

# FeCuNbSiB 单层膜和三明治膜的 磁特性与巨磁阻抗效应\*

萧淑琴 刘宜华 颜世申 代由勇 张 林 梅良模

(山东大学物理系, 济南 250100)

(1999 年 6 月 10 日收到; 1999 年 7 月 17 日收到修改稿)

用射频溅射法制备了  $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$  单层膜和 Cu 或 Ag 作为中间层的三明治膜. 溅态膜为非晶态结构. 磁畴观察结果表明, 单层膜在 380 °C 退火后, 呈现均匀磁化的纳米晶结构, 该样品软磁特性最佳, 其巨磁阻抗效应最大, 在 13 MHz, 最大磁阻抗比纵向为 18%, 横向为 14%. 溅态三明治膜具有较大的巨磁阻抗效应, 在 13 MHz, Cu 夹层三明治膜的最大磁阻抗比纵向为 32%, 横向为 11%, Ag 夹层三明治膜的最大磁阻抗比纵向为 47%, 横向为 57%. Cu 夹层三明治膜经 250 °C 退火后, 在低频下表现为巨磁电感效应, 在 100 kHz, 最大磁电感比为 1733%.

PACC: 7550K; 7570; 7220M

## 1 引 言

巨磁阻抗(GMI)效应具有高灵敏度、低饱和场、无磁滞、快响应、稳定性好等特点, 因此, 具有 GMI 效应的材料是制备磁记录头及磁传感器的优异材料. GMI 效应引起了科学工作者的广泛关注, 他们积极开展了理论和材料方面的研究工作. 最初, 对这一效应研究得最多的是具有零或负磁致伸缩系数的钴基非晶态软磁合金细丝, 特别是长度只有几毫米的小尺寸细丝<sup>[1,2]</sup>. 目前, 对 GMI 效应的研究已扩大到非晶态软磁薄带<sup>[3,4]</sup>、薄膜<sup>[5,6]</sup>和多层膜<sup>[6,7]</sup>, 并进一步扩大到纳米晶铁基软磁合金, 特别是成分为  $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$  的纳米晶(称为 FINEMET)合金材料<sup>[8,9]</sup>. 这是由于 FINEMET 具有非常优异的软磁性能, 因此是研究 GMI 效应的最佳材料. 本文研究了  $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$  单层膜和 Cu, Ag 作为中间层的三明治膜的磁特性和 GMI 效应, 观察了膜的磁畴结构.

## 2 实 验

薄膜样品用射频溅射法制备. 靶是用烧结法制备的成分为  $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$  的合金. 射频输入功率为 240 W. 靶和衬底均用水冷. 本底真空度为  $7 \times 10^{-4}$  Pa, 溅射过程中

\* 国家自然科学基金(批准号: 59671022)及高等学校博士学科点专项科研基金(批准号: 9704225)资助的课题.

控制氩气压为 0.7 Pa, 溅射速率为 0.05 nm/s, 单层膜厚为 6.2  $\mu\text{m}$ , 切割成 20 mm  $\times$  3 mm. 三明治膜中间金属层宽为 0.3 mm, 长为 15 mm, 厚为 1  $\mu\text{m}$ , 两端为两个圆形电极. 磁性层宽为 3 mm, 长为 10 mm, 厚为 3  $\mu\text{m}$ , 在两电极内侧将金属层包住. 样品的形状由衬底上所放掩模决定. 衬底为 (100)Si 片. 将制备态样品放入真空系统中 ( $1.3 \times 10^{-3}$  Pa) 在不同温度下进行退火热处理, 制成不同退火态样品. 用振动样品磁强计测量磁特性, 用 HP4192A 阻抗分析仪测量有效磁导率和阻抗, 直流磁场是由一对直径为 30 cm 的亥姆霍兹线圈提供, 磁场范围为零至  $\pm 5.6 \text{ kA} \cdot \text{m}^{-1}$ . 亥姆霍兹线圈的放置方向是使其磁场与地磁场垂直, 以减小地磁场的影响. 磁畴结构观察用 Kerr 效应显微镜完成<sup>[10]</sup>. 观察磁畴时, 先将样品沿长方向磁化到饱和, 然后减小磁场到零, 再反向增加磁场到样品的矫顽力, 然后再减小磁场到零, 观察样品的磁畴结构. 阻抗测量中, 定义 GMI 比为  $\Delta Z/Z = [Z(H) - Z(H_{\text{max}})]/Z(H_{\text{max}})$ ,  $R, X$  比分别为  $\Delta R/R = [R(H) - R(H_{\text{max}})]/R(H_{\text{max}})$ ,  $\Delta X/X = [X(H) - X(H_{\text{max}})]/X(H_{\text{max}})$ ,  $H_{\text{max}} = 5.6 \text{ kA/m}$  为外加磁场的最大值.

### 3 结果及分析

用振动样品磁强计测量的结果表明, 制备态  $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$  单层膜的软磁特性较差, 因此 GMI 效应较小. 经 380  $^{\circ}\text{C}$  退火 20 min 后样品具有最佳的软磁特性, 纵向磁化的磁畴结构如图 1 所示. 沿图 1 的窄边方向为样品的长方向, 从图 1 可以看出畴结构具有如下特点: (1) 从整体上看, 磁畴结构是由一些宽的带状畴组成, 磁畴方向与样品长方向有

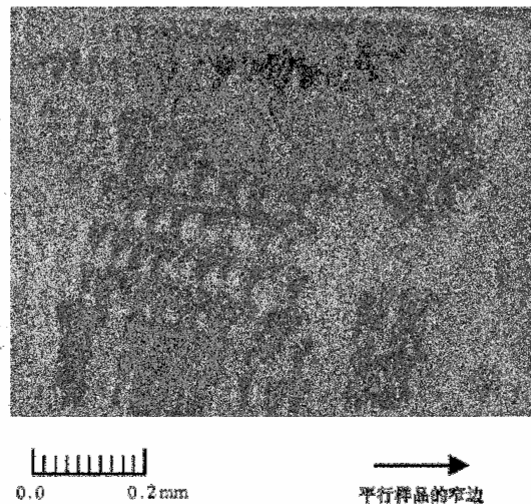


图 1 经 380  $^{\circ}\text{C}$  退火, 膜的纵向磁化磁畴结构

一夹角, 显然膜中存在各向异性, 这可能是残存的应力感生各向异性, 它和形状各向异性合成后成为一倾斜方向, 这一各向异性将影响 GMI 效应. (2) 膜中均匀分布着小的近圆形畴, 估计这是 Fe 的纳米晶粒, 它的平均尺寸约为 20 nm, 这些单畴粒子均匀分布在非晶

母体中,它们是材料具有良好软磁特性的重要条件.经 380 °C 退火的样品,具有最大 GMI 效应,图 2 给出 380 °C 退火膜在 13 MHz 时的纵向和横向 GMI(分别以 LMI 和 TMI 表示)比随外加磁场的变化关系.可以看出,纵向和横向 GMI 比分别在 80 和 800 A/m 磁场下有一个峰值.因为纵向和横向 GMI 的峰值位置分别对应着横向和纵向各向异性场,因此我们的结果表明膜的易轴与膜的长方向有一小的夹角,与图 1 的磁畴观察结果一致.纵向 GMI 比在磁场大于各向异性场时,迅速下降,很快达到饱和,横向 GMI 比则下降缓慢,这可能是由于横向退磁场的影响.最大 GMI 比纵向为 18%, 横向为 14%.

振动样品磁强计测量结果表明, Cu 夹层三明治膜的制备态不具有好的软磁特性,尽管如此,采用三明治结构仍可得到较大的 GMI 效应,这显示了三明治结构的优越性.溅态 Cu 夹层三明治膜在 13 MHz 下的 GMI 测量结果如图 3(a) 所示.最大 GMI 比纵向为 32%, 横向为 11%. 样品在

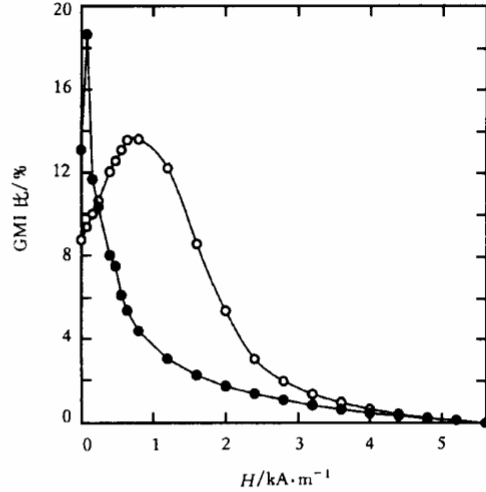


图 2 经 380 °C 退火,膜的 GMI 比随外加磁场的变化曲线  $f = 13 \text{ MHz}$ ,  $\bullet$ 为 LMI,  $\circ$ 为 TMI

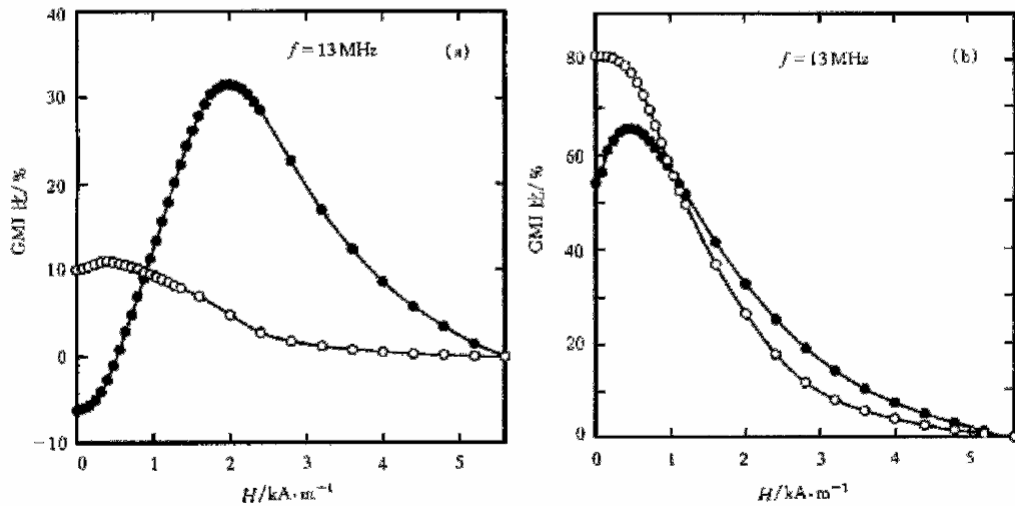


图 3 Cu 夹层三明治膜的 GMI 比随外加磁场的变化曲线 (a)为溅态, (b)为 250 °C 退火态.  $\bullet$ 为 LMI,  $\circ$ 为 TMI

250 °C 退火 1 h 后, GMI 效应得到了明显提高,结果如图 3(b) 所示.最大 GMI 比纵向为 67%, 横向为 80%.退火后纵向的峰值位置明显移向低场,表明退火显著减小了应力感生各向异性.

Antonov 等<sup>[8]</sup>分析表明,在三明治结构膜中,低频时主要是电感项对 GMI 效应起作用.我们的实验结果也证实了这一点.图 4(a), (b), (c), (d)分别为 Cu 夹层 FeCuNbSiB 三明治膜在 250 °C 退火 1 h 后测得的电阻、电感和 GMI 比在不同频率下随外加纵向磁场的变化曲线.可以看出,在 100 kHz,电感项的变化率高达 1733%,而电阻项几乎无变化.随着频率的上升,由于涡流损耗增加,磁导率下降,使电感项的变化迅速减小.随着趋肤效应的出现,电阻项的变化开始增大,至 1 MHz 时,电阻项出现明显的变化.

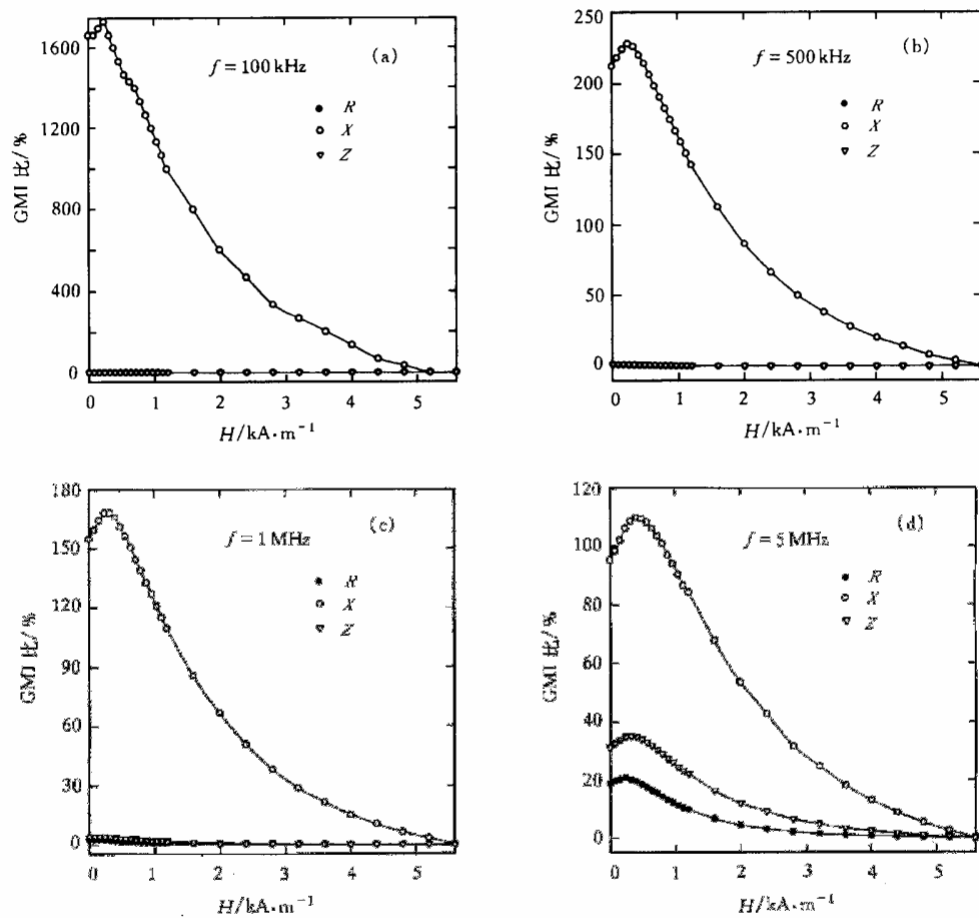


图 4 Cu 夹层三明治膜经 250 °C 退火后在不同频率下电阻、电感和 GMI 比随外加纵向磁场的变化曲线

对于 Ag 夹层三明治膜,在 Ag 层与磁性层之间插入  $\text{SiO}_2$  隔离层,以增加膜的附着力,并减小磁性层的高频涡流损耗.图 5(a)给出制备态膜在 13 MHz 下的 GMI 比随磁场的变化关系.从图 5 可以看出,GMI 比在低场有一个不灵敏区,随磁场增加,纵向 GMI 比增加到最大值 47%,然后下降;横向 GMI 比单调下降,其最大值为 57%,明显比制备态的 Cu 夹层三明治膜大.250 °C 退火态的 GMI 比在 13 MHz 下随磁场的变化关系如图 5(b)所示,退火消除了低场下的不灵敏区,最大 GMI 比纵向为 48%,横向为 63%.

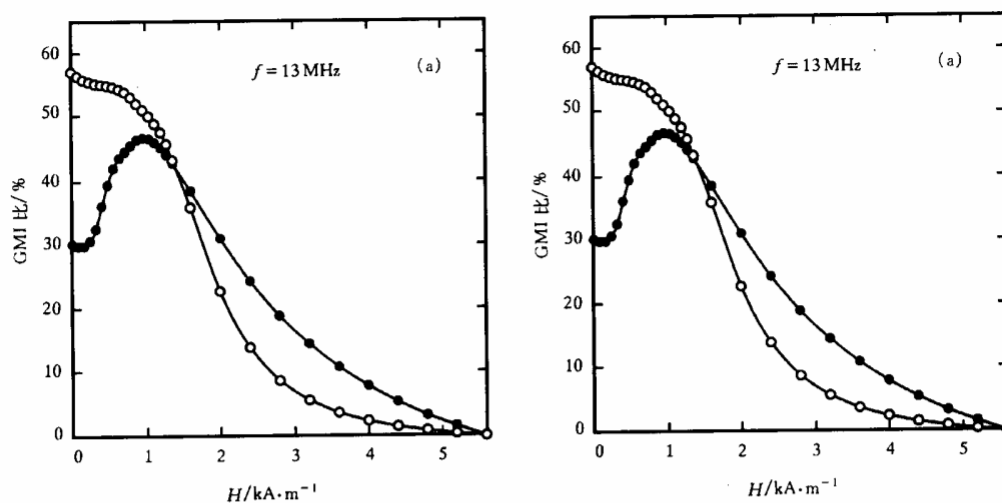


图5 Ag夹层三明治膜的GMI比随外加磁场的变化曲线 (a)为溅态,(b)为250℃退火态。●为LMI,○为TMI

#### 4 结 论

本文研究了  $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$  单层膜和 Cu, Ag 夹层三明治膜的磁特性和 GMI 效应。单层膜在 380℃ 退火, 形成纳米晶结构, 使材料具有最佳软磁特性, 并得到了最大的 GMI 效应, 在 13 MHz 时, 最大 GMI 比纵向为 18%, 横向为 14%。这比文献中报道的同样成分的薄膜 GMI 效应大, 而且使用频率低。三明治膜在制备态不具备好的软磁特性但仍可获得明显的 GMI 效应, 显示了多层结构的优越性。制备态具有较大的 GMI 效应, 这为应用带来了很大方便。Cu 夹层  $\text{Fe}_{73.5}\text{Cu}_1\text{Nb}_3\text{Si}_{13.5}\text{B}_9$  三明治膜经 250℃ 退火后在低频下表现为巨磁电感效应, 在 100 kHz 时电感变化率高达 1733%。

- [1] K. Mohri, T. Kohzawa, K. Kawashima *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **28**(1992), 3150.
- [2] K. Mohri, K. Kawashima, T. Kohzawa *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **29**(1993), 1245.
- [3] L. V. Panina, K. Mohri, T. Uchiyama *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **31**(1995), 1249.
- [4] F. L. A. Machado, C. S. Martins, S. M. Rezende, *Phys. Rev.*, **B51**(1995), 3926.
- [5] R. L. Sommer, C. L. Chien, *Appl. Phys. Lett.*, **67**(1995), 3346.
- [6] T. Morikawa, Y. Nishibe, H. Yamadera *et al.*, *IEEE Trans. Magn.*, **33**(1997), 4367.
- [7] 刘宜华等, 科学通报, **42**(1997), 1062 [Liu Yi-hua *et al.*, *Chinese Science Bulletin*, **42**(1997), 1062(in Chinese)].
- [8] A. Antonov, S. Gadetsky, A. Granovsky *et al.*, *Physica*, **A241**(1997), 414.
- [9] 李 民, 郭慧群, 栾开政等, 金属功能材料, (1995)(4-5), 154 [Li Min, Guo Hui-qun, Luan Kai-zheng *et al.*, *Metallic Functional Materials*, (1995)(4-5), 154(in Chinese)].
- [10] R. Schäfer, *J. Magn. Magn. Mater.*, **148**(1995), 226.

## MAGNETIC PROPERTIES AND GIANT MAGNETO-IMPEDANCE EFFECTS OF FeCuNbSiB SINGLE LAYERED AND SANDWICHED FILMS\*

XIAO SHU-QIN LIU YI-HUA YAN SHI-SHEN DAI YOU-YONG ZHANG LIN MEI LIANG-MO

(Department of Physics, Shandong University, Jinan 250100)

(Received 10 June 1999; revised manuscript received 17 July 1999)

### ABSTRACT

Magnetic properties and giant magneto-impedance (GMI) effects of Fe<sub>73.5</sub>Cu<sub>1</sub>Nb<sub>3</sub>Si<sub>13.5</sub>B<sub>9</sub> single layered films and sandwiched films using Cu or Ag as the central layer prepared by radio frequency sputtering are investigated. The as-deposited single layered films are in amorphous state. The domain structures of single layered films annealed at 380°C show that the films are in nanocrystalline state with homogeneous magnetization. The samples possess excellent soft magnetic properties and have the maximum values of GMI effects, the maximum GMI ratios are 18% and 14% in longitudinal and transverse fields, respectively, at 13 MHz. Sandwiched films in the as-deposited state possess large GMI effects, the maximum GMI ratios of sandwiched films with a Cu central layer are 32% and 11% for longitudinal and transverse cases, respectively, and those of sandwiched films with a Ag central layer are 47% and 57% for longitudinal and transverse cases, respectively. Sandwiched films using Cu as the inner layer annealed at 250°C exhibit large magneto-inductance effect at low frequencies. The maximum magneto-inductance ratio is 1733% at 100 kHz.

PACC: 7550K; 7570; 7220M

---

\* Project supported by the National Natural Sciences Foundation of China (Grant No. 59671022) and the Doctoral Program Foundation of Institution of Higher Education of China (Grant No. 9704225).