

文章编号:1004-2474(2015)06-1053-04

退火工艺对 YIG 多晶薄膜铁磁共振线宽的影响

金曙晨,杨青慧,梅兵,饶毅恒,田晓洁,张怀武

(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:主要研究了退火工艺对钇铁石榴石(YIG)薄膜铁磁共振线宽的影响。实验中微米级的 YIG 薄膜通过磁控溅射法在 $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG)(111)衬底上制备,并通过 750~950 °C 常压常规退火及 750~850 °C 真空快速退火两种方式对薄膜进行退火晶化处理。最终系统地研究了薄膜的微观晶体结构、磁性能和铁磁共振线宽性能。研究发现,经过 800 °C,10 min 的真空快速热处理的 YIG 薄膜磁性能优异,其铁磁共振线宽为 2 626.1 A/m@9.3 GHz,阻尼系数 $\alpha=2.077\times 10^{-3}$,薄膜表面粗糙度为 1.9 nm。

关键词:钇铁石榴石(YIG);快速退火;射频磁控溅射;铁磁共振线宽(FMR);阻尼系数

中图分类号:TN384 **文献标识码:**A

The Effect of Annealing Process on FMR Line-width of YIG Films Prepared by RF Magnetron Sputtering

JIN Shuchen, YANG Qinghui, MEI Bing, RAO Yiheng, TIAN Xiaojie, ZHANG Huaiwu

(University of Electronic Science and Technology of China, State Key Lab. of Electronic Thin Film and Integrated Devices, Chengdu 610054, China)

Abstract: The effect of annealing process on FMR line-width of YIG films are studied in this paper. The micro-meter-thick yttrium iron garnet (YIG) films have been prepared on $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG)(111) substrate by radio frequency (RF) magnetron sputtering method, and then crystallized by post annealing (750-950 °C) with common thermal annealing and rapid thermal annealing (750-850 °C) two different methods. The microstructure, the magnetic properties and the ferromagnetic resonance (FMR) properties have been investigated in detail. High quality YIG film have been obtained with RTA method in vacuum and the annealing temperature is 800 °C. The most narrow FMR line-widths (ΔH) is 2 626.1 A/m at 9.3 GHz, the damping constant α is 2.077×10^{-3} and the surface roughness of the film is 1.9 nm.

Key words: yttrium iron garnet films; rapid thermal annealing; RF magnetron sputtering; ferromagnetic resonance line-width; damping constant

0 引言

近年来,研究者发现钇铁石榴石(YIG)是目前最理想的自旋电流的载体^[1]。因此,YIG 薄膜在自旋器件的研究中应用广泛^[2-7]。YIG 薄膜是一种低损耗、本征阻尼系数(α)很低的材料($\alpha=3\times 10^{-5}$),其 α 值比铁磁材料小2个数量级;同时,YIG 材料的绝缘性保证了自旋电流在其内部能长距离传输。

目前,制备 YIG 薄膜的工艺有液相外延(LPE)、激光分子束外延(PLD)、射频磁控溅射(RF)及化学气相沉积(CVD)等。研究发现,液相外延制备的 YIG 薄膜虽然具有良好的晶体结构和其他的性能,但很难通过 LPE 工艺准确地控制生长薄

膜的厚度。与液相外延相比,RF 和 PLD 更方便、经济及更适用于在低温下制备 YIG 薄膜。吴明忠等通过 RF 和 PLD 法成功制备了高质量的 YIG 薄膜,且厚度仅几个纳米^[8]。在自旋器件应用中,YIG 薄膜的厚度是一个必须考虑的重要因素,针对不同功率大小的器件,需要的薄膜厚度从几个纳米到几十个微米不等。同时,很多研究者也开始关注微米级别 YIG 薄膜在自旋器件中的应用。文中,我们利用 RF 制备了微米级的 YIG 薄膜,通过常压下的常规退火处理(CTA)和真空下快速退火处理(RTA)工艺,研究制备工艺对 YIG 薄膜铁磁共振线宽、磁性能和微结构的影响。

收稿日期:2015-03-09

基金项目:国家自然科学基金资助项目(61021061,5127203,51002021,61131005);国际合作基金资助项目(2012DFR 10730,2013HH0003 and 2012CB933104, 111project No. B13042)

作者简介:金曙晨(1989-),男,四川巴中人,硕士生,主要从事 YIG 薄膜及其器件的制备及性能研究。杨青慧(1979-),女,辽宁人,教授,主要从事磁性材料及器件研究。

1 实验

YIG 薄膜的制备利用日本的 ULVAC MB05-9309 射频磁控溅射仪。RF 使用的 $Y_3Fe_5O_{12}$ 靶材是通过标准固态反应法合成烧结的, 烧结温度为 $1\ 350\ ^\circ\text{C}$, 衬底基片是晶轴取向为 (111) 的 $Gd_3Ga_5O_{12}$ (GGG)。表 1 为薄膜的制备工艺参数。

表 1 实验中 YIG 薄膜沉积与退火条件

靶材成分	靶材大小/cm	沉积室基础气压/Pa	
$Y_3Fe_5O_{12}$	5.08	2.0×10^{-4}	
衬底	升降速率/($^\circ\text{C}/\text{s}$)	沉积中衬底温度/ $^\circ\text{C}$	
GGG(111)	2	400	
溅射功率/W	氧气流速/(cm^3/min)	退火方法	
80	5	CTA 和 RTA	
退火温度/ $^\circ\text{C}$	退火气氛	溅射气压/Pa	退火时间/min
750~950	真空, 空气	0.14	10~40

低温 RF 制备的薄膜为非晶态薄膜, 分别利用 CTA 和真空快速退火炉使制备好的薄膜再结晶^[9]。对于常规退火, 升温速率为 $2\ ^\circ\text{C}/\text{min}$, 降温速率为 $5\ ^\circ\text{C}/\text{min}$, 对于真空快速退火, 升温时间约为 10 min, 然后自然降温。利用台阶仪测薄膜的厚度。薄膜的结晶晶体结构和薄膜表面形貌分别通过 Bede D1 X 线衍射 (XRD) 和 SEIKO SPA-300HV 原子力显微镜 (AFM) 进行测试分析。薄膜磁性能通过 VSMVT-800 振动样品磁强计 (VSM) 测试。铁磁共振线宽利用共面波导与外部磁场平行于膜面进行测试。

2 实验结果与讨论

图 1 为 GGG 衬底上的 YIG 薄膜的高分辨率 XRD 衍射图谱。由图可看出 YIG 和 GGG 的衍射峰很接近, 这是由于 YIG 薄膜与 GGG 衬底具有很相近的晶格结构, (写出各自的晶格常数) 所以才能制备出与 GGG 取向相同的 YIG 薄膜^[10-13]。

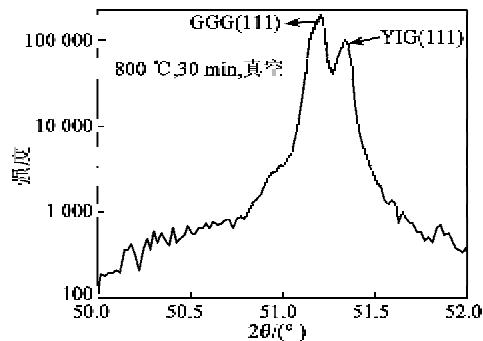
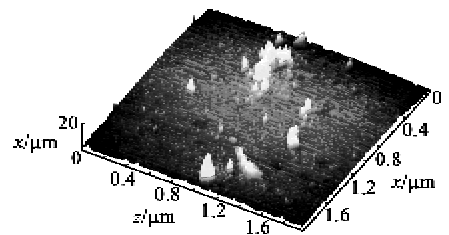
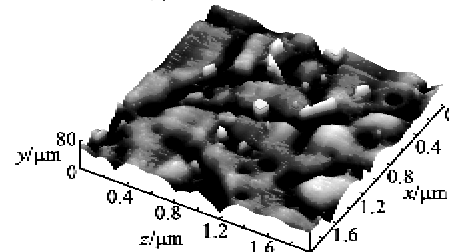


图 1 GGG 上的 YIG 薄膜在真空中, $800\ ^\circ\text{C}$ 快速退火 30 min 的 XRD 图

图 2 为 3D AFM 表面图。由图可知, 真空中快速退火 10 min 的粗糙度为 $1.4\ \text{nm}$, 而常规退火 30 min 的粗糙度为 $11\ \text{nm}$, 明显大于真空中快速退火。因此, 可得磁控溅射可制备出单一晶相、表面质量优异的 YIG 薄膜, 且薄膜与衬底间失配度很小。文献[8]已证明了薄膜的表面质量有助于降低薄膜的 FMR 线宽。



(a) 真空中快速退火 10 min



(b) 大气中退火 30 min

图 2 3D AFM 表面图

图 3 为实验制备薄膜的磁滞线。由图 3(a) 可知, 在相同的温度内, 饱和磁化强度 ($4\pi M_s$) 随着退火时间的上升而下降, 在 $800\ ^\circ\text{C}$ 下退火 10 min 的 $4\pi M_s$ 为 $1\ 630 \times 10^{-4}\ \text{T}$, 薄膜的矫顽力 (H_c) 为 $735.32\ \text{A}/\text{m}$, 随着退火时间延长, 薄膜的 H_c 变化不大。YIG 薄膜的 $4\pi M_s$ 相对于块材 YIG 较小, 对于 YIG 薄膜, 其原因一方面是由于薄膜的密度下降了^[12], 另一方面是由于 YIG 薄膜的晶粒尺寸较小, 导致了较小的 $4\pi M_s$, 因为较小的晶粒尺寸会增大晶界的体积^[14-17], 与晶粒内部相比, 这些边界处拥有更混乱的磁矩方向, 伴随着退火, 晶粒再生长, 晶体的点缺陷和晶界体积的减小, 会导致薄膜的 $4\pi M_s$ 提高。在大气中退火 30 min, 退火温度在 $800 \sim 950\ ^\circ\text{C}$ 范围内性能如图 3(b) 所示, 薄膜的 $4\pi M_s$ 随温度升高而上升, 在 $900\ ^\circ\text{C}$ 时达到最大值 $1\ 688 \times 10^{-4}\ \text{T}$, 其原因是随着退火温度的上升, 薄膜的晶相转化分数增大使薄膜的致密性增加, 从而使 $4\pi M_s$ 上升^[9, 17], 而薄膜的 H_c 随着温度的升高而降低的原因是退火温度的上升使薄膜的缺陷密度下降, 钉

扎效应导致 H_c 减小。在真空 800 °C 快速退火 30 min 条件下,薄膜的 H_c 为 539.89 A/m,真空中退火产生薄膜的 H_c 明显小于大气中退火的 H_c 。

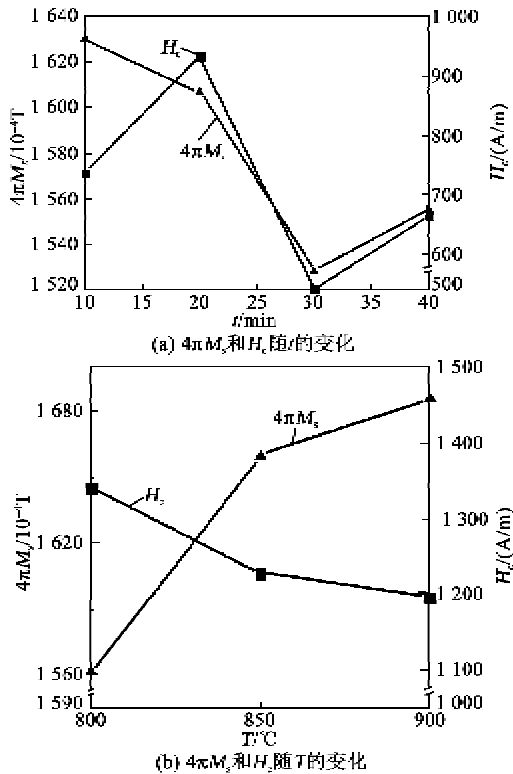


图 3 磁性能的 $4\pi M_s$ 和 H_c 分别随时间和温度的变化

图 4 为基于 GGG 衬底 YIG 薄膜的 FMR 图谱。图中,内部有效磁场 H_{eff} 代表偶极场 $4\pi M_s$ 和所有的各向异性场 H_a 对其影响为

$$H_{\text{eff}} = 4 \times \pi \times M_{\text{eff}} = 4 \times \pi \times M_s + H_a \quad (1)$$

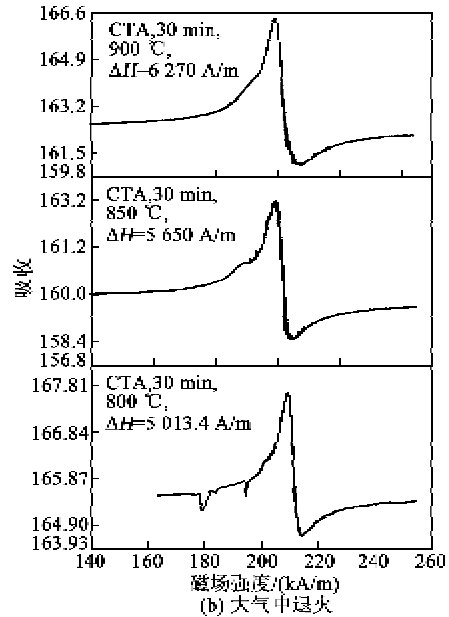
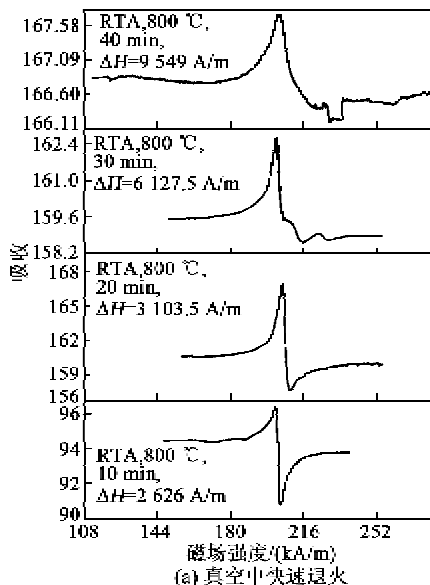


图 4 基于 GGG 衬底 YIG 薄膜的 FMR 图谱

YIG 薄膜的 FMR 图谱表明,在真空中快速退火 800 °C,退火时间分别为 10 min、20 min、30 min、40 min 时所获得的铁磁共振线宽分别为 4 626.1 A/m、3 103.5 A/m、6 127.5 A/m 和 9 549 A/m,而在大气中退火 30 min,退火温度分别为 800 °C、850 °C、900 °C 所获得的铁磁共振线宽分别为 5 013.4 A/m、5 650 A/m、6 207 A/m,与在真空中快速退火 800 °C、退火时间为 30 min 得到的铁磁共振线宽为 6 127.5 A/m。根据薄膜表面的粗糙度会影响薄膜的铁磁共振线宽^[8],可解释文中长时间的退火导致薄膜铁磁共振线宽变宽的现象,这是因为随着温度升高,薄膜的表面变得更粗糙,但当温度高于 800 °C 时,温度不会影响薄膜表面的粗糙度,所以两种退火方式结果相近。

我们通过不同频率下的铁磁共振线宽来计算薄膜的 α 值,图 5(a)为真空中 800 °C 下快速退火 10 min, ΔH 与 α 的关系式^[2,8-15]为

$$\Delta H_{\text{FMR}} = \Delta H_0 + \frac{2 \times \alpha_{\text{eff}} \times \omega}{2 \times \pi \times \sqrt{3} \times |\gamma|} \quad (2)$$

计算所得薄膜的 $\alpha = 2.077 \times 10^{-5}$,对于测试中应用的谐振频率与外加偏置磁场的关系式为

$$f_{\text{FMR}} = |\gamma| \sqrt{(H + H_0)(H + H_c + 4 \times \pi \times M_s)} \quad (3)$$

式中: $|\gamma| = 2.8 \text{ MHz/Oe}$ 为绝对旋磁率, H 为外加磁场。

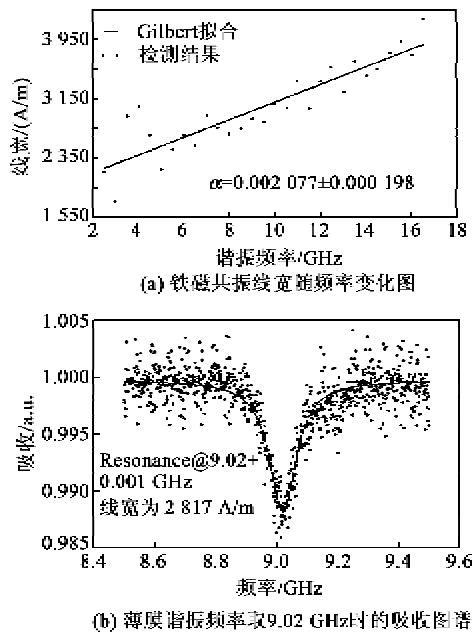


图5 阻尼系数拟合

3 结束语

本文的目的是对于磁控溅射生长的薄膜找到合适的退火条件及规律。在实验中非晶态薄膜分别在真空和大气下退火采用不同的时间以及不同的温度。最佳的实验条件是退火温度为 800 °C, 退火时间为 10 min。实验中薄膜的厚度在 0.5 μm 左右, 薄膜表面粗糙度为 1.9 nm, 饱和磁化强度为 1.630×10^{-4} T, 其在 9.3 GHz 对应的铁磁共振线宽为 2 626.1 A/m, 磁阻尼系数为 2.077×10^{-3} 。薄膜退火在超过 800 °C 的条件下不能对磁性能和铁磁共振线宽有显著的优化。

参考文献:

- [1] KAJIWARA Y, HARIU K, TAKAHASHI S, et al. Transmission of electrical signals by spin-wave interconversion in a magnetic insulator[J]. Nature Letter, 2010, 464(9): 262-266.
- [2] HIDEKAZU K, OLEKSANDR D, VLADISLAV E, et al. Controlled enhancement of spin-current emission by three-magnon splitting[J]. Nature Materials, 2011, 10(19): 660-664.
- [3] PADRON-HERNANDEZ E, AZEVEDO A, REZENDE S M. Amplification of spin waves by thermal spin-transfer torque [J]. Phys Rev Lett, 2011, 107(13): 197-203.
- [4] CASTEL V, Vlietstra N, VAN WEES B J, et al. Frequency and power dependence of spin-current emission

- by spin pumping in a thin-film YIG/Pt system[J]. Phys Rev B, 2012, 86(10): 134419.
- [5] HUANG S Y, FAN X, QU D, et al. Transport magnetic proximity effects in platinum[J]. Phys Rev Lett, 2012, 109(20): 107204.
- [6] NAKAYAMA H, ALTHAMMER M, CHEN Y T, et al. Spin hall magnetoresistance induced by a nonequilibrium proximity effect[J]. Phys Rev Lett, 2013, 110(10): 206601.
- [7] SUN Y. Damping in yttrium iron garnet nanoscale films capped by platinum[J]. Phys Rev Lett, 2013, 111(7286): 106601.
- [8] SUN Yiyao, SONG Y Y, CHANG Houchen, et al. Growth and ferromagnetic resonance properties of nanometer-thick yttrium iron garnet films[J]. Appl Phys, Lett, 2012, 101(15): 152405.
- [9] 杨青慧, 张怀武, 刘颖力, 等. 退火工艺对射频磁控溅射 Bi: YIG 薄膜磁性能的影响[J]. 材料研究学报, 2008, 22(2): 187-190.
- [10] SHONE M. The technology of YIG film growth circuits syst[J]. Signal Process, 1985, 4(1): 89-103.
- [11] GIESS E A, ARGYLE B E, CRONEMEYER D C, et al. Europium-yttrium iron-gallium garnet films grown by liquid phase epitaxy on gadolinium gallium garnet [J]. AIP Conference Proceedings, 1972, 5(10): 110-114.
- [12] POPOVA E, KELLER N, GENDRON F, et al. Structure and magnetic properties of yttrium-iron-garnet thin films prepared by laser deposition[J]. Journal of Applied Physics, 2001, 90(30): 1422-1428.
- [13] BHOI B, VENKATARAMANI N, AIYAR R P R C, et al. Frequency dependent FMR studies on pulsed laser ablated YIG films deposited on (111) GGG substrate[J]. AIP Conf Proc, 2013, 1512(1): 692-693.
- [14] BHOI B, VENKATARAMANI N, AIYA R P R C, et al. FMR and magnetic studies on polycrystalline YIG thin films deposited using pulsed laser [J]. IEEE Transactions on Magnetics, 2013, 49(3): 990-994.
- [15] KUMAR N, PRASAD S, MISRA D S, et al. The influence of substrate temperature and annealing on the properties of pulsed laser-deposited YIG films on fused quartz substrate[J]. Magn Magn Mater, 2008, 320(18): 2233-2236.
- [16] POPOVA E, KELLER N, GENDRON F, et al. Tessier structure and magnetic properties of yttrium-iron-garnet thin films prepared by laser deposition[J]. J Appl Phys, 2001, 90(3): 1422-1428.

(下转第 1060 页)