 \text{Jm}^{-3}$,则 $(L_0)_{theoretic}$ 约为 100nm,造成这种差别的原因可能是由于在纳米晶中的 A 要比块体中的 A 小^[15],还有可能是纳米晶中的 K_1 要比块体中大^[16].

3.3. 基片与靶距离的影响

基片与靶的距离 (D_{TS}) 的影响概括于表3.当 D_{TS} 增加时,薄膜的沉积速率明显降低.基片与靶的距离对结构的影响示于图4.随着 D_{TS} 的增加,峰的衍射强度有所减弱.随着 D_{TS} 的增加薄膜晶粒减小. D_{TS} 对薄膜的成分和 M_s 影响不大.随着基片与靶的距离的增大,矫顽力先增大后减小.矫顽力随 D_{TS} 的变化也主要归因于晶粒大小的变化,在 $D_{TS} = 7.1\text{cm}$ 时,晶粒大小恰好约等于交换长度,所以此时矫顽力最大,在 D_{TS} 增大时,晶粒尺寸减小导致磁晶各向异性减小,使得矫顽力下降.

3.4. 溅射气压的影响

溅射气压的影响概括于表4.对不同气压下薄

表3 基片与靶的距离的影响

D_{TS}/cm	沉积速率 (nm/min)	Ni 含量 /at. %	晶粒大小 /nm	M_s ($10^6 \text{A}/\text{m}$)	$H_{c//}$ (kA/m)	$H_{c\perp}$ (kA/m)
5.0	6.4	46.4	27.0	1.27	3.1	3.0
7.1	6.3	46.3	23.0	1.27	3.8	3.6
8.6	5.4	45.6	19.0	1.27	3.0	2.9
10.0	4.6	45.1	18.0	1.27	1.9	2.0

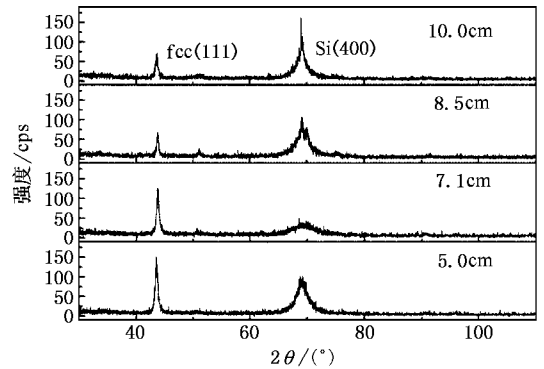


图4 D_{TS} 对薄膜 XRD 的影响

膜沉积速率的测量表明,在溅射气压为 0.27Pa 时,沉积速率最高.随着溅射气压的增加,薄膜中镍的含量在增加.这可能是因为背散射效应引起的,铁原子比镍原子轻,所以有可能比镍原子扩散回去的多,导致薄膜中有更多的镍.溅射气压对结构的影响示于图5.随着溅射气压的增大, (111) 峰的强度减小,峰的半高宽增加,这说明薄膜减薄,薄膜中晶粒减小.随着溅射气压的增加,薄膜的饱和磁化强度下降,当溅射气压大于 2.7Pa 时,下降很快.这一方面是由于薄膜成分的变化,随着镍含量的增加,薄膜的饱和磁化强度会降低;另一方面,在高的溅射气

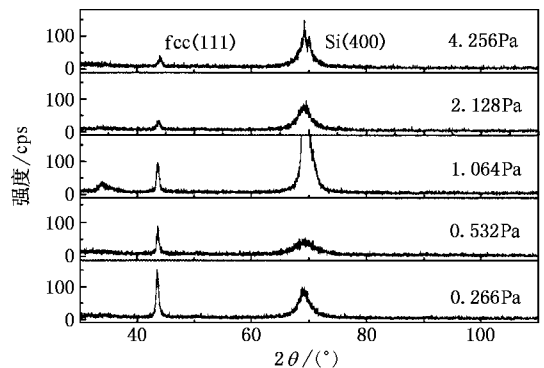


图5 不同溅射气压对 XRD 的影响

压下制作的薄膜的结构比较松散. 这样的薄膜有更多的空位, 也更容易氧化, 这就使得它的饱和磁化强度要比同一成分的低, 这在溅射气压大于 2.7Pa 时表现得非常明显^[17,18]. 随着溅射气压的增加, 薄膜的矫顽力减小, $H_{c//}$ 和 $H_{c\perp}$ 的差距也越来越大.

表 4 溅射气压的影响

溅射气压 /Pa	沉积速率 / (nm/min)	Ni 含量 /at. %	晶粒大小 /nm	M_s / (10^6 A/m)	$H_{c//}$ / (kA/m)	$H_{c\perp}$ / (kA/m)
0.27	6.9	45.0	27.0	1.26	3.1	3.0
0.53	6.7	45.2	18.5	1.26	2.8	2.5
1.06	6.5	45.5	18.0	1.25	2.1	2.0
2.13	6.1	46.0	15.5	1.15	1.2	1.7
4.26	5.1	47.5	15.0	0.97	0.8	1.1

3.5. 热处理的影响

由于刚溅射出来的薄膜的矫顽力较高, 为了降低矫顽力, 我们对各种不同条件下溅射的样品进行了热处理, 然后选择了新的溅射条件如表 5 所示, 在此条件下制备了一组样品, 用以研究热处理条件对样品磁性能的影响. 基片材料的影响不大, 所以我们选择了玻璃做基片. 样品的热处理条件也在表 5 中给出. 热处理时所加的磁场沿溅射时所加磁场方向.

表 5 样品的溅射和热处理条件

过程	项目	条件
沉积	本底真空/Pa	0.27×10^{-5} — 0.53×10^{-5}
	溅射气压/Pa	0.27
	溅射电压/kV	3.0
	溅射功率/W	530
	基片温度/°C	100
	薄膜厚度/nm	~500
	热处理	热处理温度/°C
	热处理时间/h	1
	热处理真空度/Pa	0.66×10^{-5} — 1.33×10^{-5}
	热处理磁场/(kA/m)	8.0

热处理前后 XRD 图示于图 6. 随着热处理温度的提高, 衍射峰强度增加, 峰宽减小, 衍射峰向 2θ 大的方向移动, 说明了薄膜的结晶程度得到改善, 晶粒长大, 应力减小. 通常热处理后晶粒大小从 10—

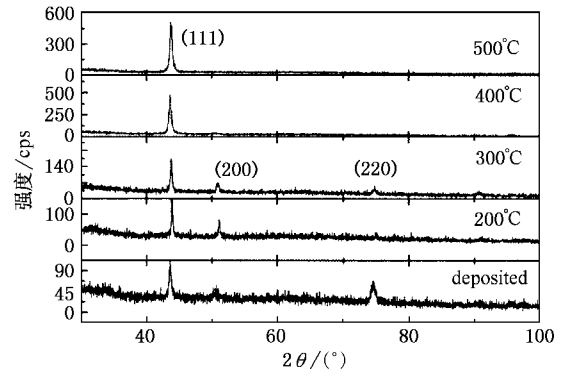


图 6 不同热处理温度对 XRD 的影响

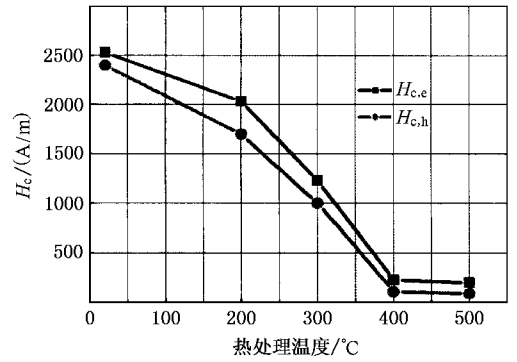


图 7 热处理温度对矫顽力的影响(图中 $H_{c,e}$ 和 $H_{c,h}$ 分别代表 $H_{c//}$ 和 $H_{c\perp}$)

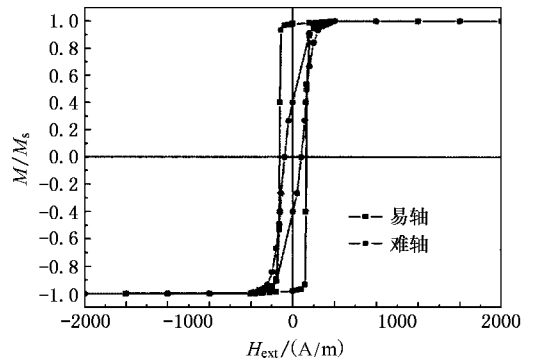


图 8 热处理后的磁滞回线

25nm 增加到 30—50nm. 热处理后的样品中没有发现各向异性对晶粒大小有明显的依赖关系. 热处理温度对矫顽力的影响示于图 7, 随着热处理温度的提高, 矫顽力降低, 500°C 和 400°C 两者相差不大, 所以以后热处理温度可取为 400°C. 经过热处理之后, 薄膜的性能得到改善, 可以得到具有单轴各向异性的薄膜. 400°C 热处理后可得到的典型磁参数为: M_s

$\sim 1.27 \times 10^6$ A/m, $H_{c//} \sim 160$ A/m, $H_{c\perp} \sim 80$ A/m, 易轴方向剩磁比(M_{re}/M_S) ~ 0.9 , 难轴方向剩磁比(M_{rh}/M_S) < 0.4 , 磁各向异性场(H_K) ~ 640 A/m, 所对应的典型磁滞回线如图 8 所示. 热处理后的 AFM

图片在图 9 中给出. 热处理后由于晶粒长大, 表面粗糙度增加. 因为是合金膜, 晶粒之间的相互作用很强, 团簇使得从 AFM 看到的颗粒要远远大于从 XRD 得到的膜的晶粒大小.

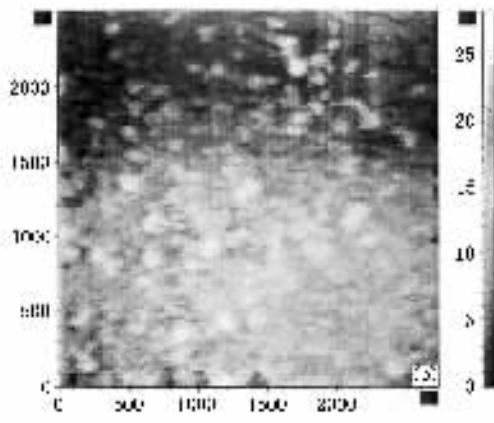
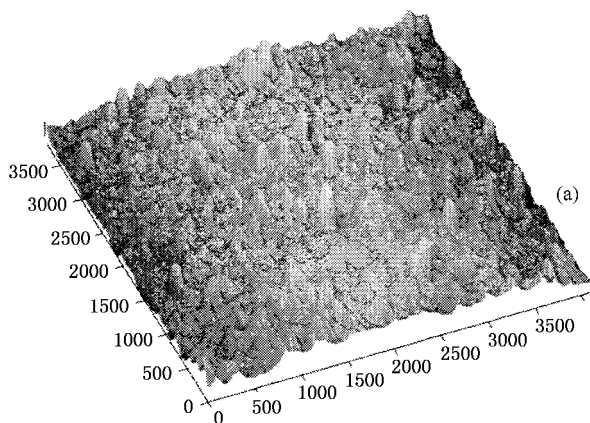


图 9 热处理后的 AFM

4. 结 论

通过研究薄膜成分、溅射条件及热处理条件对 Fe-Ni 薄膜结构和磁性的影响, 发现在 Fe-Ni 薄膜中, 镍含量在 40%—85% 之间, 薄膜为 fcc 结构, 薄膜的晶格常数和饱和磁化强度随成分的变化和块材一样. 矫顽力随镍含量的增加而减小. 对不同的制

备条件, $\text{Ni}_{45}\text{Fe}_{55}$ 薄膜为 fcc 结构, 有(111)取向. 薄膜的磁性能由磁晶各向异性、感生各向异性及应力各向异性决定. 晶粒大小对磁性有很大的影响. 刚沉积的薄膜矫顽力较高, 单轴各向异性不明显. 热处理后磁性能有很大提高, 可得到适合于磁头材料的软磁性能如下: $M_S \sim 1.27 \times 10^6$ A/m, $H_{c//} \sim 160$ A/m, $H_{c\perp} \sim 80$ A/m, $M_{re}/M_S \sim 0.9$, $M_{rh}/M_S < 0.4$, $H_K \sim 640$ A/m.

[1] Robertson Neil, Hu H L and Tsang C 1997 *IEEE Trans. Magn.* **33** 2818

[2] Zheng D S, Xie T, Bai J M, Wei F L and Yang Z 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 908 (in Chinese) [郑代顺、谢天、白建民、魏福林、杨正 2002 物理学报 **51** 908]

[3] Xie T, Zheng D S, Li X H, Ma Y G, Wei F L and Yang Z 2002 *Chin. Phys.* **11** 725

[4] Yamaguchi M, Suezawa K, Takahashi Y, Arai K I, Kikuchi S, Shimada Y, Tanabe S and Ito K 2000 *J. Magn. Magn. Mater.* **215** 807

[5] Kim K H, Yoo D W, Jeong J H, Kim J, Han S H and Kim H J 2002 *J. Magn. Magn. Mater.* **239** 579

[6] Sumiyama K, Kadono M and Nakamura Y 1983 *Trans. Japan. Inst. Met.* **24** 190

[7] Dumpich G, Wassermann E F, Manns V, Keune W, Murayama S and Miyako Y 1987 *J. Magn. Magn. Mater.* **67** 55

[8] Cranshaw T E 1987 *J. Phys. F: Met. Phys.* **17** 967

[9] Dang M Z and Rancourt D G 1996 *Phys. Rev. B* **53** 2291

[10] Mayer William N 1966 *IEEE Trans. Magn.* **2** 166

[11] Mao M, Leng Q, Huai Y, Johnson P, Miller M, Tong H C and Miloslavsky L 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 5780

[12] Wohlfarth E P 1980 *Ferromagnetic materials: a handbook on the properties of magnetically ordered substances* (North-Holland Pub. Co.) p129

[13] Herzer G 1989 *IEEE Trans. Magn.* **25** 3327

[14] Herzer G 1990 *IEEE Trans. Magn.* **26** 1397

[15] Löffler J F, Braun H B, Wagner W, Kostorz G and Wiedenmann A 2001 *Materials Science and Engineering A* **304-306** 1050

[16] Sakai T, Tsukahara N, Tanimoto H, Ota K, Murakami H and Kita E 2001 *Scripta Mater.* **44** 1359

[17] Miller M S, Stageberg F E, Chow Y M, Rook K and Heuer L A 1994 *J. Appl. Phys.* **75** 5779

[18] Kim Y K and Oliveria M 1993 *J. Appl. Phys.* **74** 1233

Studies on preparation and magnetic properties of Fe-Ni films

Li Xiao-Hong Yang Zheng[†]

(*Research Institute of Magnetic Materials , Lanzhou University ,Lanzhou 730000 , China*

(Received 18 July 2003 ; revised manuscript received 18 August 2003)

Abstract

Fe-Ni films were deposited by radio frequency (RF) magnetron sputtering. The influence of composition , RF input power , argon pressure , substrate-to-target distance on the magnetic and structural properties of the films was investigated. x-ray diffraction measurements indicated that the films had the fcc structure and exhibited a dominant (111) orientation. The maximum saturation magnetization ($M_s \sim 1.27 \times 10^6$ A/m) can be obtained for films with the composition of Fe_{54.5}Ni_{45.5}. Depending on deposition conditions , the film coercivity could be varied from 80 to 640 A/m. After annealing at 400°C for an hour , the particles grew bigger , the films orientation did not change obviously , still showing (111) orientation , and the coercivity decreased. After annealing , the optimal magnetic properties can be obtained in the films as follows : the saturation magnetization $M_s \sim 1.27 \times 10^6$ A/m , the easy axis coercivity of less than 160A/m , and the hard axis coercivity of less than 80 A/m.

Keywords : Fe-Ni film , magnetic head material

PACC : 7550B , 7570 , 7550S

[†]E-mail : yangz@lzu.edu.cn ; Tel 0931-8912816 (O) , 8911289 (H) .