

## TỔNG HỢP MÀNG MỎNG FERIT Ni-Zn BẰNG PHƯƠNG PHÁP MẠ FERIT

Trần Hoàng Hải<sup>(1)</sup>, Nguyễn Tấn Phước<sup>(2)</sup>, Nguyễn Văn Lợi<sup>(3)</sup>, Masanori Abe<sup>(4)</sup>

<sup>(1)</sup>Phân Viện Vật lý tại Tp. HCM, <sup>(2)</sup>Khoa Tự nhiên Tin học – Trường Cao đẳng Sư phạm Vĩnh Long

<sup>(3)</sup>Trường Cao đẳng Sư phạm Sóc Trăng, <sup>(4)</sup>Viện Công nghệ Tokyo, Nhật Bản

(Bài nhận ngày 27 tháng 9 năm 2004, hoàn chỉnh sửa chữa ngày 13 tháng 12 năm 2004)

**TÓM TẮT:** *Màng mỏng ferit từ mềm Ni-Zn đã được tổng hợp bằng phương pháp mạ ferit trên các đế thủy tinh, kích thước trung bình của hạt là  $0.25 \pm 0.01 \mu\text{m}$  được xác định bằng kính hiển vi điện tử quét. Các tính chất từ mềm của màng đã được xác định. Độ từ thẩm ban đầu  $\mu_0$  là bằng  $28 \pm 3$  đối với màng chế tạo bằng phương pháp mạ ferit và bằng  $60 \pm 5$  đối với màng được ủ. Nguồn gốc của các giá trị  $\mu_0$  đã được thảo luận.*

### I. Giới thiệu:

Trong những công trình gần đây người ta đã thực hiện rất nhiều việc nuôi các màng mỏng ferit có chiều dày  $\mu\text{m}$  bằng các phương pháp khác nhau như cất bằng lazer [1], phún xạ [2] và phương pháp hoá ướt [3]. Sự quan tâm tăng nhanh đối với ferit Ni-Zn, đặc biệt là đối với màng ferit Ni-Zn là vì chúng rất phù hợp với các ứng dụng làm các lớp phủ cho các thiết bị cảm ứng tích phân hay làm các dụng cụ từ kích thước micro mét [4] hoặc để cải thiện hiệu quả của các đầu ghi màng mỏng [5], nhờ đặc trưng từ mềm của chúng và điện trở suất cao của chúng. Rất nhiều công trình đề cập đến chất lượng cấu trúc của các màng lắng đọng và các thông số từ như độ từ hóa bão hòa  $M_s$  và lực kháng từ  $H_c$ . Song đối với hầu hết các ứng dụng có thể của các màng ferit thì điều thiết yếu là độ từ thẩm ban đầu  $\mu_0$  của màng. Cho đến nay thông số này mới chỉ được công bố đối với màng phún xạ [2],  $\mu_0 = 27$ . Song giá trị nêu trên đòi hỏi thực hiện ở nhiệt độ cao hơn  $600^\circ\text{C}$ . Điều này đã làm hạn chế rất nhiều ứng dụng trong hầu hết các dụng cụ.

Ở đây chúng tôi trình bày giá trị của độ từ thẩm của các màng ferit được chế tạo bằng phương pháp mạ ferit. Phương pháp này có ưu điểm là tạo ra các màng ferit lắng đọng trên các đế thủy tinh ở nhiệt độ thấp  $< 100^\circ\text{C}$ .

### II. Thực nghiệm:

Các màng ferit có thành phần  $\text{Ni}_{0.17}\text{Zn}_{0.38}\text{Fe}_{2.45}\text{O}_4$  được tổng hợp bằng phương pháp mạ ferit phun quay [6] tại nhiệt độ  $90^\circ\text{C}$  trên các đế thủy tinh. Việc ủ màng được thực hiện ở nhiệt độ  $500^\circ\text{C}$  trong không khí trong nửa giờ. Cấu trúc của màng được xác định bằng phương pháp nhiễu xạ tia X (XRD), kính hiển vi điện tử quét (SEM). Các tính chất từ được thực hiện bằng từ kế SQUID và phép đo độ từ thẩm được tiến hành trong một từ trường ngoài thấp 2,5 A/m. Điện trở của màng được xác định bằng phương pháp tiếp xúc 4 điểm với việc sử dụng tiếp điểm indium.

### III. Kết quả và thảo luận:

Bởi vì độ từ thẩm ban đầu  $\mu_0$  của ferit phụ thuộc mạnh vào cấu trúc vi mô của chúng nên ta phải chụp ảnh của màng nhờ kính hiển vi điện tử quét (SEM). Trên hình 1a ta thấy ảnh chụp màng từ phía trên. Màng có kích thước hạt trung bình  $D$  cỡ  $0.25 \pm 0.1 \mu\text{m}$  đây là kích thước hạt khá nhỏ và dựa trên số liệu đối với ferit Ni-Zn khối ta có thể dự đoán là  $\mu_0$  nhỏ. Ảnh SEM từ mặt bên của màng trong hình 1b chỉ ra rằng màng có cấu trúc cột với các cột kéo dài toàn bộ chiều dày của màng. Chúng ta chưa thể khẳng định rằng các cột có phải là các đơn hạt hay không. Thông thường các cột trong các màng ôxyt bao gồm các hạt nhỏ hơn. Một "hàng cột" với các lỗ trống trong màng là điển hình cho các phương pháp lắng đọng phun được sử dụng trong công trình này. Để cải thiện điều này, trong trường hợp mạ ferit, thì khả năng dính ướt của dung dịch phản ứng ướt trên đế cần phải tăng lên sao

cho bề mặt để bị thay đổi bằng sự phát sinh các nhóm OH “hoạt hoá” hoạt động như các nhân ferit. Việc ủ sẽ không làm thay đổi trong vi cấu trúc của màng.

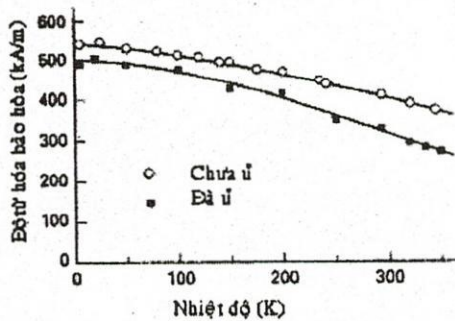
Hình 2 cho ta sự phụ thuộc của độ từ hóa bão hòa  $M_s$  vào nhiệt độ  $T$  đối với cả hai màng được ủ và không được ủ. Đường cong nối các số liệu trùng khít với định luật Bloch [7].

$$M_s(T) = M_0 [1 - (T/T_c)^{3/2}]$$

ở đây  $M_0$  từ độ bão hòa ở 0 K và  $T_c$  là nhiệt độ Curie.

Từ hình 2 ta tìm thấy  $M_0 = 540 \pm 1$  kA/m và  $T_c = 744 \pm 8$  K đối với các màng không ủ và  $M_0 = 500 \pm 4$  kA/m và  $T_c = 584 \pm 17$  K đối với màng được ủ. Cả hai loại màng này đều có  $M_s$  nằm trong khoảng cho phép đối với các ferit spinel [7].  $M_s$  của màng được ủ hơi thấp hơn màng không được ủ, điều này phù hợp với kết quả của Lubitz và các cộng sự [8].

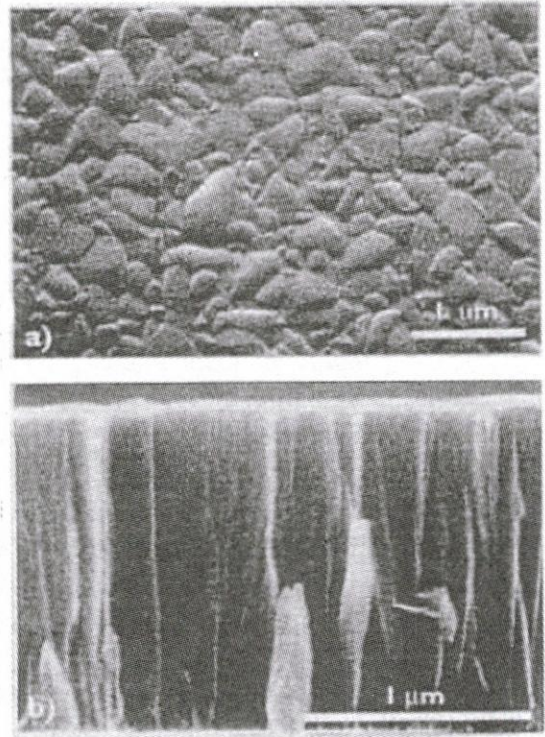
Điều quan trọng trong hình 2 là trong cả hai trường hợp thì các màng ferit được tạo ra bằng phương pháp mạ ferit đều giữ nguyên tính chất từ của chúng cho đến  $80^\circ\text{C}$ , là nhiệt độ hoạt động cực đại của nhiều dụng cụ từ kích thước thu nhỏ như các đầu ghi màng mỏng.



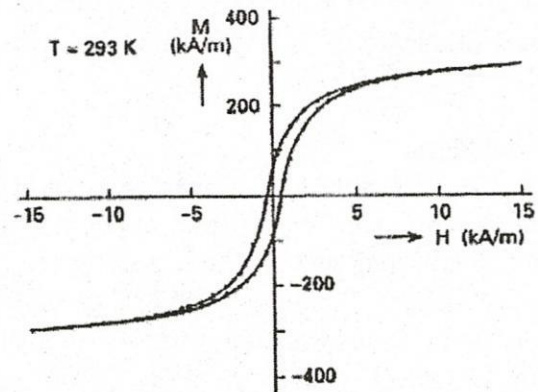
Hình 2. Sự phụ thuộc của độ từ hóa bão hòa  $M_s$  vào nhiệt độ  $T$  cho các mẫu không ủ và sau khi ủ.

Đặc trưng từ mềm của các màng này có thể nhìn thấy trên hình 3. Đây là đồ thị đường cong trễ của màng đã được ủ được đo tại nhiệt độ phòng. Từ đường cong trên ta có thể thu nhận được lực kháng từ  $H_c = 440$  A/m và độ từ thẩm tổng cộng cỡ 100. Song trong ứng dụng thực tế, độ từ thẩm ban đầu  $\mu_0$  là một thông số quan trọng. Sự phụ thuộc của độ từ thẩm ban đầu vào tần số  $f$  được cho trên hình 4 đối với cả hai trường hợp không ủ và ủ. Ta có thể thấy rằng màng không ủ có  $\mu_0 = 28 \pm 3$ , trong khi đó màng ủ  $\mu_0 = 60 \pm 5$ .

Các giá trị  $\mu_0$  của các màng ferit được tạo ra bằng phương pháp mạ ferit phù hợp với các giá trị của ferit Ni-Zn khối với kích thước hạt tương tự là  $D \approx 0.25 \mu\text{m}$ . Vì vậy sẽ không có hiệu ứng nội làm



Hình 1. Ảnh chụp từ trên xuống (a) và chụp từ mặt bên (b) của màng bằng kính hiển vi điện tử quét (SEM).



Hình 3. Chu trình từ trễ của ferit NiZn được ủ tại  $500^\circ\text{C}$ , đo ở nhiệt độ 293 K.

giới hạn ở các giá trị thấp của  $\mu_0$  đối với màng ferit. Điều này chứng tỏ rằng kích thước hạt của màng là đủ lớn (tức là vào khoảng  $\mu\text{m}$ ).

Khi so sánh với màng ferit được nuôi bằng các phương pháp khác [5], ta có thể kết luận là: giá trị tương đối cao của  $\mu_0$  thu được trong phương pháp mạ ferit là do nhiệt độ lắng đọng thấp ( $80^\circ\text{C}$ ), điều này đã giới hạn được hiệu ứng từ ngược do sự khác nhau trong các hệ số giãn nở nhiệt giữa đế và màng.

Việc cải thiện  $\mu_0$  của các màng được chế tạo bằng phương pháp mạ ferit bằng việc ủ có thể được hiểu là để làm tắt mômen quỹ đạo của các ion  $\text{Fe}^{2+}$  trong vị trí bát diện bằng việc ôxy hóa. Một mômen quỹ đạo  $\text{Fe}^{2+}$  không bị dập tắt sẽ làm tăng phần đóng góp lớn của liên kết spin - quỹ đạo vào hằng số dị hướng  $k$  của ferit [7]. Việc ôxy hóa  $\text{Fe}^{2+}$  thành  $\text{Fe}^{3+}$  xảy ra khi  $T \geq 300^\circ\text{C}$  trong các màng này [8] đã làm giảm phần đóng góp liên kết spin-quỹ đạo vào  $k$  và vì  $\mu_0 \approx 1/k$ , nên đã làm tăng  $\mu_0$ . Việc làm giảm nồng độ  $\text{Fe}^{2+}$  qua việc ủ đã được khẳng định qua phép đo điện trở suất  $\rho$ , tăng từ  $39 \Omega\text{cm}$  đối màng không ủ lên  $\geq 7500 \Omega\text{cm}$  đối với màng được ủ.

#### IV. Kết luận:

Chúng tôi đã tổng hợp màng ferit Ni-Zn bằng phương pháp mạ ferit trên các đế thủy tinh. Các màng này có độ từ thẩm ban đầu  $\mu_0 = 28 \pm 3$  đối với màng không ủ và  $\mu_0 = 60 \pm 5$  đối với màng được ủ. Với việc tạo ra màng ở nhiệt độ thấp  $80^\circ\text{C}$  và điện trở suất của màng cao nên rất thích hợp cho các ứng dụng làm các màng từ mềm cách điện.

#### Lời cảm ơn:

Công trình đã được hoàn thành với sự tài trợ của chương trình nghiên cứu cơ bản và sự hợp tác với Viện Công nghệ Tokyo, Nhật Bản.

## Ni-Zn FERRITE THIN FILMS SYNTHESIZED BY FERRITE PLATING

Tran Hoang Hai<sup>(1)</sup>, Nguyen Tan Phuoc<sup>(2)</sup>, Nguyen Van Loi<sup>(3)</sup>, Masanori Abe<sup>(4)</sup>

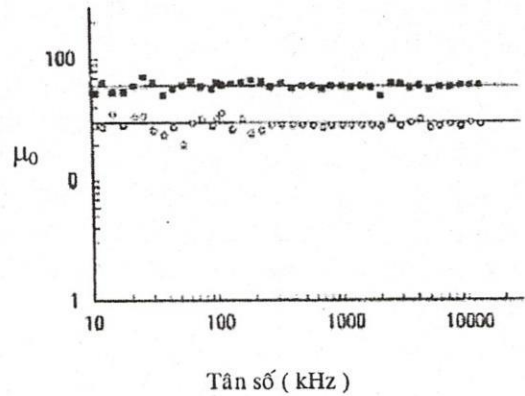
<sup>(1)</sup>HoChiMinh City Branch of The Institute of Physics, <sup>(2)</sup>Vinh Long Teacher Training College

<sup>(3)</sup>Soc Trang Teacher Training College, <sup>(4)</sup>Tokyo Institute of Technology, Japan

**ABSTRACT:** Ni-Zn soft-ferrite thin films synthesized by ferrite plating on the glass substrates at  $80^\circ\text{C}$ . Electric and magnetic properties, mean grain size, thickness of the films were determined. Initial permeability  $\mu_0 = 28 \pm 3$  as-deposited, and that this can be doubled to  $60 \pm 5$  upon annealing. These films may be suited for various applications requiring insulating soft-magnetic films.

#### TÀI LIỆU THAM KHẢO

- [1]. C. M. Williams, D. B. Chrisley, P. Lubitz, K. S. Grabowski, and C. M. Cotell, "The magnetic and structural properties of pulsed laser deposited epitaxial MnZn-ferrite films", *J. Appl. Phys.*, vol 75, 1676-1680, 1994.



Hình 4. Sự phụ thuộc của độ từ thẩm ban đầu  $\mu_0$  vào tần số đối với các màng chưa ủ (o) và màng đã được ủ (•).

- [2]. M. F. Gillies, R. Coehoorn, J. B. A. van Zon, and D. Alders, "Structure and soft-magnetic properties of sputter deposited MnZn-ferrite films", *J. Appl. Phys.*, vol. 83, 6855-6857, 1998.
- [3]. Tran Hoang Hai, Ha Thi Bich Van, Tran Canh Phong, and Masanori Abe, "spinel ferrite thin film synthesizing by spin spray ferrite plating", *Physica B* 327, 194-197, 2003.
- [4]. J. Y. Park and M. G. Allen, "Development of magnetic materials and processing techniques applicable to integrated micro-magnetic devices", *J. Micromech. Miroeng.*, vol 8, 307-316, 1998.
- [5]. P. J. van der Zaag, J. J. M. Ruigrok, and M. F. Gillies, "New options in thin film recording heads through ferrite layers", *Philips J. Res.*, vol. 51, 173-195, 1998.
- [6]. Tran Hoang Hai, Ha Thi Bich Van, Le Minh Tung and Masanori Abe, "Ferrite thin films synthesized by ferrite plating and their applications", *Proc. of the Seventh Vietnamese-German Seminar on Physics and Engineering*, Halong City, Vietnam, 239-242, 2004.
- [7]. J. Smit and H. P. J. Wijn, *Ferrites*, Eindhoven: Philips Technical Library, 1959.
- [8]. P. Lubitz, S. H. Lawrence, F. J. Rachford, and B. J. Rappoli, "Effects of annealing on the microwave properties of spin-spray NiZn-ferrites", *IEEE Trans. Magn.*, vol. 30, 4539- 4541, 1994.