

强磁场对不同厚度 Fe-Ni 纳米多晶薄膜的生长过程及磁性能的影响

曹永泽 王强 李国建 马永会 隋旭东 赫冀成

Effects of high magnetic field on the growth and magnetic properties of Fe-Ni nano-polycrystalline thin films with different thickness values

Cao Yong-Ze Wang Qiang Li Guo-Jian Ma Yong-Hui Sui Xu-Dong He Ji-Cheng

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 64, 067502 (2015) DOI: 10.7498/aps.64.067502

在线阅读 View online: <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.067502>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn/CN/Y2015/V64/I6>

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

稀土掺杂对钴铁氧体电子结构和磁性能影响的理论研究

Theoretical study on the influence of rare earth doping on the electronic structure and magnetic properties of cobalt ferrite

物理学报.2015, 64(3): 037501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.64.37501>

超导磁体剩余磁场对软磁材料测试的影响

Effect of superconducting magnet remanence on the soft magnetic material measurements

物理学报.2014, 63(4): 047502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.63.047502>

强磁场对不同厚度 $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ 薄膜的微观结构及磁性能的影响

Effects of high magnetic field on the microstructure and magnetic properties of $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ thin films with different thickness values

物理学报.2013, 62(22): 227501 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.227501>

应变对钴铁氧体电子结构和磁性能影响的第一性原理研究

Influences of strain on electronic structure and magnetic properties of CoFe_2O_4 from first-principles study

物理学报.2013, 62(16): 167502 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.62.167502>

高矫顽力的 $\text{Co}_{70}\text{Cu}_{30}$ 合金纳米线阵列的制备及磁性研究

Fabrication and magnetic properties of $\text{Co}_{70}\text{Cu}_{30}$ alloy nanowire arrays with high coercivity

物理学报.2012, 61(13): 137503 <http://dx.doi.org/10.7498/aps.61.137503>

强磁场对不同厚度 Fe-Ni 纳米多晶薄膜的生长过程及磁性能的影响*

曹永泽 王强[†] 李国建 马永会 隋旭东 赫冀成

(东北大学, 材料电磁过程研究教育部重点实验室, 沈阳 110819)

(2014年9月26日收到; 2014年10月26日收到修改稿)

在无 6 T 强磁场条件下, 利用分子束气相沉积方法制备了 21 nm 和 235 nm 厚的 Fe-Ni 纳米多晶薄膜. 研究发现, 0 T 时, 21 nm 厚的薄膜是晶粒堆叠而成, 晶粒尺寸为 6—7 nm; 6 T 时, 21 nm 厚的薄膜首先在基片表面形成了晶粒相互连接的 5 nm 平坦层, 晶粒沿基片表面拉长, 随后以 6—7 nm 尺寸的晶粒堆叠而成; 0 T 时, 235 nm 厚度的薄膜生长初期平均晶粒尺寸为 3.6 nm, 生长中期平均晶粒尺寸为 5.6 nm, 生长末期薄膜近似柱状方式生长, 晶粒沿生长方向拉长; 6 T 时, 235 nm 厚度的薄膜在基片表面也形成了晶粒相互连接的 5 nm 平坦层, 晶粒沿基片表面拉长, 随后以尺寸均匀的 6.1 nm 晶粒堆叠而成; 而且, 6 T 强磁场使得不同厚度薄膜的面外与面内矫顽力都降低.

关键词: 强磁场, 气相沉积, 生长过程, 磁性能**PACS:** 75.50.-y, 81.07.Bc, 81.15.Dj, 81.15.-z**DOI:** 10.7498/aps.64.067502

1 引言

Fe-Ni 及 Fe-Ni 基合金薄膜和块体材料由于具有优越的软磁性能, 包括高饱和磁化强度、低矫顽力、高磁化率及低磁损耗等特点, 被广泛应用于磁读头、磁传感器及微电子机械系统 (MEMS) 等方面^[1,2]. 而且, Fe-Ni 薄膜也在多层膜组成的自旋阀 (spin valve, SV) 结构中作为关键的自由层^[3]. 随着磁性器件的飞速发展, 器件正在向着小型化、高稳定性、高灵敏度及低损耗的方向发展. 这就要求 Fe-Ni 等软磁薄膜应具有更低的矫顽力 (H_c)^[4,5] 和更高的矩形比 (M/M_s). 因此, 研究者们一直致力于利用不同手段来调控薄膜的生长过程, 进而提高薄膜的磁性能.

由于超导技术、真空技术和低温技术的飞速发展, 实验室获得 2 T 以上的稳恒强磁场变得更加容易, 这极大地促进了强磁场下不同学科的研究和

发展. 由于强磁场具有无接触、高能量和无污染等特点, 它已经被应用到化学^[6]、生物学^[7]、材料学等^[8]领域. 在材料方面, 强磁场对块体金属材料的微观组织和性能的影响研究较多^[9,10], 并且研究者们针对不同的新奇实验现象提出了相应的理论解释. 然而, 强磁场对晶粒尺寸在微米、纳米量级的薄膜研究较少, 相关报道主要有强磁场下金属氧化物化学气相沉积 (MOCVD) 制备 $YBa_2Cu_3O_{7-x}$ 薄膜^[11], 电沉积制备 Zn 薄膜^[12], 溅射沉积制备 α' -FeN 薄膜^[13] 等. 目前, 强磁场对纳米尺度薄膜的生长过程影响和机理尚未明确. 我们已研究了强磁场对不同厚度 Fe-Ni 薄膜的磁性能和表面形貌等的影响^[14], 然而尚未深入分析强磁场对薄膜生长过程的影响规律. 因此, 本文主要研究强磁场对分子束气相沉积制备的不同厚度 Fe-Ni 纳米晶薄膜生长过程的影响, 探寻强磁场对纳米磁性薄膜材料生长过程的影响规律, 并揭示薄膜生长方式演化所带来的磁性能的变化.

* 国家自然科学基金项目 (批准号: 51425401, 51101034) 和中央高校基本科研业务费专项资金 (批准号: N140902001, N130509002) 资助的课题.

[†] 通信作者. E-mail: wangq@mail.neu.edu.cn

2 实验过程

把分子束气相沉积装置放入直径为300 mm的6 T超导强磁场(强磁场设备型号JMTD-6 T-300)腔内,并且将沉积装置与超导强磁场装置固定在一起.本实验装置由超导磁体、真空系统、加热源、氧化铝坩埚和基片等构成,其详细介绍可以参见文献[15, 16].真空系统采用机械泵和分子泵组合方式,真空腔的真空度可达 10^{-5} Pa.在蒸镀过程中,真空腔的真空度可以长时间保持 2.0×10^{-4} Pa.加热源呈空心长管状,中心放有氧化铝坩埚,坩埚的口径为16 mm.将纯度为99.999%的纯铁和纯镍经过电弧熔炼制备成分为 $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ (原子比)的块体,放入氧化铝坩埚中,进行单源加热蒸发.基片选择 $10 \text{ mm} \times 10 \text{ mm} \times 0.8 \text{ mm}$ 的石英基片.基片与加热源之间的距离是20 cm.在沉积过程中,基片温度保持在 25°C .基片位置始终处于6 T磁场的稳恒区域,也是磁感应强度最大的位置.磁场的方向为竖直向上,与基片表面垂直.在镀膜之前,基片在 350°C 温度下烘烤1 h,主要目的是去除基片表面的水汽.

薄膜的成分通过Nova NanoSEM 430扫描电镜设备的能量色散X射线分光计EDXS面扫描确定.用JEM 2100F透射电镜(TEM)对薄膜的厚度和生长过程进行了表征,并用选区电子衍射花样表征了薄膜的相组成.用Lakeshore 7407型号VSM设备检测研究了薄膜的磁性能.

3 实验结果与讨论

通过EDXS的检测发现有无强磁场作用时所制备的Fe-Ni纳米多晶薄膜成分都为 $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ (原子比).实验结果表明:制备薄膜时,施加6 T强磁场对薄膜的成分没有影响.利用TEM观测薄膜的截面来确定薄膜的厚度,发现有无6 T强磁场作用时,在相同沉积时间下,薄膜的厚度没有改变.这表明6 T强磁场对薄膜的厚度没有影响.

有无6 T强磁场作用下制备的不同厚度的Fe-Ni薄膜的面外和面内磁滞回线如图1所示.从图1可以发现,薄膜在面外方向500 Oe的外场强度也没有使得235 nm厚度的薄膜磁化到饱和,而面内方向上100 Oe的外场强度就足够使得薄膜达到饱和磁化强度.这表明Fe-Ni薄膜的易磁化轴方向

在面内.从图1还可以发现,6 T磁场使得21 nm和235 nm厚度的薄膜在面外和面内方向上的矫顽力都同时降低,并且不同程度地提高了剩磁(M_r).

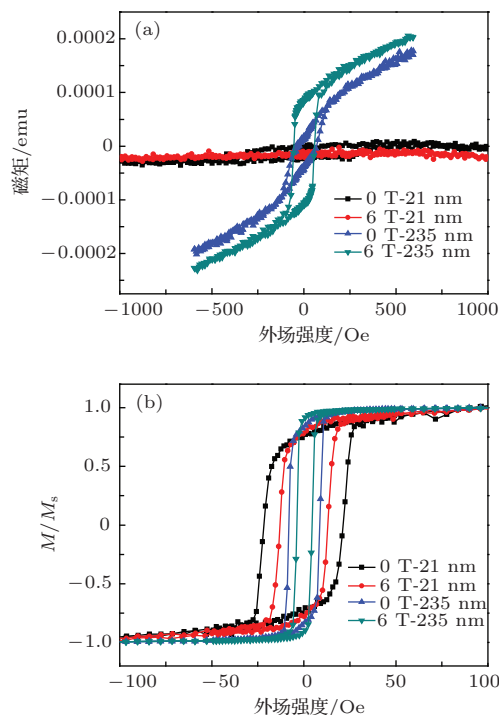


图1 (网刊彩色) 有无6 T强磁场作用下21 nm和235 nm厚度的 $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ 薄膜的面外(a)与面内(b)磁滞回线

为了揭示6 T磁场对薄膜磁性能的影响机理,本文对有无6 T强磁场作用下的薄膜生长过程进行了研究.对有无6 T强磁场作用的21 nm和235 nm厚的薄膜进行了截面TEM分析检测,如图2所示.从图2中的选区电子衍射环可以判断,有无6 T强磁场作用时,21 nm和235 nm厚度的Fe-Ni薄膜都为bcc单相结构.从图2(a)中可以发现,无磁场时薄膜是以近似圆形的晶粒堆叠生长,晶粒尺寸为6—7 nm,薄膜的厚度为21 nm.从图2(b)中可以发现,施加6 T强磁场后,薄膜在生长初期会形成晶粒相互连接的5 nm平坦层,之后薄膜以尺寸为6—7 nm的晶粒堆叠而成.这表明6 T强磁场对薄膜的生长初期有一定的作用效果,改变了薄膜的生长方式.在6 T强磁场作用下,形成的这层平坦的晶粒层必定会对薄膜的后续生长产生影响.为了研究薄膜后续的生长过程,对有无6 T强磁场作用的235 nm的薄膜进行了截面TEM检测,如图2(c)和(d)所示.无磁场作用下,根据晶粒尺寸的变化和生长方式的改变,把薄膜截面分为3个区域(图2(c)),不同区域的晶粒尺寸分布如图3所示.无磁场时,

区域I的厚度范围大约为0—33 nm, 晶粒细小, 近似圆形, 晶粒的平均尺寸是3.6 nm (如图3). 区域II的厚度范围大约为33—101 nm, 此时晶粒尺寸变大, 平均晶粒尺寸为5.6 nm. 在区域III, 晶粒沿生长方向拉长, 以类似于柱状晶的结构生长. 在6 T磁场作用下, 235 nm厚的薄膜生长方式不同于无磁场情况下的样品, 薄膜在基片表面也形成

了5 nm厚的平坦晶粒层, 晶粒沿基片的表面拉长, 这和6 T强磁场作用下的21 nm厚的薄膜相同, 随后晶粒相互叠加生长, 直至生长结束, 晶粒的平均尺寸为6.1 nm. 这表明6 T强磁场使薄膜生长过程中的晶粒尺寸变得均匀, 没有出现无磁场作用下235 nm厚的薄膜在生长过程中晶粒尺寸的变化, 而且6 T强磁场抑制了类似于柱状晶的生长.

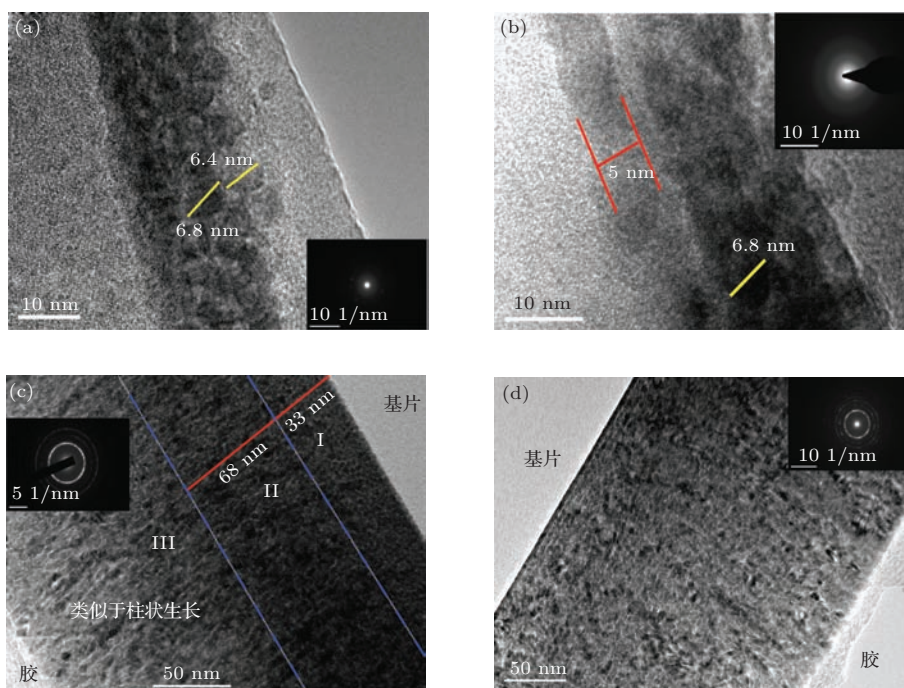


图2 (网刊彩色) 有无6 T强磁场作用时21 nm和235 nm厚的Fe₈₀Ni₂₀薄膜的截面TEM图像 (a) 0 T-21 nm; (b) 6 T-21 nm; (c) 0 T-235 nm; (d) 6 T-235 nm; (a), (b), (c), (d)中的插图为衍射环

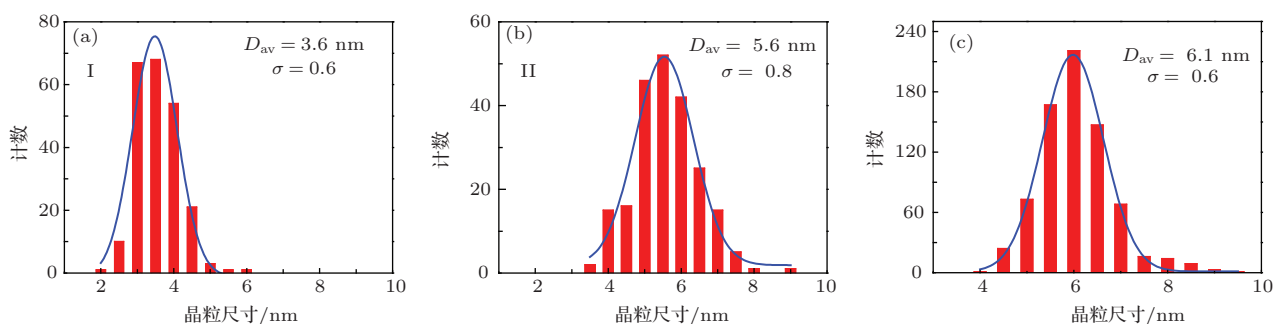


图3 (网刊彩色) (a) 0 T-235 nm薄膜区域I的晶粒尺寸分布; (b) 区域II的晶粒尺寸分布; (c) 6 T-235 nm薄膜的整体晶粒尺寸分布; D_{av} 是平均晶粒尺寸

图4为6 T-235 nm薄膜在生长初期和末期阶段的微观组织的高倍放大图片. 从图4(a)中可以看出, 晶粒沿基片表面被拉长, 晶粒平行于基片表面方向的尺寸大约为8 nm; 在基片表面上形成了5 nm厚的不同晶面方向的多晶纳米平坦层, 薄膜与基片结合良好. 从图4(b)中可以看出, 在6 T-235 nm薄膜的生长末期, 薄膜还是以平均尺寸为6.1 nm的晶粒堆叠生长, 晶粒之间的晶界明显; 没

有出现0 T-235 nm的类似柱状晶的生长.

无磁场情况下, 21 nm和235 nm厚度的薄膜在生长初期, 薄膜与石英基片之间形成了内应力, X射线衍射(XRD)的检测结果表明, 薄膜与基片之间的内应力为压应力^[12]. 在磁化过程中, 压应力与Fe₈₀Ni₂₀薄膜的正的磁致伸缩相互作用将导致磁化困难, 增加矫顽力. 然而, 在6 T强磁场作用下, 21 nm和235 nm厚度的薄膜在生长初期都形成了

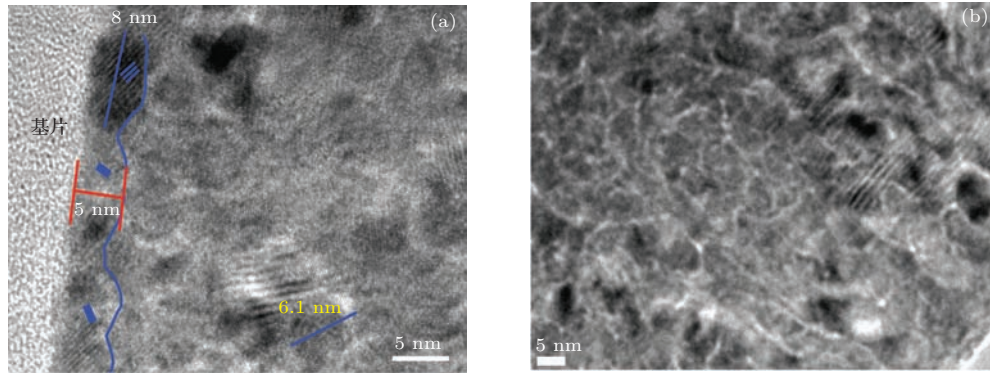


图4 (网刊彩色) (a) 6 T-235 nm 薄膜的生长初期阶段; (b) 6 T-235 nm 薄膜的生长末期阶段的组织演化

5 nm 厚的平坦层, 晶粒尺寸沿基片表面拉长, 这样使得后续生长在平坦层上面的薄膜受到基片的影响变小, 有助于降低薄膜受到基片所带来的压应力, XRD 的结果也表明了强磁场可以降低薄膜的内应力. 这样有助于降低薄膜的矫顽力. 另外, 在 0 T 时, 235 nm 厚度的薄膜在区域 I 和 II 的晶粒的尺寸不同, 在区域 III 类似于柱状晶的生长结构具有较大的磁各向异性. 这样会造成在磁化过程中区域 I, II 和 III 的薄膜层的磁矩翻转难易程度不同, 使得区域 I, II 和 III 在磁化过程中互相钉扎, 增加矫顽力. 然而, 在 6 T 强磁场作用下, 薄膜随厚度的增加, 薄膜的晶粒尺寸变得均匀, 薄膜的晶粒平均尺寸大约为 6.1 nm. 6 T 强磁场抑制了类似于柱状晶的生长结构, 使得在 0 T 样品中出现的各区域之间的相互钉扎作用消失. 这有利于降低薄膜的矫顽力. 总体来说, 6 T 强磁场改变了薄膜的生长过程, 最终降低了薄膜在垂直和平行于膜面方向上的矫顽力.

4 结 论

在基片温度为 25 °C 时, 在有无 6 T 强磁场作用下, 利用分子束气相沉积制备了 21 nm 和 235 nm 厚度的 $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$ 纳米多晶薄膜, 考察了 6 T 强磁场对薄膜的生长过程和磁性能的影响. 研究发现: 0 T 时, 21 nm 厚的薄膜以 6—7 nm 大小的晶粒堆叠而成; 6 T 时, 21 nm 厚的薄膜在基片表面形成了晶粒相互连接的 5 nm 平坦层, 随后以尺寸为 6—7 nm 的晶粒堆叠而成; 0 T 时, 235 nm 厚的薄膜随生长时间增加, 先是晶粒细小, 之后晶粒变大, 最后类似于柱状晶形式生长; 6 T 时, 235 nm 厚度的薄膜在基片表面也形成了晶粒相互连接的 5 nm 平坦层, 这与 6 T-21 nm 薄膜相同, 随后以 6.1 nm

左右的晶粒堆叠而成, 直到生长结束; 原位 6 T 强磁场使得不同厚度薄膜的面外与面内矫顽力降低.

参考文献

- [1] Li X H, Yang Z 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 1510 (in Chinese) [李晓红, 杨正 2004 物理学报 **53** 1510]
- [2] Berling D, Caricato A P, Denys E, Fernandez M, Leggeri G, Luby S, Luches A, Martino M, Mengucci P 2007 *Appl. Surf. Sci.* **253** 6522
- [3] Zeng Z M, Feng J F, Wang Y, Han X F, Zhan W S, Zhang X G, Zhang Z 2006 *Phys. Rev. Lett.* **97** 106605
- [4] Zhang L R, Lu H, Liu X, Bai J M, Wei F L 2012 *Chin. Phys. B* **21** 037502
- [5] Liu H L, He W, Du H F, Fang Y P, Wu Q, Zhang X Q, Yang H T, Cheng Z H 2012 *Chin. Phys. B* **21** 077503
- [6] Jia B P, Gao L 2008 *J. Phys. Chem. C* **112** 666
- [7] Raylman R R, Clavo A C, Wahl R L 1996 *Bioelectromagnetics* **17** 358
- [8] Suzuki T S, Sakka Y, Kitazawa K 2001 *Adv. Eng. Mater.* **3** 490
- [9] Wang Q, Liu Y, Liu T, Gao P F, Wang K 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 132406
- [10] Wang C J, Wang Q, Wang Y Q, Huang J, He J C 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 648 (in Chinese) [王春江, 王强, 王亚勤, 黄剑, 赫冀成 2006 物理学报 **55** 648]
- [11] Ma Y W, Watanabe K, Awaji S, Motokawa M 2000 *Jpn. J. Appl. Phys.* **39** L726
- [12] Taniguchi T, Sassa K, Yamada T, Asai S 2000 *Mater. Trans.* **8** 981
- [13] Wang H Y, Mitani S, Motokawa M, Fujimori H 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 9145
- [14] Cao Y Z, Li G J, Wang Q, Ma Y H, Wang H M, He J C 2013 *Acta Phys. Sin.* **62** 227501 (in Chinese) [曹永泽, 李国建, 王强, 马永会, 王慧敏, 赫冀成 2013 物理学报 **62** 227501]
- [15] Wang Q, Cao Y Z, Li G J, Wang K, Du J J, He J C 2013 *Sci. Adv. Mater.* **5** 447
- [16] Cao Y Z, Wang Q, Li G J, Du J J, Wu C, He J C 2013 *J. Magn. Magn. Mater.* **332** 38

Effects of high magnetic field on the growth and magnetic properties of Fe-Ni nano-polycrystalline thin films with different thickness values*

Cao Yong-Ze Wang Qiang[†] Li Guo-Jian Ma Yong-Hui Sui Xu-Dong He Ji-Cheng

(Key Laboratory of Electromagnetic Processing of Materials (Ministry of Education), Northeastern University, Shenyang 110819, China)

(Received 26 September 2014; revised manuscript received 26 October 2014)

Abstract

The Fe-Ni nano-polycrystalline thin films of 21 nm and 235 nm in thickness are prepared by molecular beam vapor deposition in the absence and the presence of a magnetic field as high as 6 T. The results show that in the absence of the magnetic field, the 21-nm-thick thin films are formed by the grain stacks, and the sizes of grains are about 6–7 nm. In the presence of 6 T, the 5-nm-thick flat layers of interconnected grains of 21-nm-thick thin films are first formed on the surfaces of the substrates, and the grains are then elongated along the surfaces of substrates. Later on, the 21-nm-thick thin films are formed by 6–7 nm-size-grain stacks. In the absence of the magnetic field, the average grain size of the 235-nm-thick thin film is 3.6 nm in the early growth stage, and it is 5.6 nm in the middle growth stage. The growth way of thin film is akin to columnar growth in the final growth stage, and the grains are elongated along the growth direction. In the presence of 6 T, the 5-nm-thick flat layers of interconnected grains of 235-nm-thick thin films are also formed on the surfaces of the substrates, and the grains are elongated along the surfaces of substrates. Later on, the 235-nm-thick thin films are formed by about 6.1-nm-size-grain stacks. Accordingly, the coercive forces in the out-of-plane and in the in-plane of thin films of different thickness values decrease by the 6 T magnetic field.

Keywords: high magnetic field, vapor deposition, growth process, magnetic properties

PACS: 75.50.-y, 81.07.Bc, 81.15.Dj, 81.15.-z

DOI: 10.7498/aps.64.067502

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51425401, 51101034), the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant Nos. N140902001, N130509002).

[†] Corresponding author. E-mail: wangq@mail.neu.edu.cn