

# 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\*

曹永泽 李国建 王强<sup>†</sup> 马永会 王慧敏 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)

(2013年6月18日收到; 2013年8月30日收到修改稿)

有无 6 T 强磁场条件下利用分子束气相沉积方法制备了不同厚度的  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜. 研究发现, 薄膜的面内矫顽力随厚度增加而降低且符合 Neel 理论; 矩形比随厚度的增加先快速增大后缓慢降低; 6 T 磁场抑制了颗粒团聚及异常长大, 并降低了薄膜表面的粗糙度, 这使薄膜的矫顽力要小于无磁场作用的薄膜, 矩形比大于无磁场作用的薄膜; 而且薄膜在垂直于基片表面的 6 T 磁场作用下由 0 T 下的面内磁各向异性转变为磁各向同性.

**关键词:** 强磁场, 气相沉积, 微观结构, 磁性能**PACS:** 75.50.-y, 81.07.Bc, 81.15.Dj, 81.15.-z**DOI:** 10.7498/aps.62.227501

## 1 引言

Fe-Ni 及 Fe-Ni 基合金薄膜是传统的软磁材料, 它们具有高的饱和磁化强度、低的矫顽力、高的磁化率及低的磁损耗等特点, 因此被广泛应用于磁头、微机电系统及磁传感等方面<sup>[1-3]</sup>. 功能器件使用的薄膜材料大多数是多层材料, 每层薄膜在实际应用中起到不同的作用, 每层功能薄膜之间需要一层阻挡层来阻挡功能薄膜之间的相互作用. 然而功能薄膜由于基片与自身结构的影响往往需要达到一定的膜厚才能具有优良的性能. 如果功能薄膜较厚, 那么也需要较厚的阻挡层, 这样就会使得薄膜的整体厚度增加, 不利于降低生产成本, 也不利于减小器件的尺寸与重量. 因此, 希望制备出较薄的具有优良磁性能的功能薄膜, 这样就可以解决上述存在的问题. 而且, 不同厚度的薄膜性能往往是不同的, 这是因为薄膜的厚度会对结晶度、晶粒尺寸、粗糙度及薄膜与基片之间的应力等造成影响. 因此研究薄膜厚度对软磁性能的影响是十分

必要的.

在实际应用中, 人们希望进一步降低薄膜的矫顽力, 提高它们组成的器件的综合性能. 因此, 研究者们总想通过常规的磁性薄膜制备手段(脉冲激光沉积、电沉积、化学反应沉积及磁控溅射等)结合不同的磁场来提高薄膜的磁性能<sup>[4-9]</sup>. 由于超导技术的迅速发展, 在实验室获得依托于超导技术的强磁场变得越发容易, 这促进了强磁场在材料科学方面的应用<sup>[10-13]</sup>. 近些年, 强磁场对非金属材料及金属材料作用的新奇现象不断被发现<sup>[14-17]</sup>, 并且关于强磁场科学方面的模拟研究也发展迅速<sup>[18]</sup>. 然而, 大多数实验现象的发现主要是针对于块体材料<sup>[19,20]</sup>, 对小尺度二维薄膜的研究较少<sup>[21]</sup>. 目前, 强磁场对于纳米尺度材料的影响规律与机理尚未明确. 因此, 本研究提出在强磁场下高真空环境中分子束气相沉积 Fe-Ni 纳米级薄膜, 主要研究强磁场对不同厚度薄膜的微观结构及磁性能影响, 以期对日后研究强磁场作用于纳米级甚至于原子级别材料奠定实验基础, 并且为强磁场下材料制备新理论提供证据.

\* 国家自然科学基金(批准号: 51101034, 51061130557, 51101032)和中央高校基本科研业务费专项资金(批准号: N120509001, N120609001)资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯作者. E-mail: wangq@mail.neu.edu.cn

## 2 实验过程

分子束气相沉积装置放入强磁场腔内, 并且与强磁场装置固定在一起. 实验装置主要由超导磁体、真空系统、加热 Fe 和 Ni 源及基片等构成, 其设备结构可以参见文献 [22, 23]. 真空抽气装置采用机械泵和分子泵组合方式, 真空腔的真空度可高达  $10^{-5}$  Pa. 加热源成空心长管状, 中心放有氧化铝坩埚. 将纯度为 99.999% 的纯铁和纯镍经过电弧熔炼制备成成分为  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  (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. 基片与加热源的距离是  $20\text{ cm}$ . 在沉积过程中, 基片温度保持在  $25\text{ }^\circ\text{C}$ . 基片位置在超导强磁场最强处 ( $6\text{ T}$ ), 磁场的方向垂直于基片表面. 在镀膜之前, 基片在  $350\text{ }^\circ\text{C}$  温度下进行烘烤  $1\text{ h}$ , 主要目的是去除基片表面的水汽.

薄膜的成分通过 Nova NanoSEM 430 设备的 X- 射线电子能谱 (EDXS) 面扫描确定. 用 dektak150 型台阶仪和 SUPRA35 扫描电镜对薄膜厚度进行了测量. 用 DMAX2400 型 X- 射线衍射仪

(XRD) 设备对薄膜的相组成和取向进行了分析, 步长为  $0.04^\circ/\text{min}$ , 铜靶波长  $\lambda = 0.154\text{ nm}$ . 用 Digital instruments Nanoscope IIIa 型原子力显微镜 (AFM) 观测薄膜表面形貌. 用 Lakeshore 7407 型号振动样品磁力计检测研究了不同条件下制备的薄膜的磁性能.

## 3 实验结果与讨论

通过 EDXS 的检测, 确定不同条件下薄膜的成分都为  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  (原子比), 实验结果表明强磁场对薄膜成分无影响. 通过台阶仪与扫描电镜分别检测了薄膜的厚度, 不同测量方法结果基本一致, 有无  $6\text{ T}$  磁场下制备了厚度分别为  $21, 45, 90$  及  $235\text{ nm}$  的薄膜, 测量误差为  $\pm 2\text{ nm}$ .

对垂直于薄膜方向的磁滞回线进行了测量 (如图 1 所示), 结果表明在垂直于膜面方向的外场达到  $1000\text{ Oe}$  ( $1\text{ Oe} = 79.5775\text{ A/m}$ ) 时, 薄膜达到饱和, 但矫顽力远高于面内方向的矫顽力, 表明垂直方向是薄膜的难磁化轴方向, 这是由于薄膜在垂直方向

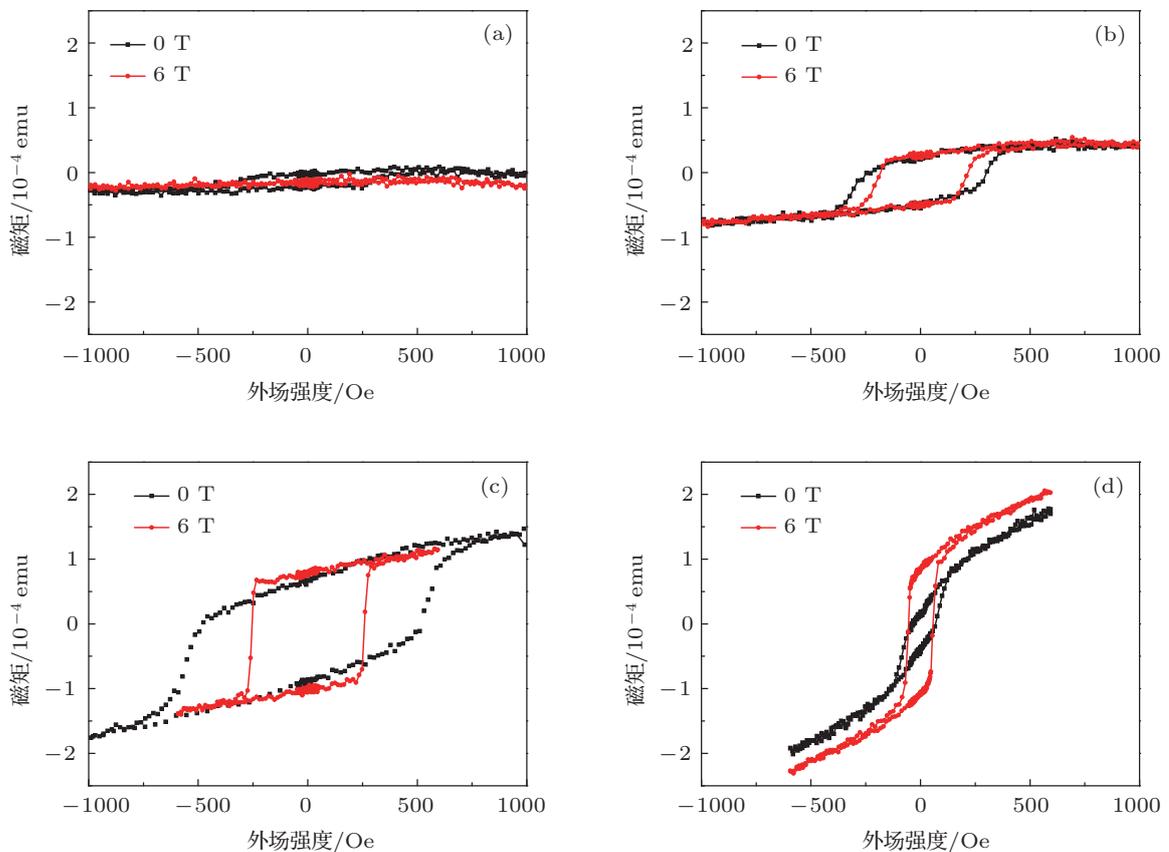


图 1 有无  $6\text{ T}$  磁场作用下不同厚度  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜的面外磁滞回线 (a)  $21\text{ nm}$ ; (b)  $45\text{ nm}$ ; (c)  $90\text{ nm}$ ; (d)  $235\text{ nm}$

上具有很大的退磁场造成的. 而在面内方向上外场为 100 Oe 足以使薄膜达到饱和 (如图 2 所示), 这表明薄膜的易轴方向在面内. Fe-Ni 薄膜在应用过程中主要应用的是易轴方向的磁性能, 因此本文着重

讨论薄膜面内的磁性能. 图 2 为有无 6 T 磁场作用下不同厚度  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜的面内磁滞回线, 其中外场与易磁化轴之间的夹角为  $0^\circ$  和  $90^\circ$ .

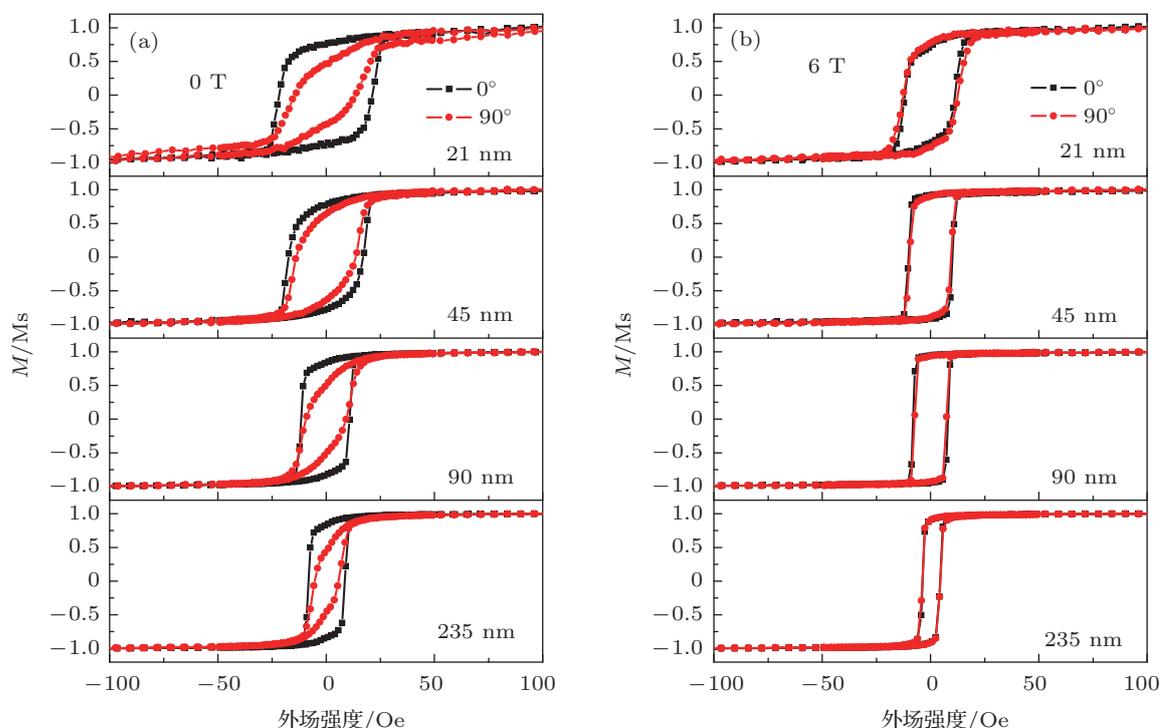


图 2 有无 6 T 磁场作用下不同厚度  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜的面内磁滞回线 (a) 0 T; (b) 6 T

从图 2 中可以发现, 随厚度的增加, 薄膜的矫顽力与饱和场都显著地降低. 而且薄膜在 6 T 磁场作用下由面内磁各向异性转变为面内磁各向同性, 薄膜的矫顽力显著降低, 矩形比提高. 不同实验条件下,  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜矫顽力与矩形比的统计结果如图 3 所示. 从图 3 中可以发现, 随厚度的增加, 薄膜的矫顽力逐渐降低 (图 3(a)), 矩形比先快速增加, 当厚度达到 90 nm 后, 矩形比开始缓慢降低 (图 3(b)). 6 T 磁场下薄膜的矫顽力与矩形比随厚度的变化趋势与无磁场情况相同. 但是在 6 T 磁场作用下, 相同厚度的条件下, 薄膜的矫顽力降低, 矩形比提高. 根据 Neel 理论 (4/3 法则)<sup>[24]</sup>,  $H_c = ct^n$ , 这里  $c$  是常数,  $n = -4/3$ . 该理论认为在薄膜厚度小于或者比得上畴壁厚度 ( $d_w$ ,  $d_w = \pi L_{ex}$ ,  $L_{ex}$  是相互交换作用长度) 时矫顽力随膜厚增加而减小, 即矫顽力将随膜厚的  $-4/3$  指数而变化. 对于 Fe-Ni 薄膜,  $L_{ex}$  大约为 100 nm<sup>[25]</sup>, 算得  $d_w$  大约为 314 nm. 因此, 本研究在不同条件下的薄膜厚度都满足 Neel 理论. 然而, 很多实验证明了  $n$  值能变化在  $-0.3$  与  $-1.5$  之

间<sup>[26]</sup>, Tabakovic 等<sup>[27]</sup> 电沉积制备的 Fe-Ni 薄膜的  $n$  值为  $-0.55$ . 图 3(a) 对 Fe-Ni 薄膜的矫顽力和膜厚进行了拟合. 结果表明, 矫顽力与膜厚之间的关系符合 Neel 的理论. 无磁场情况下,  $n = -0.40$ ; 在 6 T 磁场作用下,  $n = -0.42$ . 我们的沉积条件都为气相沉积, 材料特性也相同, 因此实验  $n$  值变化较小. Tabakovic 等指出  $n$  值依靠沉积条件与材料的特性<sup>[27]</sup>. 而且 Tabakovic 等<sup>[26]</sup> 和 Lloyd 等<sup>[28]</sup> 也指出  $n$  值与基片粗糙度有关, 我们选用的都是相同粗糙度的石英基片, 这也证实了  $n$  的变化应该很小. 然而 Lloyd 等同时指出  $c$  值与薄膜的表面粗糙度有关,  $c$  值将随薄膜表面的粗糙度增加而显著地增加. 我们用 AFM 对薄膜检测的结果表明 6 T 磁场作用下, 在相同薄膜厚度条件下, 薄膜的表面粗糙度降低 (这一点下面将着重阐述), 因此我们拟合的 6 T 曲线  $c$  值 (47.05) 小于无磁场条件的  $c$  值 (74.73).

不同厚度的  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜的 XRD 表征结果如图 4 所示. 可以发现, 薄膜由  $\alpha$  相组成, 薄膜沿  $\alpha(110)$  优先生长. 而且, 随薄膜厚度的增加, 薄膜的

$\alpha(110)$  衍射峰强度逐渐升高和半高宽减小, 这意味着薄膜的结晶度在不断地提高. 插图为  $2\theta$  范围在  $40^\circ\text{--}50^\circ$  的放大图, 其中  $\alpha(110)$  峰位置为  $44.645^\circ$ . 当薄膜厚度大于等于  $90\text{ nm}$  时, 薄膜的衍射峰强度最大的位置偏离  $44.645^\circ$ . 这意味着薄膜此时具有一定的内应力.

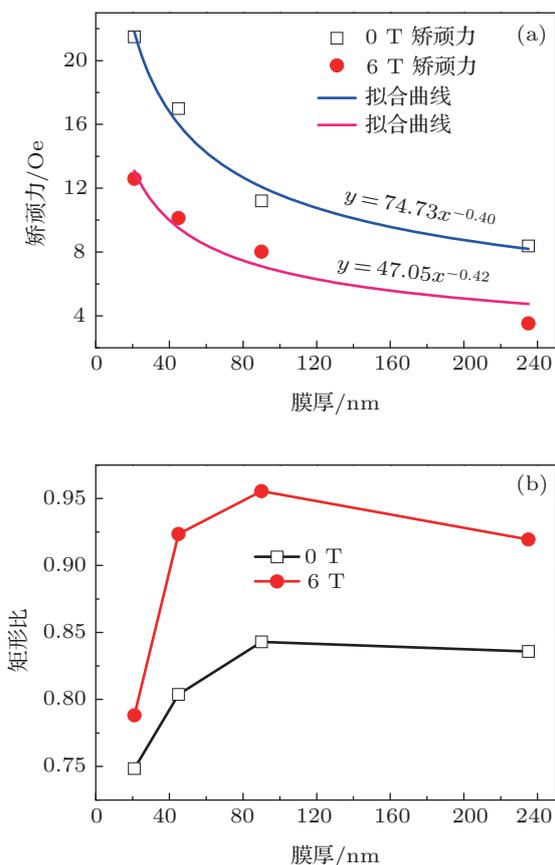


图3  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜矫顽力 (a) 及矩形比 (b) 与膜厚之间的关系

进一步用公式  $\varepsilon = (a - a_0)/a_0$  来计算薄膜的内应力, 这里,  $\varepsilon$  是均匀内应力,  $a$  是 Fe-Ni 薄膜计算的晶格常数,  $a_0$  是块体 Fe-Ni 合金  $\alpha$  相的晶格常数,  $a_0 = 0.2868\text{ nm}$ , 计算结果如表 1 所示. 结果发现, 薄膜的应力属于压应力, 这可能与石英非晶基片及低的沉积温度等因素有关. 随着薄膜厚度的增加, 压应力的值变大, 这与薄膜结晶度提高, 薄膜与非晶基片之间的相互作用增强有关. 更为重要的是  $6\text{ T}$  磁场可以显著地降低薄膜的内应力.

有无  $6\text{ T}$  磁场厚度为  $21\text{ nm}$  和  $235\text{ nm}$  的  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜的 AFM 检测结果如图 5 所示. 量程  $Z$  值都为  $20\text{ nm}$ , 图 5(a)—(d) 范围为  $5\text{ }\mu\text{m} \times 5\text{ }\mu\text{m}$ , 图 5(e) 为图 5(d) 的局部放大图, 范围为  $1\text{ }\mu\text{m} \times 1\text{ }\mu\text{m}$ , 图中的插图为线粗糙度, 这里  $P_s$  代表团聚后的颗

粒尺寸. 从图 5(a) 中可以看到“菜花”状的团聚颗粒, 每个大颗粒由细小的晶粒组成. 相同沉积时间下,  $6\text{ T}$  磁场抑制了小晶粒的团聚, 大颗粒明显减少.  $6\text{ T}$  磁场作用下,  $21\text{ nm}$  厚的薄膜的表面相当平滑, 颗粒团聚异常长大现象被抑制. 对样品进行了小范围 ( $1\text{ }\mu\text{m} \times 1\text{ }\mu\text{m}$ ) 的检测, 如图 5(e) 所示. 此时, 薄膜由  $39\text{ nm}$  大小的颗粒堆叠成的连续膜.

表 1 有无  $6\text{ T}$  磁场不同厚度的  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜的结构参数

实验条件	晶格常数 $a/\text{nm}$	均匀内应力 $\varepsilon/\%$
0 T-235 nm	0.2835	-1.15
6 T-235 nm	0.2854	-0.49
0 T-90 nm	0.2854	-0.49
6 T-90 nm	0.2863	-0.17

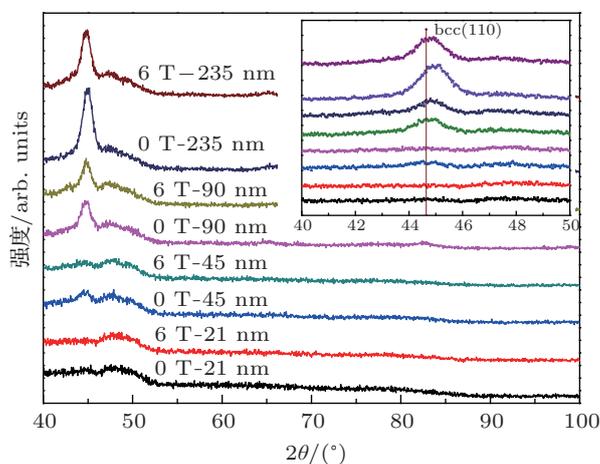


图 4 有无  $6\text{ T}$  磁场作用不同薄膜厚度的  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜 XRD 结果, 插图为  $2\theta$  范围在  $40^\circ\text{--}50^\circ$  的放大图

$6\text{ T}$  磁场使颗粒细化的同时, 也降低了薄膜的粗糙度, 因为薄膜的粗糙度和颗粒尺寸有一定的关系. 颗粒尺寸与粗糙度之间的关系如图 6 所示, 表明颗粒尺寸越大, 薄膜的粗糙度也越高.

总体来说, 薄膜的内应力、结晶度、颗粒尺寸与分布及表面粗糙度都会影响软磁性能.  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜的平均磁致伸缩系数是大于零的, 在磁化过程中, 压应力与正的磁致伸缩相互作用将导致磁化困难, 增加矫顽力. 因此,  $6\text{ T}$  磁场降低压应力, 这对降低薄膜的矫顽力起到了促进作用. 薄膜随厚度的增加, 软磁性能得到了提高, 这与薄膜结晶度的提高是密不可分的. 而且我们在之前的研究中也考虑到结晶度的提高会改善薄膜的磁性能<sup>[23]</sup>. 在相同膜厚条件下,  $6\text{ T}$  磁场使得薄膜的软磁性能提高的原因是  $6\text{ T}$  磁场抑制了颗粒的团聚和异常长大, 使薄膜粗糙度降低.

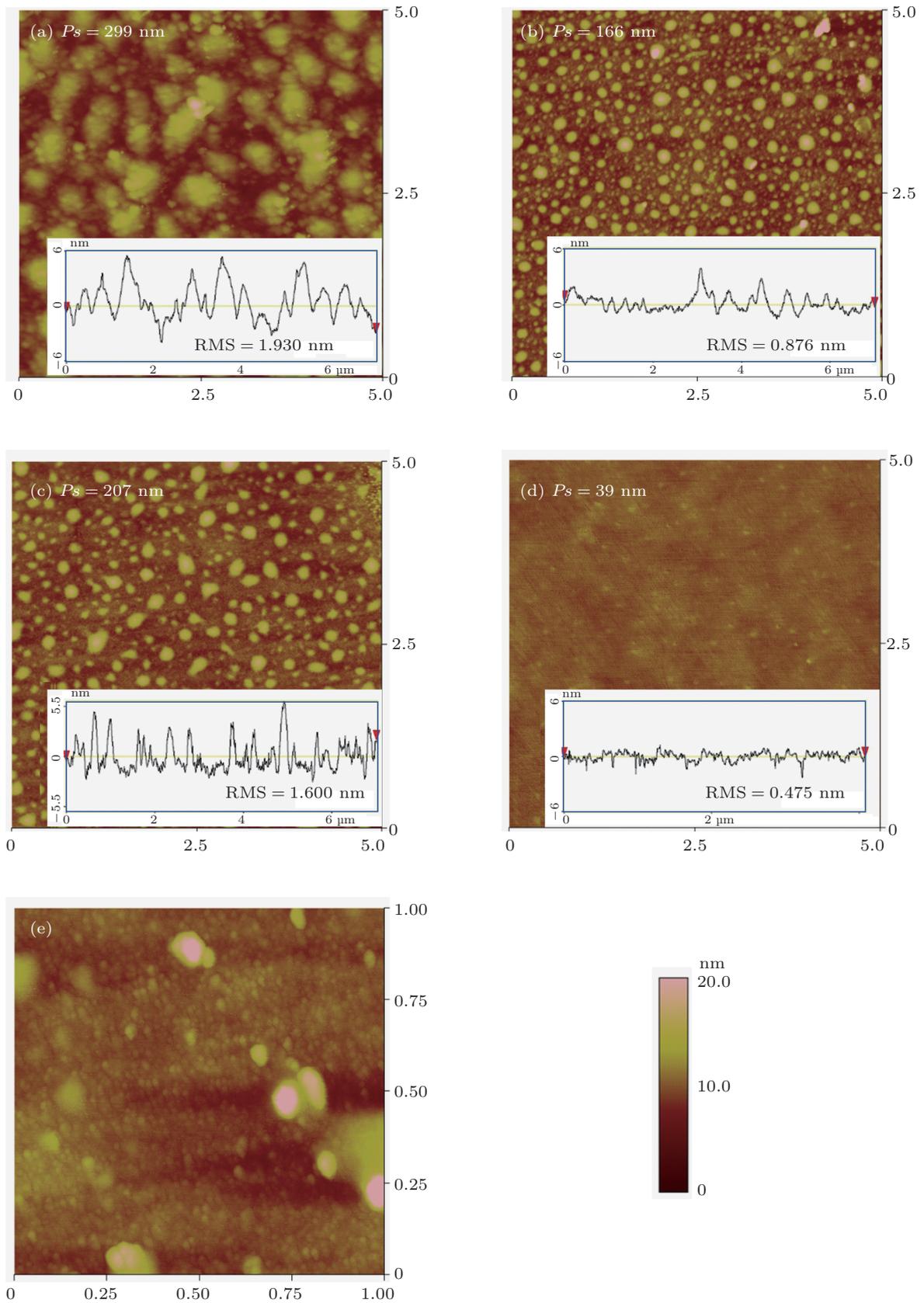


图5 有无6 T 磁场不同厚度的  $\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  薄膜的 AFM 结果 (a) 0 T, 235 nm; (b) 6 T, 235 nm; (c) 0 T, 21 nm; (d) 6 T, 21 nm; (e) 为图 (d) 的局部放大图

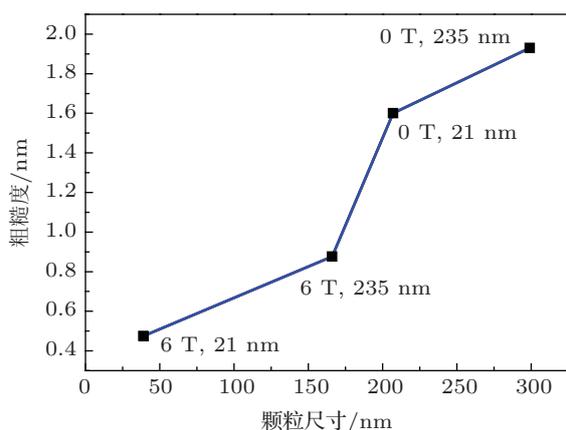


图6 颗粒尺寸与粗糙度之间的关系

## 4 结论

在基片温度为 25 °C 时, 在有无 6 T 强磁场下, 利用分子束气相沉积制备了不同厚度的 Fe<sub>80</sub>Ni<sub>20</sub> 薄膜的实验, 考察了薄膜的微观结构和磁性能. 研究发现:

1) 有无 6 T 磁场薄膜都沿  $\alpha(110)$  方向生长, 随薄膜厚度的增加, 薄膜的结晶度提高, 薄膜的矫顽力降低, 矩形比呈现先快速增加后缓慢降低的趋势;

2) 在 6 T 强磁场作用下, 在相同厚度的情况下, 薄膜的矫顽力降低, 矩形比增加, 薄膜由面内磁各向异性转变为面内磁各向同性, 这是由于 6 T 磁场抑制了颗粒团聚和异常长大, 使薄膜的粗糙度降低.

- [1] Loloe R, Crimp M A 2002 *J. Appl. Phys.* **92** 4541
- [2] Romera M, Ranchal R, Ciudad D, Maicas M, Aroca C 2011 *J. Appl. Phys.* **110** 083910
- [3] Szmaja W, Balcerski J, Koztowski W, Cichomski M, Grobelny J, Smolny M, Kowalczyk P J 2012 *J. Alloys Compd.* **521** 174
- [4] Anjum S, Rafique M S, Khaleeq-ur-Rahaman M, Siraj K, Usman A, Ahsan A, Naseem S, Khan K 2011 *J. Cryst. Growth* **324** 142
- [5] Matsushima H, Nohira T, Ito Y 2004 *Electrochem. Solid-State Lett.* **7** C81
- [6] Koza J A, Karnbach F, Uhlemann M, McCord J, Mickel C, Gebert A, Baunack S, Schultz L 2010 *Electrochim. Acta* **55** 819
- [7] Nilsen O, Lie M, Foss S, Fjellvag H, Kjekshus A 2004 *Appl. Surf. Sci.* **227** 40
- [8] Wang H Y, Mitani S, Motokawa M, Fujimori H 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 9145
- [9] Zhang L R, Lu H, Liu X, Bai J M, Wei F L 2012 *Chin. Phys. B* **21** 037502
- [10] Cao X W 1996 *Physics* **25** 552 (in Chinese) [曹效文 1996 物理 **25** 552]
- [11] Zhang Y H 2009 *Physics* **38** 320 (in Chinese) [张裕恒 2009 物理 **38** 320]
- [12] 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]
- [13] Hu F X, Shen B G, Sun J R 2013 *Chin. Phys. B* **22** 037505
- [14] Sung M G, Sassa K, Tagawa T, Miyata T, Ogawa H, Doyama M, Yamada S, Asai S 2002 *Carbon* **40** 2013
- [15] Garmestani H, Al-Haik M S, Dahmen K, Tannenbaum R, Li D S, Sablin S S, Hussaini M Y 2003 *Adv. Mater.* **15** 1918
- [16] Sheikh-Ali A D, Molodov D A, Garmestani H 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 3005
- [17] Li X, Fautrelle Y, Ren Z M 2007 *Acta Mater.* **55** 1377
- [18] Ando T, Hirota N, Wada H 2009 *Sci. Technol. Adv. Mater.* **10** 014609
- [19] Wang Q, Liu Y, Liu T, Gao P F, Wang K 2012 *Appl. Phys. Lett.* **101** 132406
- [20] Wang Q, Lou C S, Liu T, Wei N, Wang C J, He J C 2009 *J. Phys. D: Appl. Phys.* **42** 025001
- [21] Zhao A K, Ren Z M, Ren S Y, Cao G H, Ren W L 2009 *Acta Phys. Sin.* **58** 7101 (in Chinese) [赵安昆, 任忠鸣, 任树洋, 操光辉, 任维丽 2009 物理学报 **58** 7101]
- [22] Wang Q, Cao Y Z, Li G J, Wang K, Du J J, He J C 2013 *Sci. Adv. Mater.* **5** 447
- [23] Cao Y Z, Wang Q, Li G J, Du J J, Wu C, He J C 2013 *J. Magn. Magn. Mater.* **332** 38
- [24] Neel L 1956 *J. Phys. Radium* **17** 250
- [25] Qin X Y, Lee J S, Kim J G 1999 *J. Appl. Phys.* **86** 2146
- [26] Tabakovic I, Inturi V, Riemer S 2002 *J. Electrochem. Soc.* **149** C18
- [27] Tabakovic I, Riemer S, Vas'ko V, Sapozhnikov V, Kief M 2003 *J. Electrochem. Soc.* **150** C635
- [28] Lloyd J C, Smith R S 1959 *J. Appl. Phys.* **30** 274S

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

Cao Yong-Ze Li Guo-Jian Wang Qiang<sup>†</sup> Ma Yong-Hui  
Wang Hui-Min He Ji-Cheng

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

(Received 18 June 2013; revised manuscript received 30 August 2013)

## Abstract

$\text{Fe}_{80}\text{Ni}_{20}$  thin films with different thickness values are prepared by the molecular beam vapor deposition technique, respectively, in the cases with applying no magnetic field and with applying a 6 T magnetic field perpendicular to the surface of substrates. Film property studies show that as film thickness value increases, the coercive force in-plane decreases, which is in accordance with Neel theory, and that the squareness ratio first quickly increases, and then slowly decreases. The 6 T magnetic field restrains coalescence and abnormal growth of grains, and reduces surface roughness. Therefore, with 6 T magnetic field applied during the film preparation, the coercive force of thin film is less and the squareness ratio is larger than that with no magnetic field applied. The thin films are anisotropic in-plane with applying no magnetic field, but isotropic with applying a 6 T magnetic field.

**Keywords:** high magnetic field, vapor deposition, microstructure, magnetic properties

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

**DOI:** 10.7498/aps.62.227501

---

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant Nos. 51101034, 51061130557, 51101032) and the Fundamental Research Funds for the Central Universities, China (Grant Nos. N120509001, N120609001).

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail: wangq@mail.neu.edu.cn