

文章编号: 1672-6413(2008)01-0122-03

# 热处理对NdFeB 薄膜微结构和磁性能的影响\*

张丽娜, 张敏刚, 杨扬, 刘小鹏, 衣美卿

(太原科技大学 材料科学与工程学院, 山西 太原 030024)

摘要: 采用磁控和离子束联合溅射法制备了NdFeB/ $\alpha$ -Fe/NdFeB 系列纳米复合多层膜, 研究了热处理温度对薄膜结构、表面形貌和磁性能的影响。

关键词: 磁控溅射; 离子束溅射; 多层膜; 热处理; 磁性能

中图分类号: TG15 文献标识码: A

## 0 引言

近年来, 由软、硬磁性相晶粒在纳米尺度内通过交换耦合作用得到的纳米晶复合永磁材料<sup>[1]</sup>成为新材料的研究热点, 因为根据微磁学理论计算取向排列的纳米晶复合NdFeB磁体的理论磁能积超过800kJ/m<sup>3</sup><sup>[2,3]</sup>。随着微型机电系统和磁记录材料的不断发展, 电子器件要求相应的磁性元件微型化、集成化。因而, 微米量级厚的永磁体必须以薄膜形态直接沉积在要求提供磁场的元器件上, 才能适应各种微电子和微机械系统高性能和高可靠性的要求。制备薄膜的方法主要有磁控溅射法<sup>[4-6]</sup>、电子脉冲加热非晶合金法<sup>[7]</sup>、脉冲激光沉积法<sup>[8]</sup>、分子束外延法等。虽然已经对溅射法制备薄膜做了很多研究, 但是目前获得的磁性能相对于烧结体来说是很低的。利用烧结法制备的NdFeB纳米晶磁体的磁能积已经达到理论值的88%, 而薄膜样品只能达到80kJ/m<sup>3</sup>~203kJ/m<sup>3</sup>。理论值与实际值之间的差距主要归因于微结构的不同, 因为实际得到的晶粒尺寸、形状与理论模型相差较大。一些技术参量, 包括溅射方法、溅射气压、热处理温度(或沉积温度)、缓冲层材料及靶材成分等能够影响薄膜的微结构, 进而影响到其硬磁性能<sup>[9-11]</sup>。结合磁控溅射法沉积速率高的优点和离子束溅射法制备超薄膜的优点, 本文采用磁控与离子束联合溅射法制备了纳米复合多层膜, 并研究了热处理温度对薄膜结构、表面形貌和磁性能的影响。

## 1 实验

\* 山西省自然科学基金资助项目 (20021067)

收稿日期: 2007-04-24; 修回日期: 2007-09-08

作者简介: 张丽娜(1981-), 女, 河北石家庄人, 硕士研究生。

基片为Si(100nm), 用丙酮和无水乙醇分别采用超声波清洗5min, 吹干Si表面残留液体; 靶材为Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B粉末冶金靶和纯Fe靶, 本底真空度为4.5×10<sup>-5</sup>Pa, 磁控室和离子束室的溅射气压分别为1.5Pa和2.5×10<sup>-2</sup>Pa, Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B靶溅射功率为100W, Fe靶溅射功率为20W, Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B靶与基片距离为70mm, 离子束室Fe靶灯丝电流为7.5A, Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B层和 $\alpha$ -Fe层沉积速率分别为0.2062nm/s和0.0452nm/s。溅射后的薄膜在真空晶化炉中氩气氛保护下进行退火处理, 退火温度分别为550、600、650、700, 保温时间30min后快速水冷至室温。用Rigaku.D/MAX2500型X射线衍射仪(XRD)分析薄膜的相结构; 用KYKY2800型扫描电子显微镜(SEM)和CSPM4000原子力显微镜(AFM)观测薄膜的表面形貌; 用LDJ9600振动样品磁强计(VSM)测试了薄膜的磁性能。

## 2 结果与讨论

图1为NdFeB(200nm)/ $\alpha$ -Fe(16nm)/NdFeB(200nm)薄膜经不同退火温度处理的XRD图, 从图1中可以看到, 溅射态的NdFeB薄膜是完全非晶态的, 经550、600、650、700分别处理30min后发生晶化, 出现衍射峰。在较低温度退火时, 出现了少量的结晶相, 随着退火温度的提高, 结晶相逐渐增加, 在650薄膜已经基本晶化, 晶化相占主导地位, 其主要成分为Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B、 $\alpha$ -Fe、Nd的氧化物和衬底Si。这时再提高退火温度至700, 薄膜的相结构基本没有

发生什么变化。由于热处理时切割样品选区不同, 故膜的厚度有一定差别, 膜薄的样品中就出现了Si峰。

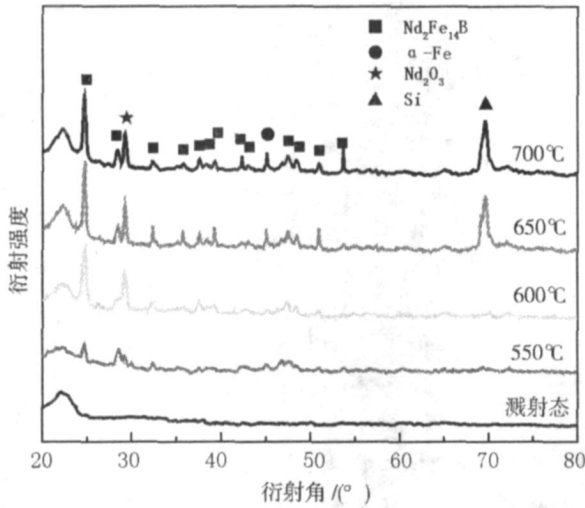


图1 不同温度退火处理后的XRD图

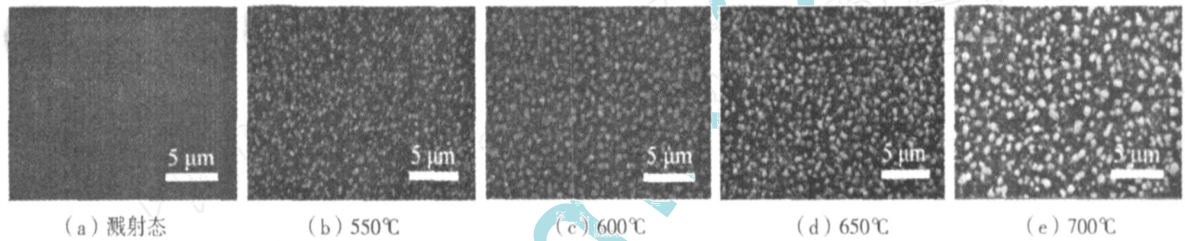


图2 不同温度退火处理后的SEM图

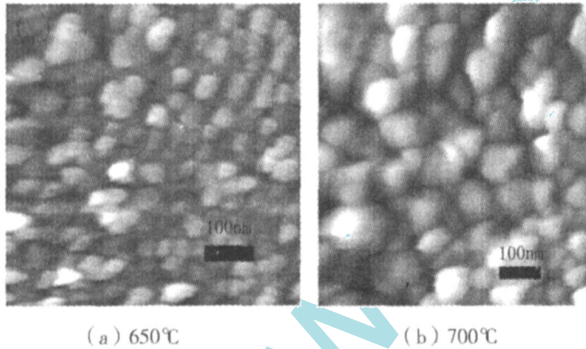


图3 样品在650、700退火处理后的AFM图

图4为NdFeB(200nm)/α-Fe(16nm)/NdFeB(200nm)薄膜经不同退火温度处理后的磁滞回线, 从图4中可以看出复合薄膜经550、600、650退火处理后, 其矫顽力 $H_{ci}$ 、剩余磁化强度 $M_r$ 和饱和磁化强度 $M_s$ 随着退火温度的提高而增加, 到650各项磁性能指标均达到最大值, 再提高退火温度至700, 由于晶粒长大的缘故, 各项磁性能反而有所下降。由此可以得出, 退火能够有效地改善多层膜的各项磁性能, 最佳退火温度为650, 在此温度下复合薄膜的磁性能为: 矫顽力 $H_{ci} = 41.72 \text{ kA/m}$ , 剩磁比 $M_r/M_s = 0.4$ , 最大磁能积为 $30.35 \text{ kJ/m}^3$ 。

图2为不同温度退火处理后的SEM图, 进一步证实了溅射态是非晶的, 经热处理之后转化为晶态。在650保温30min后薄膜已完全晶化, 白色颗粒的软磁相和灰色颗粒的硬磁相析出且晶粒尺寸均匀, 软、硬磁相的晶粒尺寸分别为:  $60 \text{ nm}$   $d_{\alpha\text{-Fe}}$   $80 \text{ nm}$ ,  $100 \text{ nm}$   $d_{\text{NdFeB}}$   $150 \text{ nm}$ 。这与XRD结果一致。

图3为NdFeB(200nm)/α-Fe(16nm)/NdFeB(200nm)薄膜经650和700退火处理后的表面形貌图, 从图3中可以看出薄膜表面由不同尺度的颗粒组成。在一定的尺度范围内, 每个样品颗粒分布较为均匀。从整体上看, 不同样品颗粒的平均尺度具有一定差别, 650退火处理后的样品平均颗粒比较小, 当退火温度升高到700时, 薄膜的晶粒长大, 这与SEM的结果大致相同, 即在晶粒完全晶化的情况下, 进一步提高退火温度, 晶粒长大并粗化。

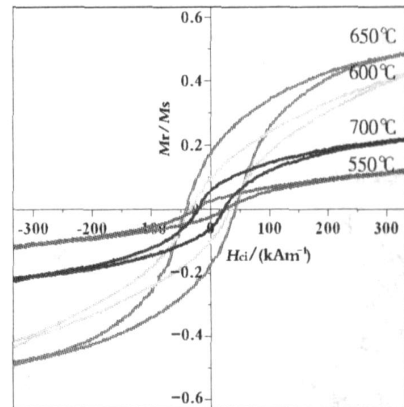


图4 不同温度退火处理后的磁滞回线

NdFeB/α-Fe/NdFeB纳米复合薄膜极易氧化, 样品是在放置了很长一段时间后才进行磁性能测量的, 因此测试的磁性能比样品制备后直接测试的值低; 此外, 发现薄膜在退火过程中有Nd的氧化物生成, 会大大降低矫顽力, 进而影响最大磁能积; 本实验中制备的两相纳米晶复合永磁薄膜晶粒尺寸较大(可能是因为保温时间过长), 尺寸分布范围较宽, 使得晶粒之间的交换耦合作用降低, 磁性能下降。

### 3 结论

采用直流磁控和离子束联合溅射法制备了

NdFeB/ $\alpha$ -Fe/NdFeB 系列纳米复合永磁薄膜, 并对其进行了退火处理。热处理温度对薄膜磁性能有显著影响, 随热处理温度的升高, 薄膜的磁性能逐渐升高, 在 650 时薄膜获得最佳磁性能; 但当温度上升到 700 时, 由于薄膜晶粒粗大导致磁性能迅速下降。关于直流磁控溅射和离子束联合溅射制备薄膜的机理有待于进一步研究。

#### 参考文献

- [1] Kneller E F, Hawing R. Remanence enhancement due to exchange coupling in multilayers of hard and soft magnetic phase [J]. IEEE Trans on Magn, 1991, 27: 3588-3600
- [2] Skomski R, Coey J M D. Giant energy product in nanostructured two-phase magnets [J]. Phys Rev, 1993, B48: 15812-15816
- [3] Schrefl T, Fidler J, Krommuller H. Remanence and coercivity in isotropic nanocrystalline permanent magnets [J]. Phys Rev, 1994, B49: 6100-6110
- [4] Valetas M, Verite M, Bessadou A, et al Rf-sputtering deposition and magnetic characterisation of Nd-Fe-B thin films for microwave applications [J]. Comp Mater Sci, 2005, 33: 163-167.
- [5] Kato H, Ishizone M, Koyama K, et al Realization of anisotropic nanocomposite magnet in NdFeB/ $\alpha$ -Fe thin films [J]. J Magn Magn Mater, 2005, 290-291: 1221-1225
- [6] Kato H, Kubota H, Koyama K, et al Fabrication of SmFe12/ $\alpha$ -Fe thin films as anisotropic nanocomposite magnet [J]. J Alloy Compd, 2006, 408-412: 1368-1372
- [7] Li X H, Gao Z S, Li W, et al Study of microstructure of  $\alpha$ -Fe/Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B nanocomposites prepared by electropulsing heating amorphous NdFeCoB [J]. Mater Lett, 2005, 59: 2782-2785
- [8] Zheng P, Haik Y, Chen C, et al Properties of NdFeB film grown on silicon substrate by PLD under external magnetic field [J]. Surf Coat Tech, 2005, 194: 372-377.
- [9] Ma Y G, Li R S, Yang Z, et al Effects of additive elements (Cu, Zr, Al) on morphological and magnetic properties of NdFeB thin films with perpendicular magnetic anisotropy [J]. Mat Sci Eng, 2005, B117: 287-291.
- [10] Daniil M, Okumura H, Hadjipanayis G C, et al Effects of carbon substitution on the magnetic properties of Nd-Fe-(B, C) nanocomposite magnets [J]. J Magn Magn Mater, 2003, 267: 316-324
- [11] Serrona L, Sugimura A, Fujisaki R, et al Magnetic and structural properties of NdFeB thin films prepared by step annealing [J]. Mat Sci Eng, 2003, B97: 59-63

## Effect of Post Annealing on the Microstructure and Magnetic Properties of NdFeB/ $\alpha$ -Fe /NdFeB Thin Films

ZHANG Li-na, ZHANG Ming-gang, YANG Yang, LIU Xiao-peng, YI Mei-qing

(College of Material Science and Engineering, Taiyuan University of Science and Technology, Taiyuan 030024, China)

**Abstract** A series of nanocomposite thin films, composed of Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B and  $\alpha$ -Fe, has been prepared by DC magnetron sputtering combined with ion beam sputtering onto Si(100) substrates. The effects of post annealing on the microstructure and magnetic properties have been investigated.

**Key words** DC magnetron sputtering; ion beam sputtering; multilayer film; thermal treatment; magnetic properties

(上接第 119 页)

#### 参考文献

- [1] 胡文胜. 汽车安全气囊发展综述 [J]. 上海汽车, 1994 (1):

16-19

- [2] 马江飞, 刘树华, 谢锋. 时钟弹簧性能检测仪的设计 [J]. 科技情报开发与经济, 2006, 16(4): 169-170

## Design of a New Timepiece Spring

GUO Zhi-ming, CUI Wei-chao, ZOU De-kun

(College of Mechanical and Electronic Engineering, North University of China, Taiyuan 030051, China)

**Abstract** The thesis showed the action of the timepiece spring in safety gasbag system. Based on the structure of the timepiece spring used nowadays, a new type of timepiece spring was advanced. It transferred the signal through using electric probe-copper circle contact. Then the structure was predigested, and the performance was improved, and the dependability of the new style structure was analysed.

**Key words** timepiece spring; safety gasbag; friction work