

衬底层对 $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$ 合金薄膜结构与磁性的影响

韩泽宇 宋乘吉 周杰 郑富

Effects of underlayer on structures and magnetic properties of $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$ alloy films

Han Ze-Yu Song Cheng-Ji Zhou Jie Zheng Fu

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 71, 157501 (2022) DOI: 10.7498/aps.71.20220476

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.71.20220476>

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

您可能感兴趣的其他文章

Articles you may be interested in

铁基软磁非晶/纳米晶合金研究进展及应用前景

Research progress and application prospect of Fe-based soft magnetic amorphous/nanocrystalline alloys

物理学报. 2018, 67(1): 016101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171473>

真空磁场热处理温度对不同厚度的 $\text{Ni}_{88}\text{Cu}_{12}$ 薄膜畴结构及磁性的影响

Influence of magnetic annealing temperature on microstructure and magnetic properties of NiCu alloy film

物理学报. 2020, 69(9): 097401 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20191942>

强磁场下Sm-Fe薄膜不同晶态组织演化及磁性能调控

Evolutions of different crystalline textures in Sm-Fe film fabricated under high magnetic field and subsequent tuning magnetic properties

物理学报. 2018, 67(9): 097501 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180212>

$\text{La}_{65}\text{X}_{35}$ (X=Ni,Al)非晶合金原子结构的第一性原理研究

First principle study on atomic structure of $\text{La}_{65}\text{X}_{35}$ (X=Ni, Al) metallic glasses

物理学报. 2018, 67(17): 178101 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20180992>

非晶态 $\text{Gd}_{45}\text{Ni}_{30}\text{Al}_{15}\text{Co}_{10}$ 合金的制备与磁热性能

Preparation and magnetocaloric properties of $\text{Gd}_{45}\text{Ni}_{30}\text{Al}_{15}\text{Co}_{10}$ amorphous alloy

物理学报. 2022, 71(2): 026102 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20211530>

一种铅铋合金薄膜低温相的结构及超导物性表征

Characterization of structure and superconducting properties of low-temperature phase of Pb-Bi alloy films

物理学报. 2021, 70(17): 170703 <https://doi.org/10.7498/aps.70.20210482>

衬底层对 $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$ 合金薄膜结构与磁性的影响*

韩泽宇 宋乘吉 周杰 郑富†

(宁夏大学物理与电子电气工程学院, 银川 750021)

(2022年3月16日收到; 2022年4月8日收到修改稿)

采用磁控溅射法制备了具有不同衬底层 (Cu, Co 和 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$) 的 $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$ 双层合金薄膜. 研究了不同衬底材料以及 NiFe 衬底层厚度对 FeCo 合金薄膜结构与磁性的影响. 研究表明: 衬底层的引入可以增加薄膜的面内单轴各向异性, 且薄膜的软磁性能显著提升, 获得良好软磁性的原因归结为晶粒的细化、层间的偶极相互作用以及表面粗糙度的降低, 并且对于相同厚度的不同衬底层, NiFe 衬底层对 FeCo 薄膜软磁性能的提升最为明显; 通过改变 NiFe 衬底层厚度, 实现了对薄膜各向异性的调控, NiFe/FeCo 表现出良好的高频响应和低的阻尼系数, 同时较小的薄膜厚度能够减小涡流损耗, 因此, 促进了其在高频微波磁性器件方面的应用.

关键词: FeCo 合金薄膜, 衬底层, 软磁性能, 高频特性**PACS:** 75.30.Gw, 75.50.Ss, 75.70.-i, 75.75.-c**DOI:** 10.7498/aps.71.20220476

1 引言

随着高频磁性器件的应用与迅速发展, 具有面内单轴磁各向异性的软磁薄膜得到了广泛的研究^[1-4]. 这是因为薄膜表现出平面内的单轴磁各向异性, 确保了磁化过程以磁畴的一致转动为主, 而不是畴壁位移, 以抑制材料在高频下的能量损耗^[5]. 在众多的软磁材料中, FeCo 合金薄膜因其高的饱和磁化强度 $4\pi M_s$ 而受到研究人员的广泛关注^[6-8]. 但由于 FeCo 合金本身较大的饱和磁致伸缩系数 λ_s (4×10^{-5} — 6.5×10^{-5}) 和磁晶各向异性常数 K_1 (10 kJ/m^3), 使其具有较大的矫顽力^[9-12], 且一般表现出各向同性. 良好的软磁性通常需要材料具有低的或者消除磁晶各向异性. 因此, 一种有效的方法是在 FeCo 薄膜中添加第三方元素, 例如 C, N 和 Al_2O_3 等, 可以减小或消除磁晶各向异性, 有效降低晶粒尺寸^[13-15]. 通常掺杂元素为非磁性元素, 虽然容易获得好的软磁性, 但随着添加含量的增大, 饱和磁化

强度会大大减小. 另一种方法是在靶材成分确定的情况下, 优化溅射条件也能够改变薄膜的成分和微观结构, 从而使得其性能在一定范围内发生变化^[16,17]. 但是, 只是单纯地优化沉积条件 (沉积气压、功率等), 无法得到优质的薄膜材料, 并且可能会伴随着饱和磁化强度的降低.

许多文献报道了合适的衬底层可改善薄膜的软磁性能. Acosta 等^[18,19] 研究了不同衬底层对 FeGa 薄膜磁性的影响, 得到了较好的软磁性能, 并且认为晶粒尺寸的降低是获得良好软磁性的主要原因, 这也是通常用来解释软磁性得到改善的原因. 然而, 晶粒尺寸的降低并不是唯一可以解释通过添加衬底层以获得更好软磁性的原因: Fu 等^[20] 研究了 Co 衬底层对 FeCo 薄膜结构与磁性的影响, 获得了较低的矫顽力以及较大的饱和磁化强度, 发现织构的变化对薄膜的软磁性也有很大的影响, 即以 (110) 织构为主导的薄膜具有较好的软磁性; Li 等^[21] 却认为 Fe, $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ 和 Cu 等材料作为衬底层, (200) 织构能获得更好的软磁性能; Sun 和 Wang^[22] 对

* 国家自然科学基金 (批准号: 11964027) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: zhengfu@nxu.edu.cn

FeCoN 薄膜添加 Permalloy 合金衬底层, 同样得到了较好的软磁性能, 他们认为较好软磁性源于衬底层的加入所引起的交换耦合; 还可以通过控制晶格应变和薄膜应力等方法来降低矫顽力^[12,23]. 因此, 在 FeCo 薄膜中添加合适的衬底层是一种简单且易于控制的方法, 能够在保持高饱和磁化强度的基础上, 有效降低薄膜的矫顽力, 并且有利于诱导面内单轴磁各向异性.

众所周知, 薄膜在高频应用中产生的涡流损耗与薄膜厚度和电阻率有很大关系, 许多研究致力于提高薄膜的电阻率来减小涡流损耗, 而忽略了薄膜厚度这一因素, 薄膜厚度大多在几十或者是上百纳米. 因此, 本实验采用磁控溅射法, 制备了厚度约为 13 nm 的 $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$ (FeCo) 合金薄膜, 选用不同的衬底材料 Cu, Co 和 $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (NiFe), 系统地研究了不同衬底材料以及不同衬底层厚度对 FeCo 合金薄膜结构与磁性能的影响.

2 实验

采用美国 Kurt J. Lesker 公司的 PVD 75 PRO-Line 磁控溅射装置, 在 Si(100) 基底上沉积了 Cu, Co 和 NiFe(衬底层)/FeCo(主层) 结构的双层合金薄膜, 溅射靶材均为 3 in (1 in = 2.54 cm) 的金属或是合金圆盘. 其中 FeCo 合金靶和 Cu 靶使用射频 (RF) 溅射, Co 靶和 NiFe 合金靶使用直流 (DC) 溅射. 主层薄膜厚度固定为 13 nm, 衬底层厚度为 1—9.3 nm. 在沉积过程中, Si 基底处在 600 Oe (1 Oe = 79.6 A/m) 的外加磁场中, 并且磁场方向平行于薄膜平面, 用于感生面内单轴磁各向异性. 主腔室的本底真空优于 5×10^{-8} Torr (1 Torr = 1.33322×10^2 Pa), 沉积气压为 4 mTorr, Ar 流量为 23 sccm (sccm 为体积流量单位, 标况下毫升/分钟). FeCo 层沉积功率为 150 W, 衬底层功率均为 50 W. 通过 X 射线衍射仪 (X-ray diffraction, XRD, Rigaku, SmartLab SE) 分析薄膜的晶体结构; 使用振动样品磁强计 (vibrating sample magnetometer, VSM, MicroSense, EZ9) 在室温下表征了薄膜的静态磁性; 使用原子力显微镜 (atomic force microscopy, AFM, 本原, CSPM 5500) 来测量膜厚和观测薄膜的表面形貌; 使用矢量网络分析仪 (vector network analyzer, VNA, Agilent, N5320A), 基于短路微带法测量了薄膜的磁谱.

3 分析与讨论

3.1 衬底材料对 FeCo 合金薄膜结构与磁性的影响

众所周知, 薄膜的性能是由薄膜的微观结构所决定的. 在不同衬底材料下沉积的 FeCo 薄膜, 其微观结构会发生改变. 图 1 为在 Si 基底及 7 nm 厚不同衬底层 (Cu, Co 和 NiFe) 上沉积的 FeCo 薄膜的 XRD 图谱. 其中, 实线为使用 Pearson VII 分布函数对实验值的拟合曲线, 对于 Cu 衬底层上沉积的 FeCo 薄膜, 采用 XPS 分峰拟合得到了完整的 Cu(111) 峰和 FeCo(110) 峰. 所有薄膜均出现了 bcc(110) 衍射峰. 其中, 在以 Cu 作为衬底层沉积的 FeCo 薄膜中观察到了 Cu(111) 峰, 这是因为 Cu 衬底层厚度较厚并且具有较好的结晶性. 同时, 可以观察到, 与直接沉积在 Si 基底上的 FeCo 薄膜相比, 存在衬底材料的 FeCo 薄膜衍射峰向小角度略微偏移, 并且存在一定程度的宽化. 根据 Scherer 公式^[24,25], 估算得到了不同衬底材料薄膜的晶粒尺寸, 如表 1 所列, 在衬底层上沉积的 FeCo 薄膜晶粒尺寸均小于在 Si 基底上沉积的 FeCo 薄膜. 从薄膜的生长机制上可知, 在形成连续多晶薄膜时, 晶粒在薄膜生长过程中以再结晶和小岛的方式相结合, 这样最后形成的晶粒一般会比初始结晶的晶核大. 加入衬底层后, 可以形成更多的新核,

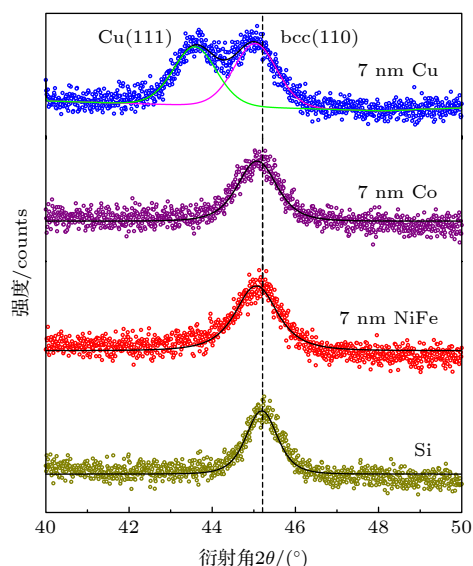


图 1 不同衬底层上沉积的 FeCo 薄膜的 XRD 图谱, 实线为拟合曲线

Fig. 1. XRD patterns of FeCo films deposited on different underlayers. Solid lines are the fitting curves.

这样会增加晶粒的数量而减小晶粒的尺寸. 另一方面衬底层能够抑制 FeCo 晶粒的生长以及晶粒的再结晶过程, 实现晶粒的细化从而降低薄膜的矫顽力.

表 1 Si 基底和不同衬底上沉积的 FeCo 薄膜的易轴矫顽力、剩磁比、应变、晶粒尺寸以及阻尼系数

Table 1. Coercivity of easy axis, remanent magnetization ratio, strain, grain size, and damping coefficient of FeCo films deposited on Si substrate and different underlayers.

衬底层材料	易轴矫顽力 H_c/Oe	剩磁比 M_r/M_s	应变 $\Delta\varepsilon/\%$	晶粒尺寸 D/nm	阻尼 α
Si	112	0.834	—	9.4 ± 0.2	—
Cu	41	0.949	0.59	7.5 ± 0.6	0.045
Co	38	0.951	0.27	7.5 ± 0.2	0.025
NiFe	23	0.991	0.29	6.9 ± 0.2	0.015

根据随机各向异性模型 (RAM)^[26], 当晶粒尺寸降低到铁磁交换长度 ($L_{ex} = \sqrt{A/K_1}$, 其中 A 为交换常数, K_1 为磁晶各向异性常数. 对于 Fe 基合金, L_{ex} 约为 35 nm) 以下, 晶粒间强的交换耦合作用使得薄膜中的有效磁晶各向异性以及磁弹性各向异性被平均化而大幅减小, 因此薄膜的矫顽力会显著降低, 并且将按晶粒尺寸 D 的六次方减小 ($H_c \propto D^6$), 薄膜具有良好的软磁特性, 这将在讨论薄膜的磁性时得到证实. 另外与直接沉积在 Si 基底上的 FeCo 薄膜相比, 衍射峰的移动意味着薄膜中存在晶格畸变, 这种晶格间的应变可以根据晶面间距的变化来计算得到: $\Delta\varepsilon = (d_2 - d_1)/d_1$, 其中 d 为晶面间距, 应变的计算是基于沉积在 Si 基底上的 FeCo 薄膜. 在 Cu, Co 和 NiFe 衬底层上沉积的 FeCo 薄膜的应变分别为 0.59%, 0.27% 和 0.29%.

图 2 为不同衬底层上沉积的 FeCo 薄膜易轴方向的磁滞回线. 可以看出, 在 Si 基底上直接沉积的 FeCo 薄膜表现出较大的矫顽力以及较低的剩磁比. 当引入衬底层后, FeCo 薄膜的软磁性都得到了一定程度的改善, 结合 XRD 数据分析可知, 晶粒尺寸的降低是获得良好软磁性的原因之一. 其中, 在 NiFe 衬底层上沉积的薄膜呈现出最好的软磁性, 易轴矫顽力 $H_{cc} = 23$ Oe, 在 Co 衬底层上所沉积的 FeCo 薄膜的矫顽力也略小于在 Cu 衬底层上所沉积的 FeCo 薄膜, 这说明铁磁性材料作为衬底层可以更好地优化薄膜的软磁性能. 并且已有研究表明^[19,27-30], 衬底材料为面心立方 (如 Cu, NiFe 等)

和密排六方 (如 Co) 结构都可以使 Fe 基合金的软磁性得到改善. 随着矫顽力的减小, 不同衬底材料薄膜的剩磁比也得到明显改善, 如表 1 所列.

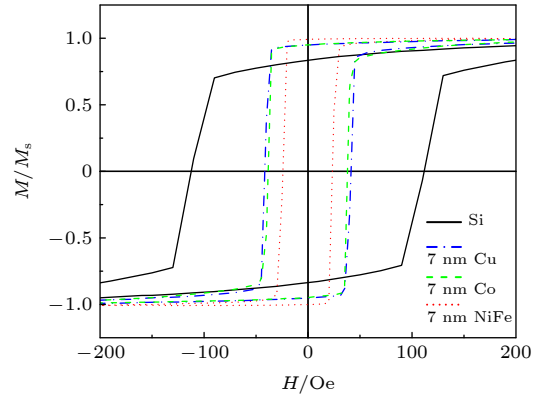


图 2 在不同衬底层上沉积的 FeCo 薄膜归一化的易轴磁滞回线

Fig. 2. Normalized easy axis hysteresis loops of FeCo films deposited on different underlayers.

根据以上研究可知通过添加衬底层, 可改变薄膜的微观结构, 那么薄膜内晶粒间的相互作用应该也会有所改变. 目前应用较为广泛来表征薄膜中晶粒间相互作用的方法为 $\delta M-H$ 曲线法, 该曲线是通过等温剩磁 (isothermal remanent magnetization, IRM) 曲线和直流退磁剩磁 (dc-demagnetization remanence, DCD) 曲线得到, 即^[31]:

$$\delta M(H) = 2M_{IRM}(H) + M_{DCD}(H) - 1, \quad (1)$$

其中 $M_{IRM}(H) = \frac{M_{rIRM}(H)}{M_r}$ 和 $M_{DCD}(H) = \frac{M_{rDCD}(H)}{M_r}$ 分别为归一化的等温剩磁值和直流退磁剩磁值 (M_r 为饱和剩磁). 根据 Stoner-Wohlfarth 模型可知^[32], 如果粒子间无相互作用则应满足以下关系:

$$M_{DCD}(H) = 1 - 2M_{IRM}(H), \quad (2)$$

即 $\delta M = 0$, 说明在两种状态下, 粒子磁矩的翻转一致. 根据 Henkel 提出的理论^[33], 若 $\delta M \neq 0$, 则说明粒子间存在相互作用. 当 $\delta M > 0$ 时, 粒子间表现出易磁化、难退磁的交换耦合作用; 相反, 当 $\delta M < 0$ 时, 粒子间则表现出难磁化、易退磁的偶极相互作用. 同时粒子间的相互作用的变化也会影响薄膜的软磁性. 因此, 为了解衬底层的加入对薄膜内粒子相互作用的影响, 通过测量难轴方向的 IRM 曲线和 DCD 曲线, 由 (1) 式得到了 $\delta M-H$ 曲线, 如图 3 所示. 所有薄膜均存在较强的晶粒间的耦合作用 (因为晶粒尺寸小的原因, 由 XRD 数据可以证明). 此外, 由于衬底层的引入, δM 在负向

出现了峰值,也就意味着衬底层的加入使得薄膜表现出较强的偶极相互作用,并且薄膜软磁性较没有衬底层的薄膜明显提升.因此,可以推断偶极相互作用也可以帮助改善薄膜的软磁性.同时,较非磁性衬底层,磁性衬底层还具有较高的晶粒间的耦合作用,这可能也是磁性衬底层能更好改善软磁性的原因.

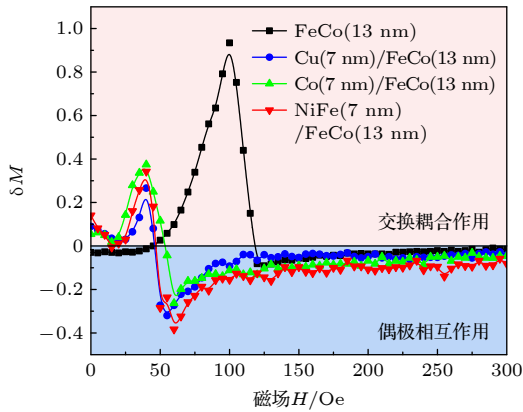


图 3 不同衬底层上沉积的 FeCo 薄膜的 δM 曲线
Fig. 3. δM curves of FeCo films deposited on different underlayers.

为了进一步研究衬底层对薄膜微观结构的影响,图 4 为在不同衬底层上沉积的 FeCo 薄膜的三

维原子力图.可以看出,当添加衬底层后,薄膜变得更加致密,表面粗糙度有所降低,从 Si 基底上的 0.92 nm 分别降到 0.70 nm(Cu 衬底), 0.85 nm (Co 衬底) 和 0.78 nm(NiFe 衬底).因此,可以推断出表面粗糙度的降低是加入衬底层后薄膜软磁性改善的原因之一.

根据 Kittler 方程,薄膜的共振频率 f_r 与薄膜的各向异性场 H_k 和饱和磁化强度 $4\pi M_s$ 相关,即 $f_r = \frac{\gamma}{2\pi} \sqrt{(4\pi M_s + H_k)H_k}$, 其中 γ 为旋磁比.在不同的衬底层上沉积的 FeCo 薄膜, H_k 和 $4\pi M_s$ 不同,将导致不同的共振频率.因此,研究了沉积在不同衬底层上的 FeCo 薄膜的高频特性,磁导率谱线如图 5 所示.沉积在不同衬底层上的 FeCo 薄膜,均表现出共振型曲线的特征以及良好的高频特性, Cu/FeCo, Co/FeCo 和 NiFe/FeCo 双层薄膜的共振频率 f_r 分别为 3.14, 3.04 和 2.83 GHz.对于这种类型的动态磁化规律可以由 Landau-Lifshitz-Gilbert (LLG) 方程所描述^[34]:

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{H}) + \frac{\alpha}{M} \mathbf{M} \times \frac{d\mathbf{M}}{dt}, \quad (3)$$

其中 γ 为旋磁比 ($\gamma = 1.76 \times 10^7$ Hz/Oe), α 为无量纲的阻尼系数.基于 LLG 方程,薄膜的微波磁导率可以表示为^[35]

$$\mu' = 1 + 4\pi M_s \gamma^2 \frac{(4\pi M_s + H_k)(1 + \alpha^2)[\omega_r^2(1 + \alpha^2) - \omega^2] + (4\pi M_s + 2H_k)(\omega\alpha)^2}{[\omega_r^2(1 + \alpha^2) - \omega^2]^2 + [\gamma\omega\alpha(4\pi M_s + 2H_k)]^2}, \quad (4)$$

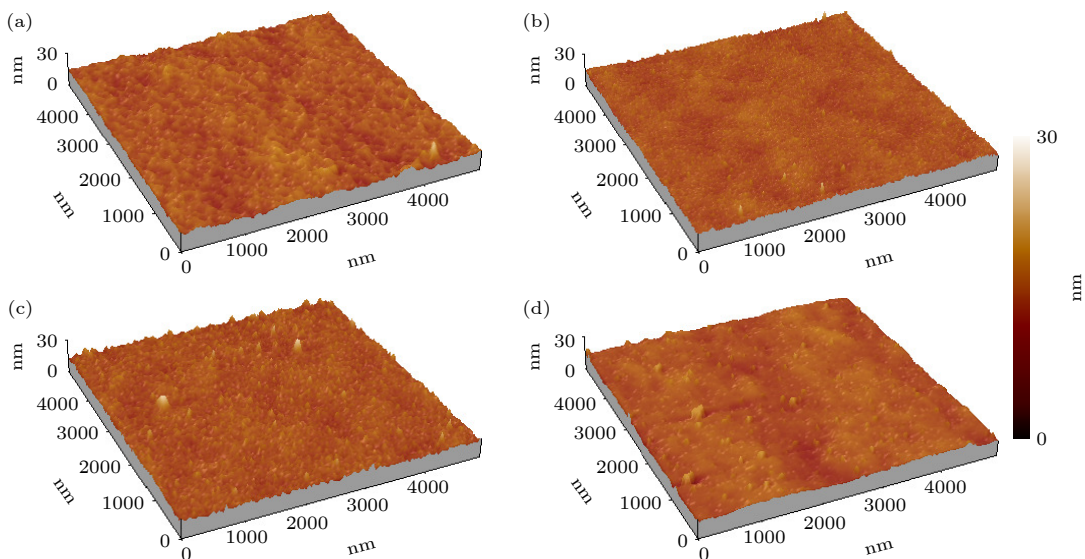


图 4 在 (a) Si 基底、(b) Cu、(c) Co、(d) NiFe 衬底层上沉积的 FeCo 薄膜的三维 AFM 图
Fig. 4. Three-dimensional AFM images of FeCo films deposite on (a) Si substrate, (b) Cu, (c) Co, and (d) NiFe underlayers.

$$\mu'' = 4\pi M_s \gamma \omega \alpha \times \frac{\gamma^2 (4\pi M_s + H_k)^2 (1 + \alpha^2) + \omega^2}{[\omega_r^2 (1 + \alpha^2) - \omega^2]^2 + [\gamma \alpha \omega (4\pi M_s + 2H_k)]^2}, \quad (5)$$

$$\omega_r = 2\pi f_r = \gamma \sqrt{(4\pi M_s + H_k) H_k}, \quad (6)$$

其中 ω_r 为共振角频率. 拟合了不同衬底层上沉积的 FeCo 薄膜的 μ - f 曲线 (如图 5 中红色实线), 拟合结果与实验结果吻合较好. 在实际应用中, 阻尼系数也是一个重要的物理量, 对于不同衬底层上沉积的薄膜, 拟合中所用的阻尼系数如表 1 所列. 在高频磁化动力学中, 了解不同来源的阻尼至关重要, 这会影响频率线宽等物理量. 在软磁薄膜中已经讨论了许多阻尼机制 [34,36,37]. 一些外在的来源, 例如双磁子散射 [36], 实际上不能用 LLG 方程很好地描述. 对于本文中所制备的衬底层/铁磁层双层薄膜, 磁谱可以很好地用 LLG 方程拟合, 表明吉尔伯特阻尼仍然占主导地位或阻尼机制可以包含在吉尔伯特阻尼形式中. 在 NiFe 衬底层上沉积的 FeCo 薄膜具有较小的阻尼系数, 为 0.015. 对具体的微波应用而言, 小的阻尼可以实现低的损耗, 提高磁性器件的高频应用.

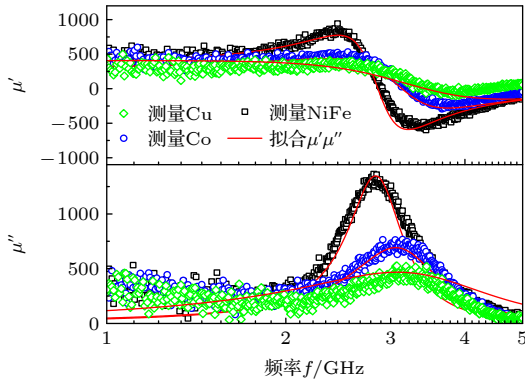


图 5 不同衬底层上沉积的 FeCo 薄膜的磁谱图
Fig. 5. Permeability spectra of FeCo films deposited on different underlayers.

在软磁材料的高频应用中, 能量的损耗也是我们关注的重点之一. 在吉赫兹下, 主要的能量损耗就是涡流引起的损耗. 在交变场中, 铁磁薄膜内将形成涡流, 造成涡流损耗. 涡流的损耗功率可以表示为: $P_e \propto f^2 t^2 / \rho$, 其中 f 为频率, t 为膜厚, ρ 为电阻率. 可以看出, 在同样的材料中, 理论上减小薄膜的厚度可以有效地降低高频应用中的涡流损耗. 对相关文献中不同衬底层上沉积的 FeCo 薄膜的

性能进行总结, 如表 2 所列. 可以看出, 本文中较薄的薄膜厚度也能获得良好的软磁性能和高频响应, 并且本文中, FeCo 铁磁层的厚度为 13 nm, 相比较于几十或上百纳米的薄膜, 从理论上可以更好地减小涡流损耗, 改善薄膜的高频特性.

表 2 不同衬底层上沉积的 FeCo 薄膜的磁性总结
Table 2. Summary of magnetic properties of FeCo films deposited on different underlayers.

材料	厚度 t /nm	f_r /GHz	μ_i	H_c /Oe	
				H_{ce}	H_{ch}
Cu/FeCo ^[21]	10+100	—	—	~33	~15
Cu/FeCo ^a	7+13	3.13	406	41	18
Co/FeCo ^[38]	7.5+100	3.04	221.1	45.8	14.7
Co/FeCo ^a	7+13	3.05	296	38	13.3
NiFe/FeCo ^[39]	10+100	—	—	~30	~25
NiFe/FeCo ^a	7+13	2.83	360	23	8

^a 本文所研究的双层合金薄膜.

3.2 NiFe 衬底层厚度对 FeCo 合金薄膜结构与磁性的影响

为了进一步研究衬底层厚度对 FeCo 薄膜结构与磁性的影响, 以 NiFe 作为衬底材料, 制备了具有不同 NiFe 衬底层厚度的 FeCo 薄膜. 图 6 为具有不同 NiFe 衬底层厚度的 FeCo 薄膜的 XRD 图谱. 薄膜均存在 α -Fe(Co)(110) 面的衍射峰, 并且随着 NiFe 衬底层厚度的增大, 衍射峰出现了一

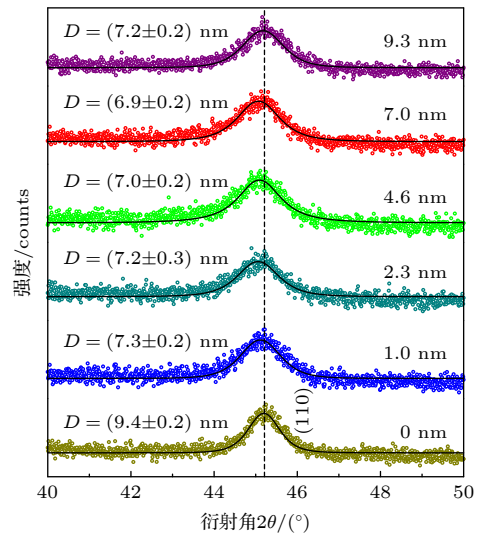


图 6 具有不同 NiFe 衬底层厚度的 FeCo 薄膜的 XRD 图谱 (实线为拟合曲线)

Fig. 6. The XRD patterns of FeCo films with different NiFe underlayer thicknesses. Solid lines are the fitting curves.

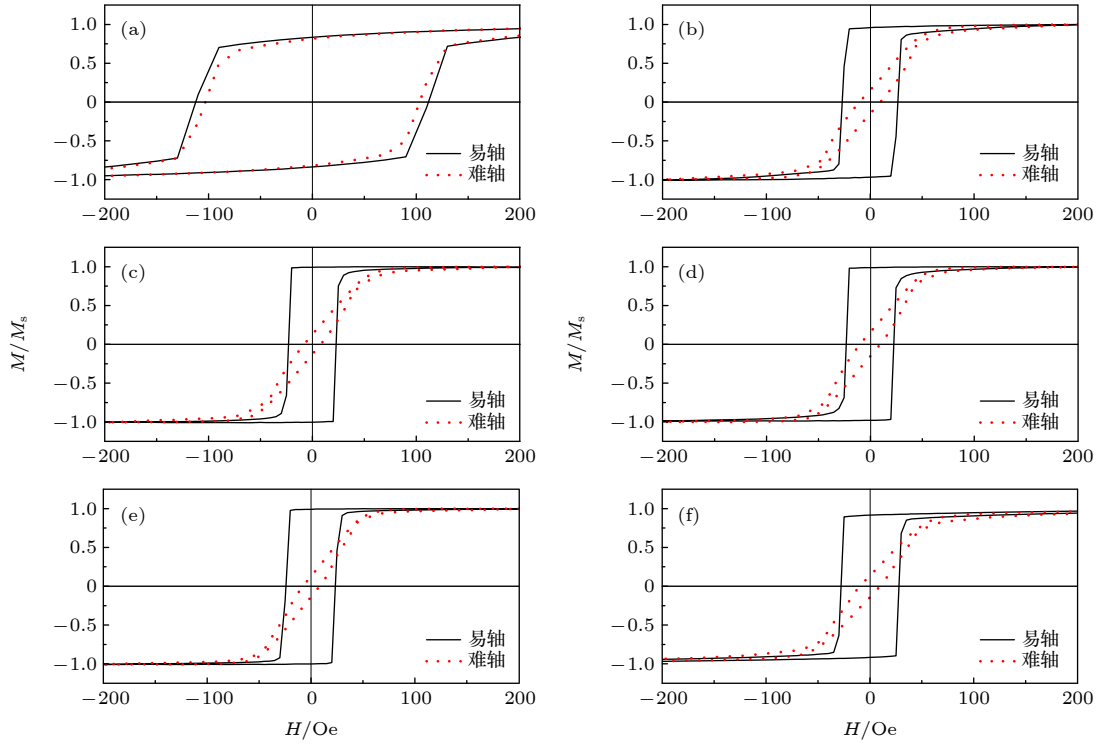


图 7 NiFe 衬底层厚度为 (a) 0, (b) 1, (c) 2.3, (d) 4.6, (e) 7, (f) 9.3 nm 的 FeCo 薄膜的面内磁滞回线

Fig. 7. In-plane hysteresis loops of FeCo films with NiFe underlayer thickness of (a) 0, (b) 1, (c) 2.3, (d) 4.6, (e) 7, and (f) 9.3 nm.

定的宽化. 根据 Scherrer 公式 [24,25], 估算了具有不同 NiFe 衬底层厚度的 FeCo 薄膜的晶粒尺寸, 由不加衬底层的 9.4 nm 减小至增加衬底层的 7.0 nm 左右. 根据随机各向异性模型 ($H_c \propto D^6$), 晶粒尺寸减小是获得良好软磁性的原因之一.

图 7 给出了具有不同 NiFe 衬底层厚度的 FeCo 薄膜的面内磁滞回线. 可以看出, 在不加衬底层时, 薄膜具有较大的矫顽力, 几乎表现为各向同性. 当加入 NiFe 衬底层后, NiFe/FeCo 薄膜都表现出良好的面内单轴磁各向异性, 易轴和难轴分别沿着平行和垂直于外加磁场的方向, 面内各向异性场 H_k 的大小都在 50—60 Oe 之间, 这也是磁场诱导感生各向异性的典型数值. 同时, 薄膜呈现出较好的软磁特性, 易轴具有极高的矩形度, 剩磁比 M_r/M_s 约为 1, 且难轴的剩余磁化强度较低, 这意味着薄膜中的磁矩基本沿着易轴的方向.

图 8 展示了 FeCo 薄膜的面内矫顽力 H_c 和饱和磁化强度 $4\pi M_s$ 与 NiFe 衬底层厚度的关系. 随着 NiFe 衬底层厚度的增大, 薄膜的软磁性能得到改善, 当 NiFe 衬底层厚度为 4.6 nm 时, 易轴的矫顽力到达最小 ($H_{ce} = 22$ Oe), 之后略微上升, 但均维持在 30 Oe 以内. 难轴矫顽力均在 10 Oe 以内,

矫顽力的变化趋势也与之之前研究类似 [21,38,40]. 同时, NiFe/FeCo 薄膜的饱和磁化强度由于 NiFe 衬底层的引入有所下降, 这是因为铁磁性衬底层 NiFe 的饱和磁化强度小于 FeCo 合金薄膜的饱和磁化强度, 并且主层厚度较小, 使得薄膜的饱和磁化强度随着 NiFe 层厚度的增加呈现降低的趋势. 当 NiFe 层厚度为 9.3 nm 时, 饱和磁化强度降到最低, 为 18.7 kG ($1 \text{ G} = 10^{-4} \text{ T}$).

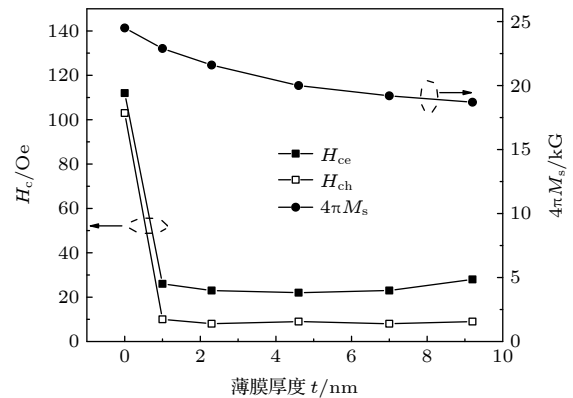


图 8 NiFe/FeCo 薄膜的面内矫顽力和饱和磁化强度与 NiFe 衬底层厚度的关系

Fig. 8. Dependence of the in-plane coercivity and saturation magnetization of NiFe/FeCo films on the thickness of NiFe underlayers.

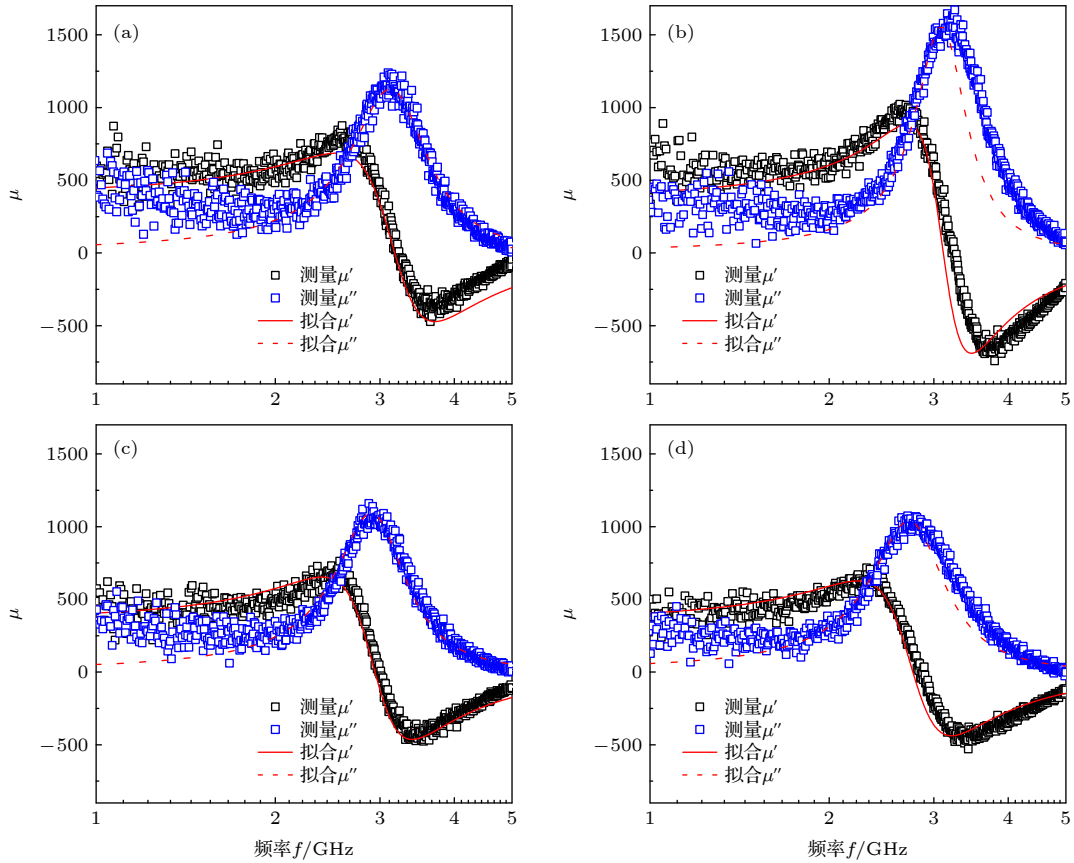


图 9 NiFe 衬底层厚度为 (a) 1, (b) 2.3, (c) 4.6, (d) 9.3 nm 的 FeCo 薄膜的磁谱图, 红线为基于 LLG 方程的拟合结果
 Fig. 9. Permeability spectra of FeCo films with NiFe underlayer thickness of (a) 1, (b) 2.3, (c) 4.6, and (d) 9.3 nm. The red lines are the fitting results based on the LLG equation.

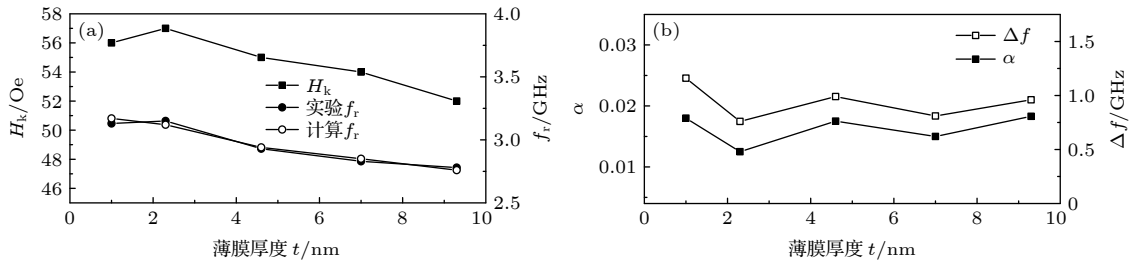


图 10 (a) NiFe/FeCo 薄膜的各向异性场和共振频率与 NiFe 衬底层厚度的关系; (b) NiFe/FeCo 薄膜的阻尼系数和频率线宽与 NiFe 衬底层厚度的关系
 Fig. 10. (a) Dependence of anisotropic field and resonance frequency of NiFe/FeCo films on thickness of NiFe underlayers; (b) dependence of damping coefficient and frequency linewidth of NiFe/FeCo films on thickness of NiFe underlayers.

图 9 为沉积在不同厚度 NiFe 衬底层上的 FeCo 薄膜的动态磁性, 使用 LLG 方程对磁谱进行了拟合. 薄膜均表现出共振型曲线的特征, 拟合结果与实验结果吻合较好. 并且, 随着 NiFe 衬底层厚度的增大, 薄膜的共振频率 f_r 向低频移动, 由 1 nm 时的 3.13 GHz 降低到 9.3 nm 时的 2.78 GHz, 这是由于饱和磁化强度和各向异性场的降低所引起的. 这样, 便可以通过改变衬底层的厚度对薄膜的动态

磁性进行调控. 同时, 薄膜的实部磁导率在低频段维持在一个较大的值 (350—450). 因此, 这类 NiFe/FeCo 薄膜可应用于要求高磁导率且工作在吉赫兹频段的微波磁性器件.

NiFe/FeCo 薄膜的共振频率 f_r , 各向异性场 H_k , 阻尼系数 α 以及频率线宽 Δf 随 NiFe 衬底层厚度的变化关系如图 10 所示. 阻尼系数通过磁谱的拟合得出, 频率线宽为 [41]

$$\Delta f = \frac{\gamma\alpha(4\pi M_s + 2H_k)}{2\pi}, \quad (7)$$

上述方程很好地解释了频率线宽与阻尼系数相似的变化趋势,如图 10(b) 所示. 并且各向异性场与共振频率随着 NiFe 衬底层厚度的增大呈现出相同的下降趋势(如图 10(a)), 根据 Kittle 方程得到的共振频率与实验结果吻合较好. 此外,所有的薄膜均表现出较小的阻尼系数,在 0.01—0.02 之间(见图 10(b)),使其在微波应用中实现低损耗.

4 结 论

本文研究了不同衬底层材料(Cu, Co 和 NiFe)以及 NiFe 衬底层厚度对 FeCo 薄膜结构与磁性的影响. 研究表明: NiFe 衬底材料对薄膜软磁性的改善效果最佳,矫顽力较沉积在 Si 基底上的薄膜减小了 79%,良好软磁性的原因为晶粒尺寸的减小、层间的偶极相互作用以及表面粗糙度的降低;对于不同 NiFe 衬底层厚度的 FeCo 薄膜,均具有较小的阻尼系数(0.01—0.02),较高的初始磁导率(350—450)和良好的高频响应(2.78—3.15 GHz); NiFe/FeCo 薄膜的共振频率,各向异性场与 NiFe 衬底的层厚度有关,可以实现对薄膜动态磁性的调控. 本文所研究的具有较低厚度的 FeCo 合金薄膜表现出良好的静态与动态磁性能,同时,在理论上还能降低薄膜在高频应用中所产生的涡流损耗,使其成为应用于微波磁性器件的潜力材料.

参考文献

- [1] Li T Y, Liu X Y, Li J W, Pan L N, He A N, Dong Y Q 2022 *J. Magn. Magn. Mater.* **547** 168777
- [2] Cronin D, Lordan D, Wei G, McCloskey P, Mathúna C Ó, Masood A 2020 *J. Appl. Phys.* **127** 243903
- [3] Tang X L, Yu Y, Su H, Zhang H W, Zhong Z Y, Jing Y L 2018 *J. Mater. Sci.* **53** 3573
- [4] Chai G, Phuoc N N, Ong C K 2012 *Sci. Rep.* **2** 832
- [5] Masood A, McCloskey P, Mathúna C Ó, Kulkarni S 2017 *J. Phys. Conf. Ser.* **903** 012050
- [6] Kurlyandskaya G V, Shcherbinin S V, Volchkov S O, Bhagat S M, Calle E, Pérez R, Vazquez M 2018 *J. Magn. Magn. Mater.* **459** 154
- [7] Zheng F, Ma Z, Gao H, Pan F C, Li S T, Cao J W, Bai J M, Wei F L 2017 *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **28** 17448
- [8] Yang F J, Min J J, Hui J H, Chen H B, Degao L, Li W J, Chen X Q, Yang C P 2017 *J. Mater. Sci. Mater. Electron.* **28** 11733
- [9] Baco S, Abbas Q A, Hayward T J, Morley N A 2021 *J. Alloy. Compd.* **881** 160549
- [10] Cabral L, Aragon F H, Villegas-Lelovsky L, Lima M P, Macedo W A A, Da Silva J L F 2019 *ACS Appl. Mater. Inter.* **11** 1529
- [11] Vopsaroiu M, Georgieva M, Grundy P J, Fernandez G V, Manzoor S, Thwaites M J, O'Grady K 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 10N303
- [12] Vas'ko V A, Rantschler J O, Kief M T 2004 *IEEE Trans. Magn.* **40** 2335
- [13] Xi L, Du J H, Zhou J J, Ma J H, Li X Y, Wang Z, Zuo Y L, Xue D S 2012 *Thin Solid Films* **520** 5421
- [14] Wang X, Zheng F, Lu J, Bai J M, Wang Y, Wei F L 2011 *Acta. Phys. Sin.* **60** 017505 (in Chinese) [王璇, 郑富, 卢佳, 白建民, 王颖, 魏福林 2011 *物理学报* **60** 017505]
- [15] Wang X, Zheng F, Liu Z Y, Liu X X, Wei D, Wei F L 2009 *J. Appl. Phys.* **105** 07B714
- [16] Wu Y P, Yang Y, Yang Z H, Ma F S, Zong B Y, Ding J 2014 *J. Appl. Phys.* **116** 093905
- [17] Xu F, Liao Z Q, Huang Q J, Ong C K, Li S D 2011 *IEEE Trans. Magn.* **47** 3921
- [18] Acosta A, Fitzell K, Schneider J D, Dong C Z, Yao Z, Wang Y E, Carman G P, Sun N X, Chang J P 2020 *Appl. Phys. Lett.* **116** 222404
- [19] Acosta A, Fitzell K, Schneider J D, Dong C Z, Yao Z, Sheil R, Wang Y E, Carman G P, Sun N X, Chang J P 2020 *J. Appl. Phys.* **128** 013903
- [20] Fu Y, Miyao T, Cao J W, Yang Z, Matsumoto M, Liu X X, Morisako A 2007 *J. Magn. Magn. Mater.* **308** 165
- [21] Li Y B, Li Z H, Liu X, Fu Y, Wei F L, Kamzin A S, Wei D 2010 *J. Appl. Phys.* **107** 09A325
- [22] Sun N X, Wang S X 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 1477
- [23] Shimatsu T, Katada H, Watanabe I, Muraoka H, Nakamura Y 2003 *IEEE Trans. Magn.* **39** 2365
- [24] Langford J I, Wilson A J C 1978 *J. Appl. Cryst.* **11** 102
- [25] Scherrer P 1918 *Nachr. Ges. Wiss. Göttingen* **26** 98
- [26] Herzer G 1990 *IEEE Trans. Magn.* **26** 1397
- [27] Jiang H, Chen Y J, Chen L F, Huai Y M 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 6821
- [28] Inturi V R, Barnard J A 1996 *J. Appl. Phys.* **79** 5904
- [29] Liu X X, Kanda H, Morisako A 2011 *J. Phys. Conf. Ser.* **266** 012037
- [30] Jung H S, Doyle W D, Wittig J E, Al-Sharab J F, Bentley J 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 2415
- [31] O'Grady K, Laidler H 1999 *J. Magn. Magn. Mater.* **200** 616
- [32] Wohlfarth E P 1958 *J. Appl. Phys.* **29** 595
- [33] Henkel O 1964 *Phys. Stat. Sol.* **7** 919
- [34] Gilbert T L 2004 *IEEE Trans. Magn.* **40** 3443
- [35] Ge S H, Yao D S, Yamaguchi M, Yang X L, Zuo H P, Ishii T, Zhou D, Li F 2007 *J. Phys. D Appl. Phys.* **40** 3660
- [36] Kuanr B K, Camley R E, Celinski Z 2005 *J. Magn. Magn. Mater.* **286** 276
- [37] Ben Youssef J, Vukadinovic N, Billet D, Labrune M 2004 *Phys. Rev. B* **69** 174402
- [38] Wu Y P, Han G C, Kong L B 2010 *J. Magn. Magn. Mater.* **322** 3223
- [39] Zhong X X, Soh W T, Phuoc N N, Liu Y, Ong C K 2015 *J. Appl. Phys.* **117** 013906
- [40] Fu Y, Cheng X F, Yang Z 2006 *Phys. Stat. Sol. (a)* **203** 963
- [41] Phuoc N N, Hungb L T, Ongb C K 2011 *J. Alloy. Compd.* **509** 4010

Effects of underlayer on structures and magnetic properties of Fe₆₅Co₃₅ alloy films*

Han Ze-Yu Song Cheng-Ji Zhou Jie Zheng Fu †

(School of Physics and Electronic-Electrical Engineering, Ningxia University, Yinchuan 750021, China)

(Received 16 March 2022; revised manuscript received 8 April 2022)

Abstract

Fe_{100-x}Co_x ($x = 30-40$) alloys have the highest saturation magnetizations, $4\pi M_s \geq 24$ kG ($1 \text{ G} = 10^{-4} \text{ T}$). Therefore, FeCo thin films have been widely used in microwave magnetic devices. However, the as-deposited FeCo film has a large coercivity, which is attributed to the large saturation magnetostriction and high magneto-crystalline anisotropy. On the basis of maintaining high saturation magnetization, adding an appropriate underlayer is a simple and effective method to reduce the coercivity of the film and facilitate the magnetic field-induced in-plane uniaxial magnetic anisotropy. Since these kinds of films are used in a high-frequency environment, the eddy current loss in GHz band must be considered. For a certain film material, the thinner the film, the lower the eddy current loss is. However, at present, the thickness of ferromagnetic layer is generally tens of nanometers or even hundreds of nanometers, which will not help to suppress the eddy current loss at high frequency. In the present study, to obtain FeCo films with good soft magnetic properties and excellent high-frequency characteristics, Fe₆₅Co₃₅ alloy films with a thickness of 13 nm and different underlayers (Cu, Co and Ni₈₀Fe₂₀) are prepared by magnetron sputtering. The effects of different underlayer materials and different NiFe underlayer thickness values on the structures and magnetic properties of FeCo films are studied. The results show that the introduction of underlayers can increase the in-plane uniaxial magnetic anisotropies of films, and the soft magnetic properties of films are significantly improved. The reason why the good soft magnetic properties can be achieved is attributed to the grain refinement, the dipolar interaction between layers, and the reduction of surface roughness. For different underlayer materials with the same thickness, NiFe underlayer can obviously improve the soft magnetic properties of FeCo films: the coercivity of easy axis is 23 Oe. By changing the thickness of NiFe underlayer, the dynamic magnetic properties of films can be adjusted. The resonance frequency changes from 3.13 GHz for NiFe(1 nm)/FeCo(13 nm) film to 2.78 GHz for NiFe(9.3 nm)/FeCo(13 nm) film. For all NiFe/FeCo bilayer films, the real part of the permeability μ' at low frequency has a large value of 350–450, and the damping coefficient α shows a small value of 0.01–0.02. In addition, the smaller film thickness can reduce eddy current loss, which contributes to its application in high-frequency microwave magnetic devices.

Keywords: FeCo alloy films, underlayers, soft magnetic properties, high-frequency characteristics

PACS: 75.30.Gw, 75.50.Ss, 75.70.-i, 75.75.-c

DOI: 10.7498/aps.71.20220476

* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11964027).

† Corresponding author. E-mail: zhengfu@nxu.edu.cn