

特约专栏

纳米高频软磁薄膜材料研究进展

王艺程, 张怀武, 鲁广铎, 白飞明

(电子科技大学 电子薄膜与集成器件国家重点实验室, 四川 成都 610054)

摘要: 由于高频软磁薄膜材料具有巨大的应用前景因此获得了人们广泛的关注。对纳米合金软磁薄膜、纳米软磁颗粒膜、多层膜以及图形化薄膜进行了分类综述, 分别介绍了各类薄膜的制备方法、化学成分、微观结构特点和高频物理性能, 并对影响其性能的主要因素进行了讨论。由于纳米高频软磁薄膜材料相对于传统磁性材料具有显著优势, 所以纳米合金软磁薄膜有望取代铁氧体作为制作高频磁性器件的主要应用材料。由于纳米软磁颗粒膜、多层膜以及新兴的图形化薄膜具有材料结构设计和物性剪裁的自由度, 因此将是今后的重点研究方向。

关键词: 高频软磁薄膜; 纳米材料; 磁导率; 铁磁共振频率

中图分类号: O482.54 文献标识码: A 文章编号: 1674-3962(2012)07-0042-08

Recent Progress on Nanostructured High Frequency Soft Magnetic Thin Films

WANG Yicheng, ZHANG Huaiwu, LU Guangduo, BAI Feiming

(State Key Laboratory of Electronic Thin Films and Integrated Devices, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 610054, China)

Abstract: Soft magnetic thin films have attracted much attention due to their great potentials in high frequency applications. The article summarizes the recent progress of nanocrystalline alloy soft magnetic films, nanogranular soft magnetic films, multilayer films and graphical films, respectively. Special attentions were given to the film preparation techniques, the chemical composition, the microstructure and the high frequency physical properties of the different films, and the main factors affecting the magnetic and high frequency properties were also discussed. Because of the much better properties and performance, nanocrystalline alloy soft magnetic films have replaced the ferrites as the major materials used in high frequency devices. Meanwhile, nanogranular soft magnetic films, multilayer films and emerging graphical films will be the trend in future, thanks to their great freedom in designing microstructure and tailoring materials properties.

Key words: high frequency soft magnetic thin films; nanocrystalline materials; permeability; ferromagnetic resonance frequency

1 前言

在计算机和通讯领域, 随着信息处理速度和传输频率越来越高, 相关器件的性能以及支撑器件的材料性能正在经受着越来越严峻的考验。在实现了电阻、电容、半导体和光电器件集成化后, 如何使得软磁材料应用在GHz频段并实现磁性电子器件的集成, 已经成为制约电子信息高频化和集成化的瓶颈。其主要原因就是, 用于电感器、变压器的磁性材料在高频时磁导率下降。研究表明, 为了维持优良的高频特性, 磁性材料的

电阻率 ρ 和饱和磁化强度 M_s 都要大, 并且还要具有适度大小的各向异性场 H_k 。而在另一个方面, 现在的集成电子器件在运行中产生的高密度、宽频谱的电磁信号充满整个空间, 形成复杂的电磁环境, 这就要求电子设备及电源在各个频段都具有很好的电磁兼容性, 这就给抗电磁干扰技术带来了一系列的挑战。一直以来, 人们都在找寻一种能应用于高频、超高频甚至微波频段的高性能软磁薄膜材料, 以用于薄膜电感器、薄膜电磁干扰抑制器、GHz级薄膜磁场传感器以及高密度磁记录再生磁头等。

从20世纪40年代开始, 对高频软磁材料的研究主要集中在铁氧体以及坡莫合金方面^[1]。在铁氧体中, 以NiZn系列尖晶石铁氧体^[2]和BaM($M = \text{Zn}, \text{Co}, \text{Ti}, \text{W}$ 等)系列平面六角铁氧体的应用最为广泛。但是由于铁氧体的饱和磁化强度很低, 而且居里点也比较低, 因此

收稿日期: 2012-04-25

基金项目: 科技部重大基础研究项目(2012CB933104), 中央高校基本科研业务费资助

作者简介: 王艺程, 男, 1990年生, 博士研究生

通讯作者: 白飞明, 男, 1975年生, 博士, 教授

逐渐开发出了非晶软磁薄膜作为新一代的高频软磁材料。这类材料通常具有高强度、高耐腐蚀性和高电阻率的特性,但热稳定性相对较差,同时其饱和磁化强度仍不够高。随着工艺条件以及生产技术的改变及革新,人们又发展出纳米合金软磁薄膜、纳米软磁颗粒膜以及多层膜结构的薄膜并在高频器件的设计中得到了充分的应用。随着时间的发展,高频软磁薄膜在实验、理论以及应用方面都取得了很好的发展,也有了综述性的文章。有关钴镍基软磁薄膜如文献[3],铁基软磁薄膜如文献[4],纳米磁性颗粒膜方面如文献[5],而关于薄膜的应用方面如文献[6],噪声抑制器的研究进展如文献[7]。本文旨在通过对纳米合金软磁薄膜、纳米软磁颗粒膜、多层膜以及图形化薄膜的梳理,介绍近期国内外在高频软磁薄膜方面的研究进展。

2 纳米合金软磁薄膜

该材料具有高的饱和磁化强度和磁导率以及良好的热稳定性,先由溅射沉积形成非晶态膜,而后加热形成纳米晶和非晶两相,再通过晶粒细化,达到低磁致伸缩,从而获得优良的软磁性能。双相纳米晶软磁薄膜以其优异的性能,在甚高频(VHF)和超高频(UHF)的薄膜器件中得到了广泛的应用。最早有3种纳米晶软磁合金,牌号分别为Finemet的Fe-M-Si-Cu-B($M = \text{Nb}, \text{V}, \text{Cr}, \text{Mo}$ 等)合金^[8],牌号为Nanoperm的Fe-M-B($M = \text{Zr}, \text{Hf}, \text{Nb}, \text{Ta}$ 等)合金^[9]和牌号为Hitperm的(Fe, Co)-M-B($M = \text{Zr}, \text{Hf}, \text{Ta}$ 等)纳米晶软磁合金^[10],三者都是采用对非晶前驱体进行纳米晶化的方法制备的,均具有非晶和纳米晶的双相结构,而且纳米晶的晶粒尺寸在10 nm左右^[11],薄膜具有高的饱和磁化强度和磁导率、低的矫顽力和高频损耗,综合软磁性能比以前有了明显的提高^[12]。随着技术的发展,后期又开发出由Fe基氮化物及其衍生物组成的FeMN系列纳米合金软磁薄膜。

2.1 FeMB系列软磁薄膜

为了提高材料的饱和磁化强度,人们将B掺入到磁性元素中以促使形成纳米晶,最终形成FeMB($M = \text{Zr}, \text{Hf}, \text{Ta}, \text{Nb}$ 等)体系的软磁薄膜。这里的Fe泛指薄膜中所有的磁性元素,而加入的一定量的非磁性元素是为了提高薄膜的电阻率。

Lou等人研究了不同B含量FeGaB薄膜的软磁性能及高频特性^[13]。采用双靶同步溅射,靶1为Fe₈₀Ga₂₀合金靶,靶2为纯B靶。固定靶1的功率,通过改变靶2的溅射功率来调节B的含量从而得到具有不同成分的FeGaB薄膜。实验表明,当B的含量低于6%时,B的加入会细化薄膜中颗粒的尺寸,从而导致矫顽力以及各

向异性场的降低。而当B掺杂的浓度大于9%时,薄膜由纳米晶变为非晶无定形态。磁晶各向异性的消失使得薄膜的矫顽力以及各向异性场有明显的衰减。其铁磁共振频率为1.85 GHz,共振线宽为1.3~1.6 kA/m,磁致伸缩系数达到了 70×10^{-6} 。

Yu等人研究了在FeCoB薄膜中添加Ni元素和倾斜溅射对高频软磁性能的影响^[14]。Ni元素的加入可以使FeCoB薄膜的矫顽力明显降低,同时增大其电阻率和各向异性场,而饱和磁化强度基本保持不变。原因是由于直径较大的Ni原子使晶粒间距减小,促进了B原子的晶界偏析,所以Fe, Co等元素可以在晶界处形成更好的柱状微结构,从而导致薄膜电阻率的提高。另一方面, Ni原子的加入可以消除薄膜内的残余应力,从而起到降低薄膜矫顽力的作用。而倾斜溅射的方法,可以通过调节倾斜角从而调节薄膜内柱状结构的生长,因而感生出大的面内各向异性场。利用45°角倾斜溅射制备的FeCoNiB薄膜,各向异性场达到18.4 kA/m,而矫顽力仅为64 A/m,自然共振频率达到了6.1 GHz,并且初始磁导率保持100不变直到4 GHz。

Kong等人研究了退火对FeZrB软磁薄膜结构及磁性能的影响^[15]。通过XRD以及VSM测试发现,对于没有退火的样品,薄膜表现出非晶的形态,居里温度和饱和磁化强度分别为305 °C以及982 kA/m。而当退火温度达到550 °C时,随着退火时间的增长,薄膜出现了部分的 α -Fe结晶。SEM结果显示,样品同时具有非晶相以及 α -Fe纳米晶相,并且 α -Fe颗粒是散乱分布在非晶取向中的。当退火时间为20~30 min时,饱和磁化强度增大到1 158 kA/m。

在实际的应用中,人们往往希望材料在截止频率之后的磁导率的虚部能变得越大越好,共振峰也能变得越宽越好,这样在噪音信号的频段,材料能够有效地衰减和隔离掉这些信号。为了提高虚部的半高宽,利用CoFe以及Fe等不同磁性材料的共振频率不同,人们将CoFe以及Fe进行复合,形成多相复合材料,这样就能有效地提高磁导率虚部的半高宽,在实际器件如抗EMI的设计中,获得更多的应用。

Yang等人研究了FeCo和Fe双相复合材料的FeCoB薄膜的软磁性能以及高频特性^[16]。制备时采用Fe₅₀Co₅₀合金靶与4个FeB贴片共溅射。沉积成膜后,分别在外加160 kA/m磁场和不同温度下进行退火后处理。实验表明,磁导率虚部形成2个不同的共振峰。其中,共振频率较低的为Fe的共振峰,而较高的则为FeCo的共振峰。如图1所示,当退火温度在200~300 °C的时候,虚部半高宽一直在4 GHz左右,但是当退火温度上升到350 °C时,半高宽迅速增大并且在退火温度为450 °C的

时候可以达到 6 GHz。产生这种现象的另一个方面原因是由于退火增大了晶粒尺寸以及各向异性散射,从而增大了薄膜的损耗,这也使得材料在微波吸收和电子屏蔽方面能有更多的应用。

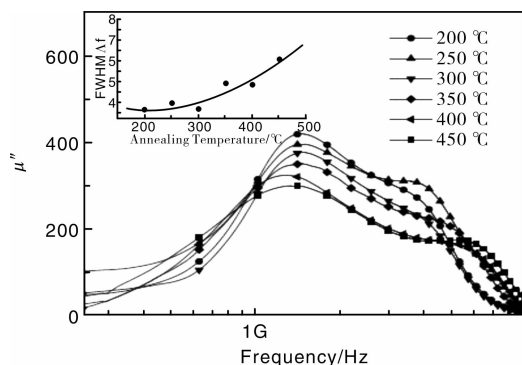


图 1 不同退火温度下磁导率虚部随频率的变化

Fig. 1 Imaginary parts of the frequency-dependent permeability of the films annealed at different temperatures

总的来说,在薄膜中加入 B 元素可以使 α -Fe 结构发生畸变并且容易在晶界析出,从而增加薄膜的面内各向异性电阻率。同时,采用一些特殊的溅射以及后处理工艺如倾斜入射、外加磁场、静磁场退火等,同样可以增大薄膜的各向异性场,这样使得薄膜同时具有高的饱和磁化强度,低的矫顽力以及优良的高频特性。另外,当薄膜形成多相结构时,展示出了非常优异的频率带宽,使得其在高频器件中具有广泛的应用前景。

2.2 FeMN 系列软磁薄膜

近年来,为了获得更高的截止频率,人们开发出了由 Fe 基氮化物及其衍生物组成的 FeMN ($M = \text{Cr}, \text{Ti}, \text{Ta}, \text{Al}, \text{Zr}, \text{Rh}$ 等) 体系的纳米晶软磁薄膜^[17-19]。此类薄膜在氮气及氩气的混合气体中溅射成膜。溅射的 Fe-N 系合金膜为 α -Fe 相和 γ -Fe₄N 相的复合物,具有高达 1 600 kA/m 的饱和磁感应强度。加入的少量其它元素 M 则可以提高薄膜的电阻率。

Jin 研究了 Fe-Cr-Ta-N 合金薄膜的高频磁特性^[20]。采用反应溅射工艺在氮气气氛中制备了物质的量分数比为 Fe-4.6% Cr-0.2% Ta-7.4% N 的薄膜。沉积态薄膜具有纳米尺度的晶粒和良好的软磁性: $H_c = 95.5 \text{ A/m}$, $M_s = 1 591.5 \text{ kA/m}$ 。易磁化轴磁滞回线是矩形的,难磁化轴磁滞回线是直线形闭合的,各向异性场 $H_k = 1 591.5 \sim 7 957.7 \text{ A/m}$ 。由于高的饱和磁化强度和相对强的各向异性场,薄膜具有良好的磁导率和低的损耗,铁磁共振频率高于 2 GHz。

Hung 等人在不同基片上制备了 FeTaN 薄膜^[21],系统研究了薄膜的动态磁性能与角度的关系从而通过磁谱推断出样品的磁矩分布。结果表明,在密度更大的基片

上,薄膜内部的磁化方向更倾向于各向异性排布,反之,在更薄和更柔韧的基片上沉积的薄膜则偏向于各向同性排布。这是由于不同厚度的基片上沉积的薄膜,其内应力也有所不同,从而使得磁矩的分布产生了变化。在 50 μm 的 Mylar 基片上沉积的 FeTaN 薄膜,各向异性场为 3 440 A/m,共振频率达到 2.76 GHz。

Fe-M-N 薄膜具有较好的软磁性。然而,其软磁性一般只是对沉积态的薄膜进行相对较高温度 (300 ~ 600 $^{\circ}\text{C}$) 热处理发生纳米晶化后才能得到,这一后续热处理增加了工艺的复杂性。因此,人们希望尽可能避免后续高温热处理。Liu 等人采用溅射时原位加磁场的方法制备了 FeCoN 薄膜,研究了不同氩氮比溅射气体对薄膜的磁性能的影响^[22]。随着氮气的加入,薄膜的电阻从 72.6 $\mu\Omega$ 增加到了 211 $\mu\Omega$,截止频率从 2.09 GHz 上升到 2.99 GHz,磁导率则下降为 245。当氮气流量为 7 sccm 的时候,薄膜具有最优的软磁性能,难轴的矫顽力为 283 A/m,饱和磁化强度达到 1 456 kA/m。

通常添加 Co 到 Fe 基薄膜中有望增加各向异性场。Zhou 等人研究了 FeCoAlN 的磁性能、高频特性以及热稳定性^[23]。在氩气以及氮气的混合气体中,采用双靶共溅射的手段制备了不同成分的 FeCoAlN 合金薄膜,靶 1、靶 2 分别为 Fe₆₅Co₃₅ 合金靶以及纯 Al 靶。电阻率随 N 元素含量的变化如图 2 所示,当没有加入氮气的时候,FeCoAl 合金薄膜的电阻率为 43.7 $\mu\Omega \cdot \text{cm}$,而当加入氮气时,电阻率增大为 188.8 $\mu\Omega \cdot \text{cm}$ 。一方面由于氮气的加入,薄膜内部形成了无定形态的氮化物并且减小了晶粒尺寸以及增大了体积分数,使电子在晶界的散射增大;另一方面由于氮元素的加入,使得晶格间的空隙和缺陷增多,从而造成晶格缺陷散射增大,所以薄膜的电阻率随着氮元素的加入而增大。未经过退火处理的掺 Al 薄膜并没有表现出统一的铁磁共振,但是经过退火处理后,薄膜表现出优良的微波特性。造成这种变

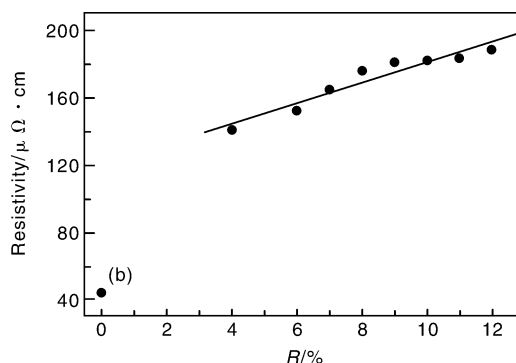


图 2 不同氩氮比下沉积的 FeCoAlN 薄膜的电阻率

Fig. 2 resistivity of the as-deposited FeCoAlN films in variation with $\text{N}_2/(\text{Ar} + \text{N}_2)$ gas flux percentage (R)

化的主要原因是由于退火消除了薄膜的内应力, 因此退火也成为了一种改善薄膜磁性能以及高频特性的有效手段。经过 250 °C 退火的样品, 其共振频率为 2.12 GHz, 磁导率虚部最大值也达到了 1 350。

3 纳米软磁颗粒膜

由于纳米软磁颗粒膜具有优良的软磁性能, 并且可以工作在极高的频率范围, 所以近几年得到了迅速发展^[24-26]。这类薄膜的微观组织一般表现为纳米颗粒组织, 即磁性纳米颗粒均匀弥散分布在非晶态氧化物基体上。纳米磁性颗粒表现为晶态或非晶态, 是薄膜磁性的主要来源, 由于其金属性, 一般是导电的。而绝缘氧化物一般表现为非晶态, 不具有磁性, 这样就可以提升材料的电阻率。通过调整纳米颗粒相和绝缘基体相的相对体积分数, 使得材料同时具有高的磁导率和高电阻率成为可能。

Munakata 等人采用 3 靶共溅射的手段制备了 500 nm 的 $(\text{Co}_{35.6}\text{Fe}_{50}\text{B}_{14.4})-(\text{SiO}_2)$ 颗粒膜^[27]。3 个靶分别为 SiO_2 靶, Fe 靶以及 $\text{Co}_{66.6}\text{Fe}_{7.4}\text{B}_{26}$ 合金靶, 通过改变各靶的功率来调节薄膜的成分。结果表明, 在 SiO_2 的含量为 26% 时, 薄膜的性能为: $\rho = 115.6 \text{ m}\Omega \cdot \text{cm}$, $H_k = 19.9 \text{ kA/m}$, $M_s = 660.5 \text{ kA/m}$, $H_{ch} = 445.6 \text{ A/m}$, $H_{ce} = 3\,740.1 \text{ A/m}$ 。XRD 分析表明, 薄膜由非晶态的 CoFe 合金和非晶态 SiO_2 组成。TEM 分析表明, 非晶态的

CoFeB 颗粒尺寸为 2 ~ 3 nm, 由非晶态 SiO_2 包围, 颗粒间的间距为几个埃, SiO_2 绝缘体极大地提高了薄膜的电阻率。但是这一混晶组织薄膜的磁导率只有 50, 并且保持不变直到 2 GHz, 其共振频率高于 3 GHz。

Yao 等人研究分析了颗粒尺寸大小对 FeCo-SiO₂ 薄膜的矫顽力及各向异性场的影响^[28]。采用射频磁控溅射方法在 Si 衬底上制备了不同成分, 厚度为 300 nm 的 $(\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35})_x(\text{SiO}_2)_{1-x}$ 颗粒膜。实验结果表明, 在 $0.42 < x < 0.53$ 时, 矫顽力随着 x 的增加而减小, 在 $x = 0.53$ 时, 达到最小值 68 A/m, 而后矫顽力又随着 x 的增加而增大。各向异性场则相反, 随着 x 的增加, H_k 变化趋势为先增大后减小, 在 $x = 0.57$ 时达到最大的 4.8 kA/m。TEM 研究表明, 当 $x = 0.86, 0.53$ 以及 0.42 时, FeCo 的晶粒大小 D 分别为 13.0 nm, 3.2 nm 以及 2.7 nm。这说明 SiO_2 的掺入会减小 FeCo 的晶粒大小, 实验发现, 在 $0.52 < x < 0.86$ 时, 矫顽力与晶粒大小 D 成三次方关系。即当 SiO_2 的含量增多时, 薄膜的矫顽力下降, 各向异性场增加, 软磁性能更好。而当 $0.42 < x < 0.53$ 时, 由于晶粒过小, 而且晶粒周围的非磁性物质过多, 使得晶粒间的交换耦合作用在经过 SiO_2 的衰减后变得极其微弱, 所以加入更多的 SiO_2 时, 薄膜的软磁性能更差。

Lu 等人研究了不同功率下 FeCoHfO 颗粒膜的软磁及高频性能^[29]。结果如图 3 所示, 不同功率下的样品

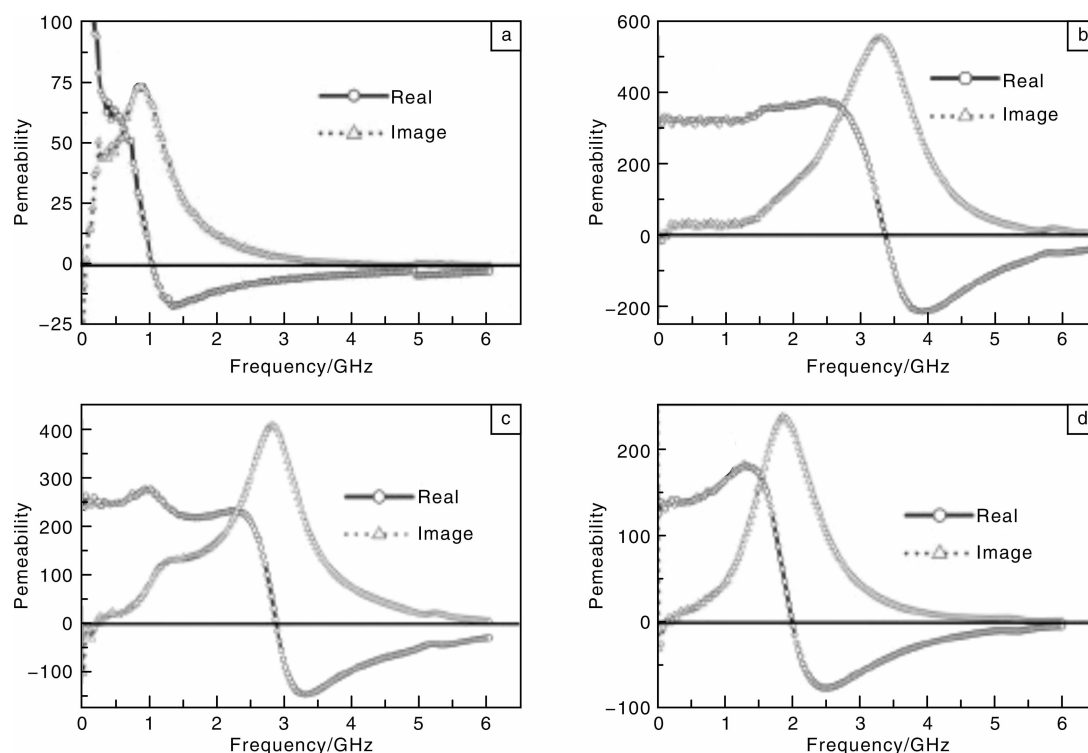


图3 不同功率下溅射薄膜的磁谱: (a)150 W, (b)200 W, (c)250 W, (d)300 W

Fig. 3 Permeability spectrum of the films deposited at different power: (a) 150 W, (b) 200 W, (c) 250 W, and (d) 300 W

的性能具有明显的变化,并且薄膜的性能在 200 W 时达到最优。此时的饱和磁化强度达到 1 600 kA/m,矫顽力为 80 A/m,铁磁共振频率也达到了 3.2 GHz。同时还研究了不同功率下 (NiFe) (NiZnFeO) 的性能变化^[30],发现功率越高的薄膜具有更大的各向异性场以及截止频率。在溅射功率为 300 W 时,各向异性场为 5.2 kA/m,截止频率达到 3.4 GHz。这表明功率控制与工作气压一样,也可以做为对薄膜性能进行调控的一种有效手段,使得薄膜能够满足实际中不同应用的需求。

兰州大学 Zhang 等人利用斜入射方法制备了 FeCoNiNbB-SiO₂ 颗粒膜^[31]。SEM 结果显示,FeCoNiNbB 磁性颗粒散乱分布在无定形态的 SiO₂ 中。薄膜展现出了非常高的电阻率和合适的各向异性场。通过改变磁性颗粒的含量,可以调节各向异性场从 8.4 kA/m 到 46.4 kA/m,此时截止频率也从 1.3 GHz 上升到 7.8 GHz。当 FeCoNiNbB 磁性颗粒的含量为 0.63 时,电阻率达到 12.5 $\mu\Omega \cdot \text{cm}$,截止频率为 2.2 GHz。

由于纳米软磁颗粒薄膜具有纳米颗粒组织特征,因此在保持较高饱和磁化强度的前提下,可以通过选择适当的成分和工艺参数(如溅射沉积过程中外加磁场,沉积态薄膜后续真空磁场热处理,倾斜角溅射等),获得较大的各向异性场。这类薄膜具有较高的磁导率并且可以保持到 GHz 频段。此外,其电阻率高,一般可以达到 $10^{-4} \sim 10^{-3} \Omega \cdot \text{cm}$,这也使其成为最有望应用于更高频段的一类材料。

4 多层膜

这种薄膜是由软磁层和非磁绝缘层构成的一种多层薄膜系统。这类多层膜的软磁性至少有以下几点好处:在多层膜总厚度相同的条件下,可使软磁层的厚度减小,从而增加薄膜的电阻率,有利于降低涡流损耗。在展宽频率响应的同时,保证了高磁通承载能力,增加了厚度方向的退磁场,细化了晶态膜的晶粒尺度。此外,磁性层通过非磁性层仍可存在一定的磁耦合,这可以防止在薄膜的边缘构成闭合磁畴,也可以改善磁畴的稳定性,降低各向异性的离散。降低磁性层的厚度(30 ~ 500 nm)要注意到其最低厚度,以及兼顾饱和磁化强度及初始磁导率等参数。绝缘层的厚度要适宜,虽然绝缘层越薄多层膜的软磁性越好,但是如果绝缘层太薄,由于其中的针孔使其涡流损耗并不减小;如果绝缘层太厚则磁膜间的静磁耦合会下降,厚度在 5 ~ 10 nm 较为适合。

Xu 等人采用磁控溅射制备了 FeCoSiN/AlO/FeCoSiN

多层膜^[32],其中 FeCoSiN 由 Co₅₀Fe₅₀靶材加上 Si 贴片在氮气气氛中沉积而成,厚度固定为 75 nm。AlO 由 Al₂O₃ 作为靶材溅射沉积而成,改变 AlO 的厚度从 1 nm 到 20 nm。在 AlO 层的厚度为 3 nm 时,矫顽力为 568 A/m,起始磁导率为 450 左右,共振频率达到最大为 1.31 GHz。

Chai 等人采用 Cu 作为磁性层中间的夹层,研究了 [FeCoZr/Cu]_n 多层膜的软磁性能以及高频特性^[33]。每一层 FeCoZr 的厚度固定为 10 nm,改变 Cu 的厚度分别从 1.8 nm 到 19.6 nm。研究结果发现,在 Cu 层厚度为 1.8 nm 时,薄膜的各向异性场为 5.13 kA/m,铁磁共振频率为 2.88 GHz,而当厚度增大到 8.7 nm 时,各向异性场降为 1.43 kA/m,共振频率也降为 1.70 GHz。Cu 层厚度为 12.8 以及 16.9 nm 时,共振频率分别为 1.67 GHz 和 1.56 GHz。虽然共振频率随着 Cu 层厚度的增高一直从 2.88 GHz 下降到 1.56 GHz,但是与此同时薄膜的起始磁导率则从 268 上升到 962。

另一种多层膜结构是利用铁磁和反铁磁之间的交换耦合效应,以提高薄膜的各向异性场,从而提高材料的截止频率。这种结构可以通过改变每层的厚度来控制薄膜的整体性能。在单层的高频软磁薄膜中,各向异性场一般不会很大而且比较难于控制,所以采用交换偏置效应来调节薄膜的各向异性场就成为一种可行的办法。Phuoc 等人采用 IrMn 作为反铁磁层,研究了交换偏置效应对高频特性的影响^[34]。在双层膜体系中,对薄膜的高频特性,其主要的决定因素就是静态磁各向异性与动态磁各向异性的差异及旋转各向异性。当反铁磁层厚度很小时,虽然交换偏置场很小,但是其具有的很大的旋转各向异性场也使其具有很大的动态磁各向异性,所以薄膜具有很高的截止频率。当反铁磁层厚度为 2 nm,铁磁层厚度为 0.8 nm 时,观察到高达 10 GHz 的截止频率,使其在高频器件领域具有很大的应用前景。

Xi 等人研究了 FeCoSi/MnIr/FeCoSi 三层膜的高频软磁性能^[35]。VSM 结果显示,在易轴方向发现了明显的交换偏置场,并且顶层的 FeCoSi 更大。磁导率随频率的变化如图 4 所示,对于单层的 FeCoSi 薄膜,当频率小于 2 GHz 时,磁导率实部大于 300,截止频率为 3.4 GHz。然而对于铁磁/反铁磁多层膜,截止频率随反铁磁层厚度的减小而增大并在厚度为 6 nm 时达到 8.2 GHz,远大于 FeCoSi 单层膜。其主要原因就是交换耦合效应增大了薄膜的各向异性场,从而提高了铁磁共振率。由于多层膜结构具有很高的电阻率和高截止频率,因此已经得到越来越多人的关注,并且成为了现在

人们研究高频软磁薄膜材料体系的一个热点。

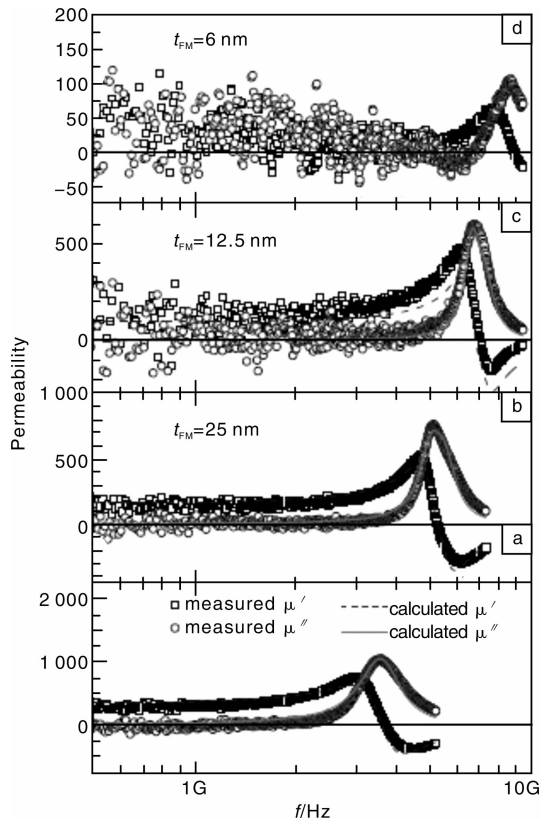


图4 FeCoSi 单层膜(a)以及 FeCoSi/IrMn/FeCoSi(b~d) 多层膜的磁谱

Fig. 4 The typical permeability spectra of FeCoSi (a) and FeCoSi(t_{FM})/IrMn/FeCoSi(t_{FM}) films (b~d)

5 图形化高频软磁薄膜

随着近几年微细加工工艺的发展,制备具有纳米尺寸的图形化薄膜变得越来越容易实现,人们也渐渐将目光转向图形化的高频软磁薄膜,研究其新的效应,进一步提升薄膜的性能^[36]。Wang 等人将厚度为 100 nm 的坡莫合金薄膜刻蚀成无数个宽为 100 nm 长为 10 μm 的长条^[37]。微磁学仿真结果显示每一个坡莫合金条都是单磁畴结构,当长条之间的间距为 240 nm 时,测量到了高达 11.5 GHz 的截止频率,当间距为 550 nm 时,截止频率达到了 8 GHz。

对于图形化薄膜,目前研究得最多的就是将薄膜刻蚀成纳米尺寸范围的长条,即形成纳米线的阵列结构。Medina 等人研究了 CoFe 和 NiFe 纳米线的双稳态铁磁共振^[38]。对于每一个纳米线来说,都为单磁畴结构,当整体的薄膜没有达到饱和态时,将有部分纳米线的磁化态为正向平行于磁化方向,部分的纳米线反向平行于磁化方向。当电磁波通过时,正向和反向的纳米线将具有

不同的铁磁共振频率,即磁谱显示有 2 个共振峰,而当外加磁场变为零时,此时薄膜正向和反向的磁化态相同的时候,则 2 个共振峰将叠加显示只有 1 个共振峰。

Kou 研究了 NiFe 纳米线的铁磁共振频率与剩磁比的关系^[39]。纳米线阵列的线宽,线间距和长度分别为 35 nm、60 nm 以及 17 μm 。通过改变外加磁场来调节薄膜的剩磁比,测量时没有外加磁场。结果显示,随着剩磁化强度的减小,铁磁共振频率显示出增大的趋势,在剩磁比为 0 的时候,达到最大的共振频率为 11.7 GHz。这表明对于纳米线结构,其共振频率与其原来的磁化状态紧密相关。

Zhang 等人利用三维的微磁学仿真,研究了不同厚度的纳米环以及纳米圆片的频率特性^[40]。研究发现,在沿外加磁场的方面,纳米圆片出现了包括了点模式在内的几个不同的共振峰,但是对于纳米环则只有一个集中的体积模式的共振峰。而将纳米环的周长从原来的 30 nm 变为 70 nm 时,在纳米环上则发现了 2 个共振峰,一个具有更低频率的峰与表面模式相关,另一个更高频率的峰则为边缘模式。这些研究也为以后实验提供了方向,并且有利于分析空间结构对磁谱的影响。

由于图形化薄膜具有超高的共振频率和频率可调的优势,因此它在高频器件特别是电磁噪声抑制器方面具有很好的应用前景,如 Nam 等人利用磁性纳米线复合薄膜设计了噪声抑制器^[41],通过改变纳米线的长宽比来调节中心频率,复合不同长宽比的纳米线为纳米阵列,就实现了超宽的频率工作范围,从 0.5 GHz 一直可达 20 GHz。

6 结 语

电子信息技术的发展对高频软磁薄膜材料的综合电磁性能提出了越来越高的要求。总体来看,纳米晶合金薄膜如 FeMB 以及 FeMN 系列薄膜具有高的饱和磁化强度和高的磁导率,可以应用于要求饱和磁化强度较高的器件,如磁头垂直记录媒质中的软磁底层中。纳米软磁颗粒薄膜以及高阻软磁多层膜则具有高的电阻率,有利于减小涡流损耗,并且可以获得较高的各向异性场,使其在更高频的器件中有着广泛的应用,如集成微电感以及电磁噪声抑制器中。由于最新的多层薄膜以及图形化的软磁薄膜具有超高的截止频率及电阻率,所以在器件的应用选择方面就更加的广泛了。虽然在高频软磁薄膜方面的研究已经取得了很大的进展,但是还存在很多问题,比如如何进一步提高铁磁共振频率,使器件能工作在更高的频率范围;如何大幅提高电阻率,降低损耗;如何在较厚的软磁薄膜中诱导并保持高的各向异性场。

此外,亟需对纳米软磁薄膜的稳定性、老化等方面展开研究。在这些方面,理论工作尤其值得重视,例如 Xue 等人最近提出了双各向异性模型^[42],认为在薄膜的难轴和易轴平面分别各有一个各向异性场,而铁磁共振频率实际上是由这 2 个各向异性场同时决定,从而有望大幅突破 Snoek 理论极限。总之,由于高频软磁薄膜具有巨大的应用前景,因此得到了人们越来越多的关注,相信随着研究的不断深入,高频软磁薄膜从理论到实验以及实际应用都会不断取得愈来愈大的进展。

参考文献 References

- [1] Smit J, Wijn H P J. *Ferrites* [M]. Eindhoven: The Netherlands, 1959: 112–289.
- [2] Matsushita N, Ping C C, Mizutani T, *et al.* High-Rate Low-Temperature Deposition of Ni-Zn Ferrite Films Highly Permeable in Gigahertz Range [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2002, 38(5): 3 156–3 158.
- [3] Zhang Luchang (张路长), Xuan Tianpeng (宣天鹏), Ju Zhengting (琚正挺). 钴镍基磁性薄膜的研究现状及进展[J]. *Metallic Functional Materials* (金属功能材料), 2006, 13(4): 25–28.
- [4] Zhu Fengxia (朱凤霞), Yi Jianhong (易健宏), Li Liya (李丽娅), *et al.* 铁基纳米晶软磁合金的研究现状[J]. *Journal of Magnetic Materials and Devices* (磁性材料与器件), 2008, 39(2): 1–6.
- [5] Feng Zekun (冯则坤), He Huahui (何华辉). 纳米磁性颗粒膜研究进展[J]. *Journal of Magnetic Materials and Devices* (磁性材料与器件), 2005, 36(5): 17–21.
- [6] Mchenry M E, Willard M A, Laughlin D E. Amorphous and Nanocrystalline Materials for Applications as Soft Magnets [J]. *Progress in Materials Science*, 1999, 44: 291–433.
- [7] Wang Xuefeng (汪学锋), Zhong Zhiyong (钟智勇), Chen Xizhou (陈栖洲), *et al.* 磁性薄膜微波噪声抑制器研究进展[J]. *Materials Review* (材料导报), 2010, 24(6): 347–350.
- [8] Yoshizawa Y, Oguma S, Ayamaeuchi K. New Fe-Based Soft Magnetic Alloys Composed of Ultrafine Grain Structure [J]. *Journal of Applied Physics*, 1988, 64: 6 044–6 046.
- [9] Suzuki K, Makino A, *et al.* High Saturation Magnetization and Soft Magnetic Properties of bcc Fe-Zr-B Alloys with Ultrafine Grain Structure [J]. *Materials Transactions, JIM*, 1990, 31(8): 743–746.
- [10] Willard M A, Laughlin D E, Mchenry M E, *et al.* Magnetic Properties of Hitperm (Fe, Co)₈₈Zr₇Cu₄B₁ Magnets [J]. *Journal of Applied Physics*, 1998, 84(12): 6 773–6 777.
- [11] Suzuki K, Makino A. The Role of Boron in Nanocrystalline Fe-Zr-B Soft Magnetic Alloys [J]. *Materials Science and Engineering*, 1994, 179–180(1): 501–505.
- [12] Herzer G. Grain Size Dependence of Coercivity and Permeability in Nanocrystalline Ferromagnets [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 1990, 26(5): 1 397–1 402.
- [13] Lou J, Insignares R E, Cai Z, *et al.* Soft Magnetism, Magnetostriction, and Microwave Properties of FeGaB Thin Films [J]. *Applied Physics Letters*, 2007, 91: 182 504–1–3.
- [14] Yu E, Shim J S, Kim I, *et al.* Development of FeCo-Based Thin Films for Gigahertz Applications [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2005, 41(10): 3 259–3 261.
- [15] Kong L H, Chen R R, Song T T, *et al.* Magnetic Characterization of Dual Phase FeZrB Soft Magnetic Alloy [J]. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2011, 323: 3 285–3 289.
- [16] Yang Y, Liu B L, Tang D M, *et al.* Influence of the Magnetic Field Annealing on the Extrinsic Damping of FeCoB Soft Magnetic Films [J]. *Journal of Applied Physics*, 2010, 108: 073 902–1–4.
- [17] Kim C S, Bae S, Kim H J, Fabrication of High Frequency DC-DC Converter Using Ti/FeTaN Film Inductor [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2001, 37(4): 2 894–2 896.
- [18] Saito T, Tsutsui K, Yahagi S. Quasi-Microwave-Range Inductors Covered with Co-Based Magnetic Thin Films [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 1999, 35(5): 3 187–3 189.
- [19] Matsuki H, Fujii N, Shirakawa K, *et al.* Magnetic-Multi-Turn Planar Coil Inductor [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 1991, 27(6): 5 438–5 440.
- [20] Jin S, Zhu W, Dover R B, *et al.* High Frequency Properties of Fe-Co-Ta-N Soft Magnetic Films [J]. *Applied Physics Letters*, 1997, 70(23): 3 161–3 163.
- [21] Hung L T, Phuoc N N, Ong C K. Angular Dependence of Dynamic Magnetic Properties and Magnetization Orientation Distribution of Thin Films [J]. *Journal of Applied Physics*, 2009, 106: 063 907–1–5.
- [22] Liu Y, Liu Z W, Tan C Y, *et al.* High Frequency Characteristics of FeCoN Thin Films Fabricated by Sputtering at Various (Ar + N₂) Gas Flow Rates [J]. *Journal of Applied Physics*, 2006, 100: 093 912–1–5.
- [23] Zhou J, Zhang X D, Wang S, *et al.* Magnetic Properties, Microwave Characteristics, and Thermal Stability of the FeCoAlN Films [J]. *Journal of Materials Engineering and Performance*, 2010, 19(5): 737–742.
- [24] Ohnuma S, Fujimori H, Mitani S, *et al.* High-Frequency Magnetic Properties in Metal-Nonmetal Granular Films [J]. *Journal of Applied Physics*, 1996, 79(8): 5 130–5 135.
- [25] Ohnuma S, Lee H J, Kobayashi N, *et al.* Co-Zr-O Nano-Granular Thin Films with Improved High Frequency Soft Magnetic Properties [J]. *IEEE Transactions on Magnetics*, 2001, 37(4): 2 251–2 254.
- [26] Liu Z, D Shindo, Ohnuma S, *et al.* Nano-Granular Co-Zr-O Magnetic Films Studied by HRTEM and Electron Holography [J]. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2003,

- 262: 308 – 315.
- [27] Munakata M, Motoyama M, Yagi M, *et al.* Very High Electrical Resistivity and Heteroamorphous Structure of Soft Magnetic ($\text{Co}_{35.6}\text{Fe}_{50}\text{B}_{14.4}$)-(SiO₂) Thin Films[J]. *IEEE Transactions on Magnetism*, 2002, 38(5): 3 147 – 3 149.
- [28] Yao D S, Ge S H. Grain Size Dependence of Coercivity in Magnetic Metal-Insulator Nanogranular Films with Uniaxial Magnetic Anisotropy[J]. *Journal of Applied Physics*, 2010, 107: 073 902 – 1 – 4.
- [29] Lu G D, Zhang H W. Influence of Sputtering Power on the High Frequency Properties of Nanogranular FeCoHfO Thin Films[J]. *Journal of Applied Physics*, 2011, 109(7): 07A327 – 1 – 3.
- [30] Lu G D, Zhang H W. Soft Magnetic Properties of ($\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$)_{1-x}($\text{Ni}_{0.5}\text{Zn}_{0.5}\text{Fe}_2\text{O}_4$)_x Films for High Frequency Applications[J]. *Journal of Applied Physics*, 2011, 109: 07A308 – 1 – 5.
- [31] Zhang B M, Wang G W. High-Frequency FeCoNiNbB-SiO₂ Nano-Granular Films with High Resistivity and Adjustable Resonance Frequency from 1.3 to 7.8 GHz[J]. *Applied Physics A*, 2009, 97: 657 – 661.
- [32] Xu F, Liao Z Q, Huang Q, *et al.* Influence of Interlayer Thickness on High-Frequency Magnetic Properties of FeCoSiN/AlO/FeCoSiN Trilayers[J]. *IEEE Transactions on Magnetism*, 2011, 47(10): 3 100 – 3 103.
- [33] Chai G Z, Wang Z L. Adjustable Microwave Properties in Fe-CoZr/Cu Multilayers [J]. *IEEE Transactions on Magnetism*, 2011, 47(10): 3 115 – 3 117.
- [34] Phuoc N N, Hung L T, Ong C K. Ultra-High Ferromagnetic Resonance Frequency in Exchange-Biased System[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2010, 506: 504 – 507.
- [35] Xi L, Zhang Z, Lu J M, *et al.* The High-Frequency Soft Magnetic Properties of FeCoSi/MnIr/FeCoSi Trilayers[J]. *Physica B*, 2010, 405: 682 – 685.
- [36] Vukadinovic N. High-Frequency Response of Nanostructured Magnetic Materials[J]. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2009, 321, 2 074 – 2 081.
- [37] Wang P S, Zhang H Q, Divan R, *et al.* Tailoring High-Frequency Properties of Permalloy Films by Submicrometer Patterning [J]. *IEEE Transactions on Magnetism*, 2009, 45(1): 71 – 74.
- [38] Medina J T, Piroux L, Encinas A. Tunable Zero Field Ferromagnetic Resonance in Arrays of Bistable Magnetic Nanowires[J]. *Applied Physics Letters*, 2010, 96: 042 504 – 1 – 3.
- [39] Kou X M, Fan X, Zhu H, *et al.* Tunable Ferromagnetic Resonance in NiFe Nanowires with Strong Magnetostatic Interaction [J]. *Applied Physics Letters*, 2009, 94: 112 509 – 1 – 3.
- [40] Zhang B, Wang W W. Calculations of Three-Dimensional Magnetic Excitations in Permalloy Nanostructures with Vortex State [J]. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2010, 322: 2 480 – 2 484.
- [41] Nam B, Choa Y H, Oh S T, *et al.* Broadband RF Noise Suppression by Magnetic Nanowire-Filled Composite Films[J]. *IEEE Transactions on Magnetism*, 2009, 45(6): 2 777 – 2 780.
- [42] Xue D S, Li F S, Fan X L, *et al.* Bianisotropy Picture of Higher Permeability at Higher Frequencies [J]. *Chinese Physics Letters*, 2008, 25(11): 4 120 – 4 123.