

# 纳米结构 SmCo/FeCo 多层薄膜的磁性

刘湘华 严 格 崔利亚 周少雄 王崇愚

(钢铁研究总院国家非晶微晶合金工程技术研究中心, 北京 100081)

郑 鹁 王艾玲 陈金昌

(首都师范大学物理系, 北京 100037)

(1999 年 6 月 10 日收到; 1999 年 10 月 20 日收到修改稿)

研究了用磁控溅射方法制备的纳米结构  $\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}$  单层膜、 $\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}/\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  双层膜及  $\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}/\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}/\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}$  三层膜的磁性, 特别是双层膜及三层膜系统中的  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  软磁层厚度  $d$  对薄膜剩磁比 ( $M_r/M_s$ ) 和矫顽力 ( $H_c$ ) 的影响. 所有样品的磁滞回线测量表明, 该系列薄膜的易磁化轴在膜面内. 磁滞回线的单一硬磁相特征, 说明 SmCo 硬磁层与 FeCo 软磁层之间的交换相互作用使两相很好地复合在一起. 在双层膜和三层膜中,  $M_r/M_s$  随软磁层厚度  $d$  的增加单调上升, 而矫顽力随  $d$  的变化出现一峰值. 通过研究  $\Delta M$  随磁场  $H$  的变化, 发现随着软、硬磁相界面数的增加,  $\Delta M$  曲线的正峰数量逐渐减少; 负峰数量逐渐增强, 负峰的半高宽逐渐减少.

PACC: 7550K; 7570; 7170G

## 1 引 言

自从 Kneller 等<sup>[1]</sup>首次提出交换弹性磁体以来, 人们对这类材料进行了大量研究. 在交换弹性磁体内, 具有纳米量级的软、硬磁相, 在晶粒边界处出现双相交换相互作用, 使高饱和磁化强度的软磁相与高矫顽力的硬磁相实现复合. 最近, Skomski 等<sup>[2]</sup>计算结果表明, 纳米双相复合磁体的理论磁能积可高达  $955 \text{ kJ/m}^3$  (大约是现在最佳商业永磁体磁能积的 3 倍). 正是由于这种新型磁体具有独特的复合结构, 并可望获得高性能, 从而引起磁学界及材料科学界的广泛关注.

目前, 主要是通过机械合金化法<sup>[3]</sup>及快淬法<sup>[4]</sup>获得交换弹性磁体. 采用这两种方法可将软、硬磁相的晶粒尺寸减少到纳米量级, 从而得到很好的双相复合. 但这两种方法均不能很好地控制软、硬磁相的比例及晶粒的大小, 更不能有效地控制晶粒的取向及晶界的变化, 而只能获得各向同性交换耦合磁体, 其最大磁能积比理论预期结果低很多, 并且对理论模型的建立和验证带来一定的困难.

磁控溅射方法使超薄薄膜的生长(特定取向、膜层厚度等)可以得到控制, 这对于研究交换弹性磁体的双相相互作用机制及提高其磁性能而言, 提供了一个非常好的实验手段. Sellmyer 等<sup>[5]</sup>采用磁控溅射的方法制备出膜面内各向异性的 SmCo 单层膜和 SmCo/FeCo 双相复合多层膜. 单层膜矫顽力达  $3.3 \times 10^5 \text{ A/m}$ . 双相复合多层膜中, 随着软磁层厚度的

增加,矫顽力单调减少,剩磁比单调增加。

为了对交换相互作用的本质有进一步的认识,我们利用磁控溅射方法制备了 SmCo 单层膜和 SmCo/FeCo(Fe)双层膜及多层膜,并进行了初步研究。

## 2 实验方法

具有衬底层(Cr)和覆盖层(Cr)的  $\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}$  单层膜、 $\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}/\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$ (Fe) 双层和  $\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}/\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}/\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}$  三层薄膜采用多靶磁控溅射仪来完成。所有薄膜在水冷基片(24 mm×50 mm)上溅射沉积。溅射气体为高纯 Ar(99.9999%)。把小 Sm 条加在 Co 靶上制成 SmCo 复合靶,通过调整 Sm 条的数目来控制薄膜的成分。FeCo 靶采用  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  合金。Cr 靶和 Fe 靶纯度约高于 99.9%。各个膜层的厚度通过溅射时间来控制。溅射室内本底真空度  $P_0 = 2 \times 10^{-5}$  Pa。每次可同时制备 16 个样品。衬底和覆盖层的厚度分别为 126 和 9 nm。SmCo、FeCo 和 Fe 层的溅射气压  $P_{\text{Ar}} = 0.6$  Pa, Cr 为  $P_{\text{Ar}} = 0.4$  Pa。SmCo 层的溅射速率为 6.6 nm/min, FeCo 和 Fe 为 10.2 nm/min, Cr 为 10.8 nm/min。

样品的晶体结构通过 X 射线衍射测定;磁性由美国 MicroMag 2900 型交流梯度磁强计(AGM)测量,外场可达  $1.5 \times 10^5$  A/m;SmCo 薄膜的成分采用扫描电子显微镜能量分析来完成。

## 3 实验结果及讨论

对沉积在玻璃上的 Cr, SmCo 进行 X 射线衍射分析得到:只有 bcc 结构的 Cr(110)衍射峰,说明 Cr 具有高度的取向结构,而未发现 SmCo 衍射峰。FeCo(Fe)也只有(110)衍射峰。

### 3.1 磁性能

#### 1) 单层膜

单层膜的起始磁化曲线、垂直和平行膜面的磁滞回线及小回线在图 1 中给出。SmCo 层的厚度为 44 nm。由图 1(b)可见,SmCo 层的易磁化轴在膜面内,矫顽力为  $3.3 \times 10^5$  A/m,剩磁比为 0.75,大于面内各向异性的剩磁比值,这其中具体的原因还有待于作进一步的研究。从起始磁化曲线(图 1(a))和小回线(图 1(c))可知,矫顽力主要是由畴壁钉扎控制。

#### 2) 双层膜

在 SmCo/FeCo 双层膜结构中,改变 FeCo 软磁层厚度,可得到双层膜的矫顽力和剩磁比随软磁层厚度的变化关系(见图 2)。从图 2 可以看出,剩磁比随软磁层厚度的增加而单调增加,但矫顽力在 1 nm 附近出现了峰值,该结果我们尚未见报道。

改变膜层的结构,得到不同结构下矫顽力随软磁层厚度的变化关系(见图 3)。从图 3 可见,当改变了硬磁层的厚度(图 3 曲线 a)、软磁相(图 3 曲线 b),以及软、硬磁层的排列

结构(图 3 曲线 c)后,在软磁层的厚度小于 5 nm 范围内,矫顽力均出现了峰值.这说明在薄的软磁层厚度范围内,矫顽力出现峰值的实验现象确实是存在的.在双相复合材料研究中,软磁相的增加一般是使矫顽力减少,而我们的实验中却出现了峰值,对于这个结果的解释还有待于深入的分析.

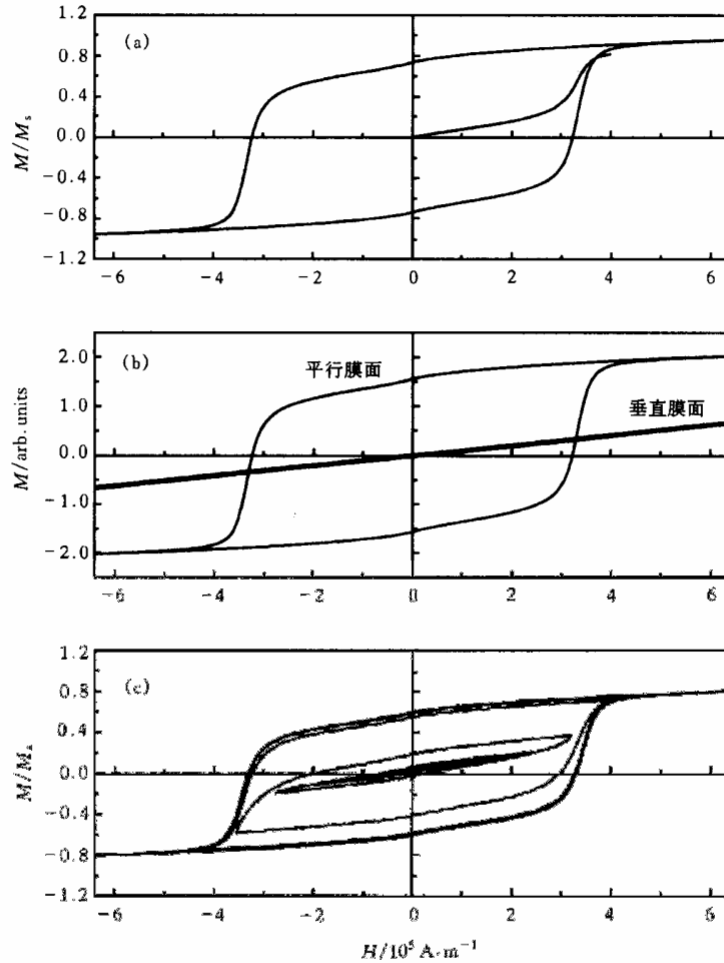


图 1 Cr(126 nm)/SmCo<sub>23</sub>(44 nm)/Cr(9 nm)单层膜样品的起始磁化曲线及磁滞回线 (a)为起始磁化曲线和磁滞回线;(b)为平行和垂直膜面的磁滞回线;(c)为小回线

### 3) 三层膜

在硬磁层中间插入软磁层,即膜层的关系为  $\text{SmCo}(\lambda d)/\text{FeCo}(d)/\text{SmCo}(\lambda d)$ . 固定  $\lambda$ , 改变  $d$ , 可得到在一定软、硬磁层体积百分比下不同软磁相厚度的三层结构膜. 图 4 为软磁层厚度占总体积百分比为 30% 的薄膜 ( $\lambda = 1.2$ ) 矫顽力及剩磁比随软磁层厚度的变化关系.

从图 4 可以看出,剩磁比随软磁层厚度的增加单调增加;而矫顽力随软磁层厚度的增加开始上升,在 10 nm 处出现了峰值,然后随着软磁层厚度的继续增加而单调减小. 这个

结果与理论计算结果是一致的.

改变  $\lambda$  值, 可得到软磁层厚度占不同体积百分比的薄膜矫顽力随软磁层厚度的变化关系(见图 5). 三种样品均出现了峰值. 峰值的位置及大小均随着软磁层体积百分比的减少而下降.

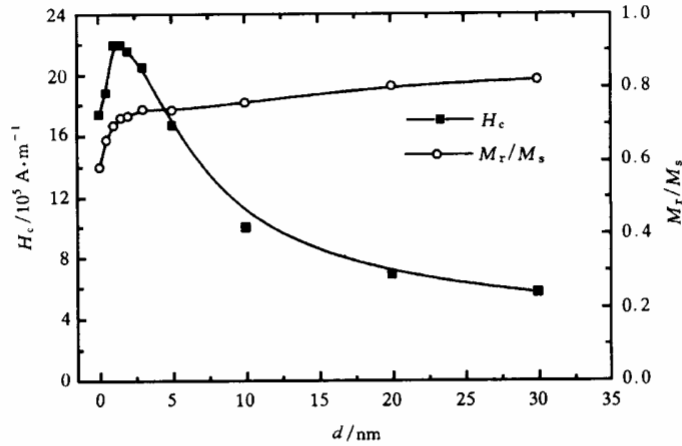


图 2 Cr(126 nm)/Sm<sub>22</sub>Co<sub>78</sub>(44 nm)/Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub>( $d$  nm)/Cr(9 nm) 双层膜样品的矫顽力和剩磁比随 FeCo 层厚度的变化关系

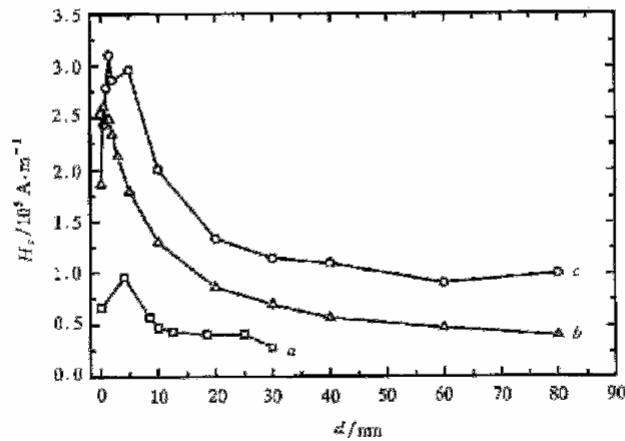


图 3 三种不同结构样品的矫顽力随软磁层厚度的变化关系. 曲线  $a$  为 Sm<sub>22</sub>Co<sub>78</sub>(7.7 nm)/Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub>( $d$  nm); 曲线  $b$  为 Sm<sub>22</sub>Co<sub>78</sub>(44 nm)/Fe( $d$  nm); 曲线  $c$  为 Sm<sub>22</sub>Co<sub>78</sub>(44 nm)/Fe<sub>65</sub>Co<sub>35</sub>( $d$  nm)/Sm<sub>22</sub>Co<sub>78</sub>(11 nm)

### 3.2 交换相互作用

为研究薄膜的交换相互作用, 对各种结构的薄膜材料进行了直流退磁剩磁  $M_0(H)$  及

等温剩磁  $M_r(H)$  的测量, 磁性相间的相互作用可通过下式得到:

$$\Delta M(H) = M_d(H) - [1 - 2M_r(H)].$$

图 6 给出了  $\Delta M-H$  曲线, 对于单层膜, 观察到一个小的正半峰和负峰; 双层膜中正峰减小, 负峰增加; 而三层膜则正峰消失, 全为负峰, 即随着软、硬磁相界面数的增加正峰逐渐减少, 负峰的程度逐渐增强, 负峰的半高宽逐渐减小.

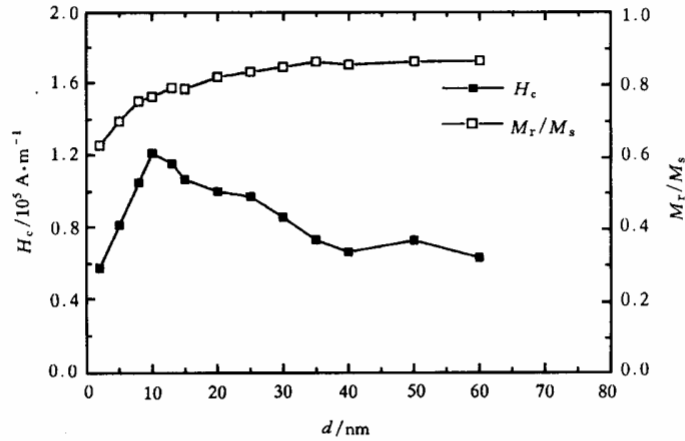


图 4  $\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}(1.2d \text{ nm})/\text{Fe}_{64}\text{Co}_{35}(d \text{ nm})/\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}(1.2d \text{ nm})$  样品的矫顽力及剩磁比随  $\text{FeCo}$  层厚度的变化关系

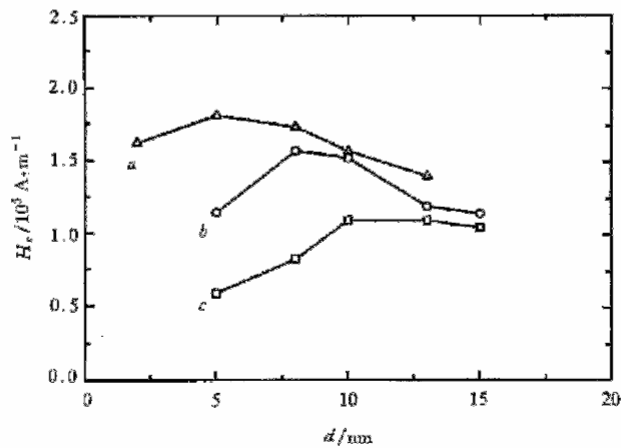


图 5 软磁层厚度占不同体积百分比下的矫顽力随软磁层厚度的变化曲线

我们知道,  $\Delta M-H$  曲线上的正峰代表磁性相之间的交换耦合, 而负峰则表示磁偶极子的相互作用. 以上结果说明, 在所研究的薄膜中硬磁相间的交换耦合可以忽略, 而磁偶极子的相互作用居于支配地位.

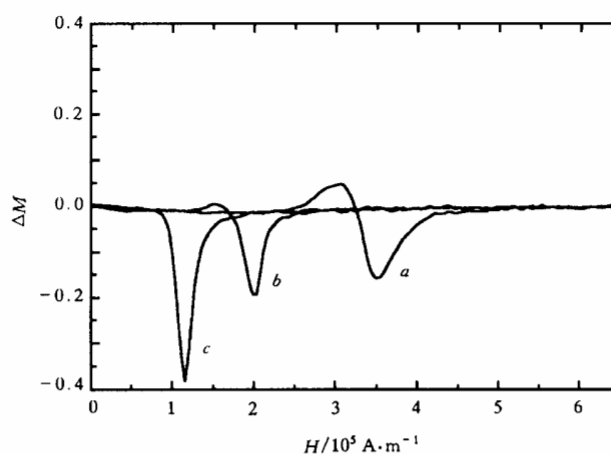


图6 三种结构的  $\Delta M$  曲线 曲线 *a* 为 Cr(126 nm)/SmCo(44 nm)/Cr(9 nm) 的单层膜; 曲线 *b* 为 Cr(126 nm)/SmCo(44 nm)/FeCo(1.5 nm)/Cr(9 nm) 的双层膜; 曲线 *c* 为 Cr(126 nm)/SmCo(15 nm)/FeCo(13 nm)/SmCo(15 nm)/Cr(9 nm) 的三层膜

## 4 结 论

用磁控溅射的方法,我们成功地制备出纳米结构的 SmCo/FeCo 多层膜.通过研究,得到了以下主要结论:

1)得到了矫顽力为  $3.3 \times 10^5$  A/m 的面内各向异性单层膜,其矫顽力机理主要为钉扎机制.

2)在 SmCo(44 nm)/FeCo( $d$  nm)双层膜中,随着软磁层厚度的增加剩磁比单调增加,矫顽力在 1 nm 附近有峰值出现.在 SmCo(7.7 nm)/FeCo( $d$  nm), SmCo(44 nm)/Fe( $d$  nm)及 SmCo(44 nm)/FeCo( $d$  nm)/SmCo(11 nm)三种结构中,矫顽力在小于 5 nm 范围内,均有峰值出现.

3)在 SmCo/FeCo/SmCo 三层膜结构中,当软磁层的体积百分比为 30% 时,随着软磁层厚度的增加,剩磁比单调增加,矫顽力在 10 nm 附近出现了峰值.当软磁层的体积百分比为 15% 和 20% 时,矫顽力均有峰值出现.峰值的大小和位置随着体积百分比的减少而增加.

4)从  $\Delta M-H$  曲线分析得到,随着软、硬磁相界面数的增加, $\Delta M$  曲线的正峰逐渐减少;负峰的强度逐渐增强,负峰的半高宽逐渐减小.

- [1] F. Kneller, R. Hawig, *IEEE Trans. Magn.*, **27**(1991), 3588.
- [2] R. Skomski, J. M. D. Coey, *Phys. Rev.*, **B48**(1993), 15812.
- [3] J. Ding, P. G. McCormick, R. Street, *J. Magn. Magn. Mater.*, **124**(1993), L1.
- [4] L. Withanawasam, G. C. Hadjipanayis, R. F. Krause, *J. Appl. Phys.*, **75**(1994), 6646.
- [5] I. A. Al-Omari, D. J. Sellmyer, *Phys. Rev.*, **B52**(1995), 3441.

## MAGNETIC PROPERTIES OF NANOSTRUCTURED SmCo/FeCo MULTILAYERS

LIU XIANG-HUA YAN GE CUI LI-YA ZHOU SHAO-XIONG WANG CHONG-YU

(National Amorphous and Nanocrystalline Alloy Engineering Research Center,  
Central Iron and Steel Research Institute, Beijing 100081)

ZHENG WU WANG AI-LING CHEN JIN-CHANG

(Department of Physics, Capital Normal University, Beijing 100037)

(Received 10 June 1999; revised manuscript received 20 October 1999)

### ABSTRACT

The dependence of reduced remanence ( $M_r/M_s$ ) and coercivity of  $\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}/\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  bilayer and  $\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}/\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}/\text{Sm}_{22}\text{Co}_{78}$  triple-layer films on  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  soft-magnetic layer thickness  $d$ , was systematically investigated. All the hysteresis loops of the films exhibited a single-phase behavior, reflecting a strong exchange coupling between soft- and hard-magnetic phase.  $M_r/M_s$  showed a monotonic increase with increasing  $\text{Fe}_{65}\text{Co}_{35}$  thickness  $d$ , and the coercivity would show a peak with increasing  $d$ . From the plot of  $\Delta M$  versus applied field  $H$ , it is shown that the positive profile decreases and the negative interaction profile increases with the increase of interfaces between soft- and hard-layers.

**PACC:** 7550K; 7570; 7170G