

# 高电阻率多层纳米颗粒膜软磁特性及微波磁导率\*

别少伟 江建军† 马强 杜刚 袁林 邱永江 冯则坤 何华辉

(华中科技大学电子科学与技术系, 武汉 430074)

(2007 年 7 月 9 日收到, 2007 年 9 月 12 日收到修改稿)

研究了应用于微波频段的多层纳米颗粒膜的电阻率、软磁特性和微波磁导率. 采用多次顺序沉积  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  和  $\text{SiO}_2$  薄层制备了薄膜. 在 100 kA/m 均匀面内磁场经过 250 °C 真空退火 2 h, 制备的  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}/\text{SiO}_2$  多层膜具有难轴矫顽力为 210 A/m, 饱和磁化强度为 838.75 kA/m, 电阻率为  $2.06 \times 10^3 \mu\Omega\text{cm}$ , 而且具有面内单轴各向异性场为 2.78 kA/m. 该薄膜的微波磁导率实部为 125 并且保持到 1.6 GHz, 其铁磁共振频率为 1.73 GHz, 在 1—2 GHz 范围, 薄膜磁导率虚部具有较大值.

关键词: 纳米颗粒膜, 电阻率, 软磁特性, 微波磁导率

PACC: 7570, 7530G, 7540G, 7550B

## 1. 引言

随着信息技术的快速发展, 应用于微波频段的软磁薄膜的研究工作得到了广泛开展. 这些软磁薄膜主要用作微电感、微变压器、磁记录头、电磁噪声吸收器等工作在微波频段的器件中的磁芯材料<sup>[1-5]</sup>. 应用于微波频段的磁性薄膜必需具有高的饱和磁化强度  $M_s$  和适当的面内各向异性场  $H_k$  以增加自然共振频率, 同时还应具有高的电阻率  $\rho$  以减小涡流损耗<sup>[6-8]</sup>.

磁性纳米颗粒膜内, 纳米尺度的铁磁金属颗粒弥散分布在绝缘的非晶态基体中, 这种独特的微观组织使得其具有高的电阻率和良好的软磁特性, 因而在上述应用中备受关注. 在过去的近 10 年中, 许多不同的磁性纳米颗粒膜得到了研究, 这些薄膜具有在微波频段工作的良好磁性<sup>[9-15]</sup>.

要得到具有高电阻率和良好磁性的纳米颗粒膜, 主要的困难在于优化铁磁相和绝缘非晶态相的体积分数, 调控薄膜的微观组织<sup>[16]</sup>. 本研究提出了一种制备  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}/\text{SiO}_2$  多层纳米颗粒膜的方法, 所制备的薄膜具有适用于高频的良好软磁性. 与反应溅射<sup>[9, 13-15]</sup> 以及共溅射<sup>[10]</sup> 工艺不

同, 我们采用多次顺序沉积  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  和  $\text{SiO}_2$  薄层制备了试样. 利用  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  和  $\text{SiO}_2$  绝缘层表面能的差异, 在溅射沉积过程中采用适当的工艺参数, 使得  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  在  $\text{SiO}_2$  绝缘层上的生长处于不连续岛状和连续薄膜生长的情形. 当每次沉积  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  层的名义厚度低于某一临界值时, 薄膜由纳米尺度的金属颗粒弥散在绝缘基体中组成. 对薄膜的电阻率、软磁特性和微波磁导率进行了测试表征.

## 2. 实验方法

采用磁控溅射工艺多次顺序沉积  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  和  $\text{SiO}_2$  薄层制备了  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}/\text{SiO}_2$  多层纳米颗粒膜. 靶材为  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  和  $\text{SiO}_2$ . 基片为 Coring 7059 玻璃, 在沉积过程中对基片进行水冷. 沉积前本底气压低于  $5 \times 10^{-5}$  Pa. 溅射是在 0.5 Pa 的 Ar 气压和室温条件下进行的.  $\text{SiO}_2$  (99.99%) 靶材采用 80 W 射频 (RF) 溅射,  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  (99.99%) 靶材采用 40 W 直流 (DC) 溅射.  $\text{SiO}_2$  和  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  沉积速率分别为 0.006 和 0.06 nm/s. 试样为 30 个周期的  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}/\text{SiO}_2$  双层, 采用厚度为 20 nm 的  $\text{SiO}_2$  作为底层. 为了防止氧化, 薄膜表面采用厚度为 20 nm 的  $\text{SiO}_2$  进行覆盖. 每

\* 国家自然科学基金(批准号: 50371029, 50771047), 教育部新世纪优秀人才支持计划(批准号: NCET20420702) 和湖北省杰出青年科学基金(批准号: 2005ABB002) 资助的课题.

† E-mail: jiangjj@mail.hust.edu.cn

一薄层的厚度由沉积速率和沉积时间计算得到. 每一  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度  $t$  在 0.7—1.5 nm 变化, 每一  $\text{SiO}_2$  薄层厚度为 0.8 nm 保持不变. 多层膜的结构可以表示为  $[\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}(t \text{ nm})/\text{SiO}_2(0.8 \text{ nm})]_{30}$ . 沉积过程中采用 24 kA/m 的磁场平行于基片所在的平面以感生出面内单轴各向异性. 沉积后对薄膜进行退火处理, 工艺条件如下: 气压低于  $5 \times 10^{-5}$  Pa, 外加 100 kA/m 磁场平行于膜面, 温度为 250 °C, 时间为 2 h. 为了利用透射电子显微镜(TEM)对薄膜的微观组织进行分析, 在非晶态碳薄膜上也沉积了试样.

采用 JEM-2010 型高分辨 TEM 观察了薄膜的微观组织. 对上述试样进行了电磁性能表征. 采用四探针法测试了薄膜的电阻率, 采用 ADE Technologies 公司生产的 DMS Model 4 HF 型振动样品磁强计测量了平行和垂直于外加磁场方向上的磁滞回线, 采用短路带线法测试了薄膜在 0.5—5 GHz 范围的磁导率<sup>[17]</sup>.

### 3. 结果及讨论

图 1 是  $\text{SiO}_2(2.0 \text{ nm})/\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}(1.2 \text{ nm})/\text{SiO}_2(2.0 \text{ nm})$  三明治结构薄膜的 TEM 照片, 图中黑色的部分是  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$ , 白色的部分是  $\text{SiO}_2$ . 由于金属组元相对绝缘体组元具有高的表面张力, 金属对绝缘体不润湿, 当金属层低于某一厚度, 其形成近乎球状的纳米颗粒<sup>[18]</sup>. 如图 1 所示, 超薄的  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  单层是不连续的, 形成了颗粒结构. 金属颗粒并不是完全孤立隔开的, 由于金属相的体积分数接近逾渗阈值, 故某些颗粒彼此搭接, 颗粒之间的氧化物层非常薄, 一些颗粒可以发生物理相互作用. 因此, 顺序沉积薄层的  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  和  $\text{SiO}_2$  可以获得具有软磁特性的多层纳米颗粒膜, 而且可以期望磁性金属颗粒是磁耦合的<sup>[19]</sup>. 通过改变每一薄层的厚度可以控制薄膜的电阻率和磁性.

图 2 所示为沉积态多层膜的电阻率  $\rho$  随  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度  $t$  的变化. 当  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度  $t < 1.0$  nm 时, 随着薄层厚度的增加, 电阻率急剧降低, 当  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度  $t > 1.0$  nm 时, 电阻率变化不大, 处于  $10^3 \mu\Omega\text{cm}$  数量级. 这意味着随着  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度的增加, 金属层由岛状向连续薄膜变化.

当  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度  $t > 0.8$  nm 时, 沉积态多

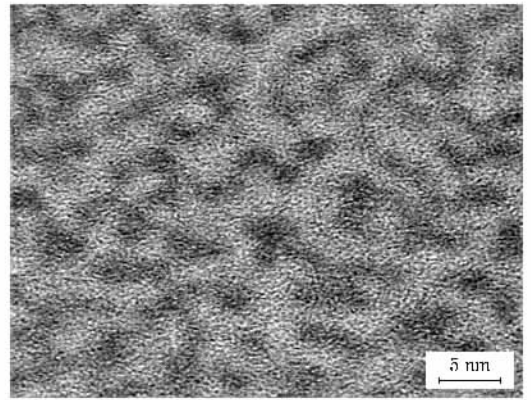


图 1  $\text{SiO}_2(2.0 \text{ nm})/\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}(1.2 \text{ nm})/\text{SiO}_2(2.0 \text{ nm})$  三明治结构薄膜的 TEM 照片

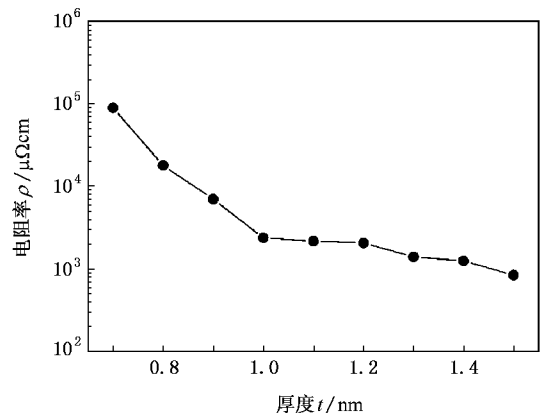


图 2 沉积态多层膜的电阻率  $\rho$  随  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度  $t$  的变化

层膜具有面内单轴各向异性. 易轴平行于外加磁场, 难轴垂直于易轴. 图 3 所示为沉积态多层膜的饱和磁化强度  $M_s$  和难轴矫顽力  $H_{ch}$  随  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度  $t$  的变化. 如图 3 所示,  $M_s$  随着  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度  $t$  的增加而增加, 这可能是由于薄膜中磁性相体积分数的增加所致. 所有试样的难轴矫顽力  $H_{ch}$  低于 800 A/m. 而且, 当  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度  $t < 0.8$  nm,  $H_{ch}$  低于 80 A/m. 在这一厚度范围, 薄膜具有面内各向同性, 表现出类似于超顺磁的行为<sup>[20]</sup>.

基于上述结果, 多层膜中会存在一个较合适的  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度, 使得多层膜具有高的电阻率和良好的软磁性. 沉积态以及退火态  $[\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}(1.2 \text{ nm})/\text{SiO}_2(0.8 \text{ nm})]_{30}$  多层膜的难轴和易轴磁滞回线示于图 4. 如图 4(a) 所示, 易轴平行于外加磁场, 难

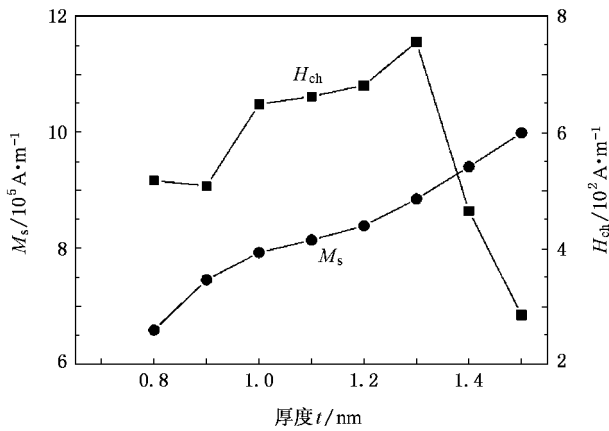


图 3 沉积态多层膜的饱和磁化强度  $M_s$  和难轴矫顽力  $H_{ch}$  随  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  薄层厚度  $t$  的变化

轴垂直于易轴. 这一各向异性是由于溅射过程中外加磁场感生的. 除此之外, 薄膜低的难轴矫顽力, 意味着具有良好的软磁性. 低的矫顽力归因于磁性颗粒之间的磁相互作用. 当磁性颗粒体积分数接近逾渗阈值时, 小的颗粒开始形成部分连续的网络, 颗粒之间是磁性耦合的, 结果是薄膜的磁性类似于软磁体<sup>[21]</sup>. 如图 4(b) 所示, 薄膜在磁场中退火以后磁性得到了改善, 难轴矫顽力  $H_{ch}$  从 680 A/m 降到 210 A/m, 电阻率几乎保持不变, 而且单轴各向异性场增强了. 难轴矫顽力的降低可能是由于磁场退火过程导致原子的方向有序化, 产生感生各向异性. 退火态薄膜具有难轴矫顽力  $H_{ch} = 210 \text{ A/m}$ , 饱和磁化强度  $M_s = 838.75 \text{ kA/m}$ , 电阻率  $\rho = 2.06 \times 10^3 \mu\Omega\text{cm}$ , 而且薄膜具有面内单轴各向异性  $H_k = 2.78 \text{ kA/m}$ . 单轴各向异性场的增强以及矫顽力的降低有利于改善薄膜的高频特性.

要将磁性薄膜应用于高频条件, 必须具有良好的磁导率-频率( $\mu$ - $f$ )响应特性. 图 5 给出了退火态  $[\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}(1.2 \text{ nm})\text{SiO}_2(0.8 \text{ nm})]_{30}$  多层膜的磁谱. 该薄膜具有高的饱和磁化强度  $M_s$  和适当的面内单轴各向异性场  $H_k$ , 有利于提高磁导率和自然共振频率, 高的电阻率  $\rho$  有利于减小涡流损耗. 如图 5 所示, 多层膜的磁导率实部  $\mu' = 125$  并且保持到 1.2 GHz, 其铁磁共振频率  $f_{\text{FMR}}$  为 1.73 GHz. 值得一提的是, 在 1—2 GHz 范围内, 薄膜磁导率虚部  $\mu''$  具有较大值, 说明其损耗较大, 这一特点在电磁吸收方面具有应用前景.

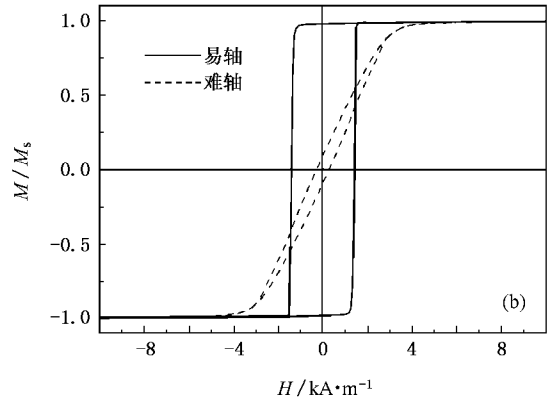
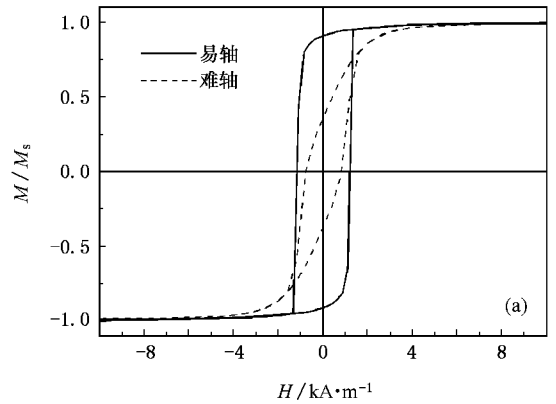


图 4  $[\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}(1.2 \text{ nm})\text{SiO}_2(0.8 \text{ nm})]_{30}$  多层膜的难轴和易轴磁滞回线 (a) 沉积态, (b) 退火态

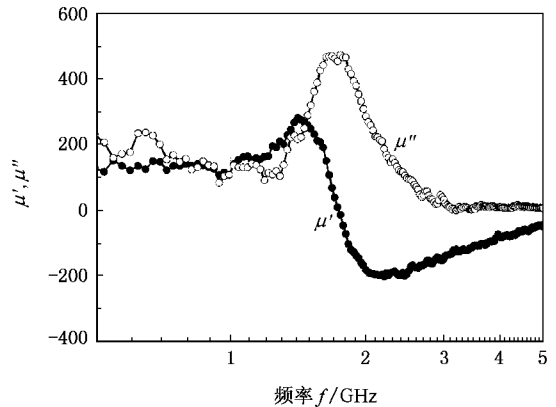


图 5 退火态  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}(1.2 \text{ nm})\text{SiO}_2(0.8 \text{ nm})_{30}$  多层膜的磁谱

### 4. 结 论

采用顺序沉积工艺和均匀磁场退火制备了具有优良软磁特性和高电阻率的  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}/\text{SiO}_2$  多层纳

米颗粒膜. 退火态 $[\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}(1.2\text{ nm})/\text{SiO}_2(0.8\text{ nm})]_{30}$ 薄膜具有良好的电磁性能. 该薄膜具有高的电阻率( $\rho = 2.06 \times 10^3 \mu\Omega\text{cm}$ ) 高的饱和磁化强度( $M_s = 838.75\text{ kA/m}$ ) 低的难轴矫顽力( $H_{ch} = 210\text{ A/m}$ ) 和适当的面内单轴各向异性( $H_k = 2.78\text{ kA/m}$ ). 同时, 薄膜的微波磁导率实部  $\mu' = 125$  并且保持到 1.6 GHz, 铁磁共振频率  $f_{\text{FMR}}$  为 1.73 GHz; 在 1—2

GHz 范围内, 薄膜磁导率虚部  $\mu''$  具有较大值. 该薄膜有望成为应用于高频微磁器件中的候选材料.

对中国科学院物理研究所磁学国家重点实验室蔡建旺研究员在实验中提供的帮助及进行的有益讨论, 对刘奕帆博士生、倪经博士和张丽娇博士在实验过程中的帮助, 一并致谢.

- [ 1 ] Korenivski V 2000 *J. Magn. Magn. Mater.* **215** 800
- [ 2 ] Taek-Soo K, Suezawa K, Yamaguchi M, Arai K, Shimada Y, Chong-Oh K 2001 *IEEE Trans. Magn.* **37** 2255
- [ 3 ] Ikeda K, Kobayashi K, Ohta K, Kondo R, Suzuki T, Fujimoto M 2003 *IEEE Trans. Magn.* **39** 3057
- [ 4 ] Beach G S D, Berkowitz A E, Parker F T, Smith D J 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 224
- [ 5 ] Ohnuma S, Iwasa T, Fujimori H, Masumoto T 2006 *IEEE Trans. Magn.* **42** 2769
- [ 6 ] Lax B, Button K J 1962 *Microwave Ferrites and Ferrimagnetics* ( New York : McGraw-Hill ) p159
- [ 7 ] Ohnuma S, Fujimori H, Mitani S, Masumoto T 1996 *J. Appl. Phys.* **79** 5130
- [ 8 ] Shimada Y, Yamaguchi M, Ohnuma S, Itoh T, Li W D, Ikeda S, Kim K H, Nagura H 2003 *IEEE Trans. Magn.* **39** 3052
- [ 9 ] Ohnuma S, Lee H J, Kobayashi N, Fujimori H, Masumoto T 2001 *IEEE Trans. Magn.* **37** 2251
- [ 10 ] Munakata M, Motoyama M, Yagi M, Ito T, Shimada Y, Yamaguchi M, Arai K I 2002 *IEEE Trans. Magn.* **38** 3147
- [ 11 ] Ikeda K, Kobayashi K, Fujimoto M 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 5395
- [ 12 ] Deng L W, Jiang J J, Feng Z K, Zhang X C, He H H 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 4359 ( in Chinese ) [ 邓联文、江建军、冯则坤、张秀成、何华辉 2004 物理学报 **53** 4359 ]
- [ 13 ] Li L L, Crawford A M, Wang S X, Marshall A F, Mao M, Schneider T, Bubber R 2005 *J. Appl. Phys.* **97** 907
- [ 14 ] Lee K E, Ha N D, Sun D S, Kollu P, Kim C G, Kim C O 2006 *J. Magn. Magn. Mater.* **304** 192
- [ 15 ] Liu Z W, Liu Y, Ma Y G, Tan C Y, Ong C K 2007 *J. Magn. Magn. Mater.* **313** 37
- [ 16 ] Jiang J J, Yuan L, Deng L W, He H H 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 3043 ( in Chinese ) [ 江建军、袁林、邓联文、何华辉 2006 物理学报 **55** 3043 ]
- [ 17 ] Jiang J J, Peng X X, Du G, Zhang X C, He H H 2006 *J. Microw.* **22**( 5 ) 35 ( in Chinese ) [ 江建军、彭显旭、杜刚、张秀成、何华辉 2006 微波学报 **22**( 5 ) 35 ]
- [ 18 ] Babonneau D, Petroff F, Maurice J L, Fettar F, Vaures A, Naudon A 2000 *Appl. Phys. Lett.* **76** 2892
- [ 19 ] Ohnuma M, Hono K, Onodera H, Ohnuma S, Fujimori H, Pedersen J S 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 817
- [ 20 ] Kakazei G N, Pogorelov Y G, Lopes A M L, Sousa J B, Cardoso S, Freitas P P, Pereira de Azevedo M M, Snoeck E 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 4044
- [ 21 ] Herzer G 1995 *Scr. Metall. Mater.* **33** 1741

# Soft magnetic properties and microwave permeability of multilayer nanogranular films with high resistivity<sup>\*</sup>

Bie Shao-Wei Jiang Jian-Jun<sup>†</sup> Ma Qiang Du Gang Yuan Lin

Di Yong-Jiang Feng Ze-Kun He Hua-Hui

(*Department of Electronic Science and Technology, Huazhong University of Science and Technology, Wuhan 430074, China*)

(Received 9 July 2007; revised manuscript received 12 September 2007)

## Abstract

The resistivity, soft magnetic properties and microwave permeability of multilayer nanogranular films suitable for high frequency applications have been investigated in this work. These films were prepared by repeated sequential depositions of thin layers of  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}$  and  $\text{SiO}_2$ . After vacuum annealing at 250 °C under a uniform in-plane magnetic field of 100 kA/m for 2 h, the  $\text{Co}_{40}\text{Fe}_{40}\text{B}_{20}/\text{SiO}_2$  multilayer films have the hard axis coercivity of 210 A/m, saturation magnetization of 838.75 kA/m, resistivity of  $2.06 \times 10^3 \mu\Omega\text{cm}$ . Moreover, the results show that the films have an in-plane uniaxial anisotropy of 2.78 kA/m. As a consequence, the real part of measured permeability keeps constant at 125 up to 1.6 GHz. The resonance frequency was about 1.73 GHz.

**Keywords:** nanogranular films, resistivity, soft magnetic properties, microwave permeability

**PACC:** 7570, 7530G, 7540G, 7550B

<sup>\*</sup> Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 50371029, 50771047), the Program for the New Century Excellent Talents in University of Ministry of Education, China (Grant No. NCET20420702) and the Natural Science Foundation for the Distinguished Scholars of Hubei Province, China (Grant No. 2005ABB002).

<sup>†</sup> E-mail: jiangji@mail.hust.edu.cn