

# TbDyFe 薄膜对三明治膜巨磁阻抗效应的影响<sup>\*</sup>

邵明辉 陈庆永 郑 鹤<sup>†</sup>

(首都师范大学物理系 北京 100037)

(2005 年 5 月 20 日收到 2005 年 6 月 16 日收到修改稿)

将 600℃退火后的超磁致伸缩材料  $(\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73})_{0.3}\text{Fe}_{0.7}$  薄膜作为  $\text{Ni}_{80.2}\text{Fe}_{14.1}\text{Si}_{0.2}\text{Mn}_{0.4}\text{Mo}_{5.1}$  三明治膜的基底,制备出四层膜.结果表明,附加的磁致伸缩并没有减小材料的巨磁阻抗(GMI)效应,而由于磁场下磁致伸缩材料的应力效应影响了三明治膜中的各向异性场,使三明治膜的 GMI 效应增大了 4 倍.再将制备态的四层膜在 280℃下真空退火,退火态四层膜也增大了三明治膜的 GMI 效应,但可能由于磁致伸缩向磁性层中的扩散,其 GMI 效应相对于制备态四层膜则有所降低.

关键词:巨磁阻抗(GMI)效应,三明治膜,TbDyFe 薄膜,各向异性场

PACC: 7220M, 7570, 7580

## 1. 引 言

利用巨磁阻抗(GMI)效应做成的元件具有灵敏度高、响应快、无磁滞、稳定性好等优点,使 GMI 效应获得了广泛的关注和研究,其交流驱动的特点为实现调制、解调、滤波、振荡和共振等提供了便利<sup>[1]</sup>. GMI 效应的研究,从最初的零和负磁致伸缩系数的  $\text{Co}$  基合金细丝,扩大到非晶软磁合金薄带和薄膜中,并进而扩展到 Fe 基纳米晶软磁合金薄带和薄膜中<sup>[2-4]</sup>.用软磁合金材料完全包围 Cu, Ag 等中间层的层状三明治膜结构不同程度的提高了单一软磁合金材料的 GMI 效应.通常,三明治结构磁性层中的各向异性场的大小和方向对三明治结构的巨磁阻抗效应起着关键性的作用.各向异性场很小,不出现峰值,曲线单调下降;而各向异性场很大时,曲线十分平坦,没有 GMI 效应.通过应力退火或外磁场退火均可感生材料中的各向异性场,并能得到更好的 GMI 效应,使阻抗与外场的关系曲线形状等发生很大的变化<sup>[5,6]</sup>.本实验在三明治膜基础上增加附加层,利用附加层在外磁场作用下的磁致伸缩效应来影响材料的各向异性场.通过制备 TbDyFe 薄膜样品,对样品进行适当的真空热处理,然后以退火后的

TbDyFe 薄膜作为附加层,将其作为基底蒸镀三明治膜,制备出 TbDyFe/NiFeSiMnMo/Cu/NiFeSiMnMo 四层膜,研究了制备态四层膜和退火态四层膜的 GMI 效应,并与三层膜进行了比较.

## 2. 实验方法

样品是用真空蒸镀法制备的,靶材分别为  $(\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73})_{0.3}\text{Fe}_{0.7}$ ,  $\text{Ni}_{80.2}\text{Fe}_{14.1}\text{Si}_{0.2}\text{Mn}_{0.4}\text{Mo}_{5.1}$  (原子分数,单位为%)和 Cu.本底真空为  $5 \times 10^{-4}$  Pa.蒸镀时,当压应力在 20—10Pa 之间轰击以清洁靶面.先在 Si 片上蒸镀 TbDyFe,厚 600nm,长 24mm,宽 7mm,将 TbDyFe 单层膜在真空系统( $1.7 \times 10^{-4}$  Pa)中 600℃进行退火处理.以退火处理后的 TbDyFe 单层膜作为基底,蒸镀三明治膜,三明治膜中心为厚  $1\mu\text{m}$ ,宽 0.3mm,长 15mm 的 Cu 层,两端分别接电极,在 Cu 层上下两面为 NiFeSiMnMo 两磁性层,其厚为  $1\mu\text{m}$ ,宽为 3mm,长为 10mm.

制备态的四层膜样品又在真空系统( $1.7 \times 10^{-4}$  Pa)中进行磁场退火处理,温度为 280℃,制成退火态的样品.样品的磁特性用振动样品磁强计(VSM)测量,微结构用 X 射线衍射观察,阻抗特性是在室温下用 HP4192A 阻抗分析仪测量,阻抗测量频率范

<sup>\*</sup> 北京市教委科学技术发展基金资助的课题.

<sup>†</sup> 通讯联系人. E-mail: zw-phy@mail.cnu.edu.cn

围为 100kHz 到 13MHz, 交流电流幅值保持恒定为 10mA, 直流磁场变化范围是 0—6kA/m. GMI 比定义为  $\Delta Z_H/Z_{\max} = (Z_H - Z_{\max})/Z_{\max} \times 100\%$ .  $Z_H$  和  $Z_{\max}$  分别表示磁场为  $H$  和 6kA/m 时样品的阻抗.

### 3. 实验结果与讨论

#### 3.1. TbDyFe 薄膜的晶化

室温下, 稀土过渡族元素化合物, 特别是  $RE-Fe_2$  ( $RE$  或  $R$  代表稀土元素) 立方 Laves 相能够产生大的磁致伸缩效应. 由图 1 可以看出, 制备态 TbDyFe 单层膜为非晶态. Loveless<sup>[7]</sup> 研究认为,  $RFe_2$  相形成的最佳温度是 575—600°C. TbDyFe 单层膜经过 600°C 退火后, 有部分晶化现象. 由图 2 的 X 射线衍射观察, 薄膜样品中可观察到明显的  $RFe_2$  Laves 相衍射峰, 同时也看到了薄膜中一些氧化物  $R_2O_3$  及其他  $RFe_3$  和  $R_6Fe_{23}$  相的存在. 这是由于实验过程中稀土元素的易氧化性造成退火过程中的氧化. 由于合金中相对高比例的稀土元素, 并没有看到  $\alpha-Fe$  相. 但整体来说能够有大磁致伸缩性能的 Laves 相占大多数, 说明 600°C 退火后的 TbDyFe 单层膜具有较好的磁致伸缩性能.

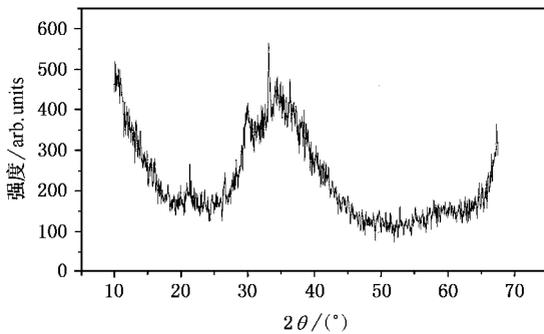


图 1 制备态 TbDyFe 薄膜 XRD 谱

图 3 为 600°C 真空退火 1h 后的 TbDyFe 单层膜的磁滞回线, 由图 3 可以看出, 纳米晶薄膜的易轴方面位于薄膜面内, 并且具有较大的饱和磁场, 达到 1000kA/m. TbDyFe 薄膜在蒸镀过程中非晶的生长方式形成了形状各向异性的微结构, 使得制备态 TbDyFe 薄膜的易磁化方向垂直于膜面, 即形成了垂直于膜面的单轴各向异性. 退火后晶化形成了各种磁晶各向异性, 易轴则由垂直膜面方向转向面内, 面内的饱和磁化强度和磁化率也明显增大. 在退火过程中, 由于薄膜的热膨胀系数大于硅基片的热膨

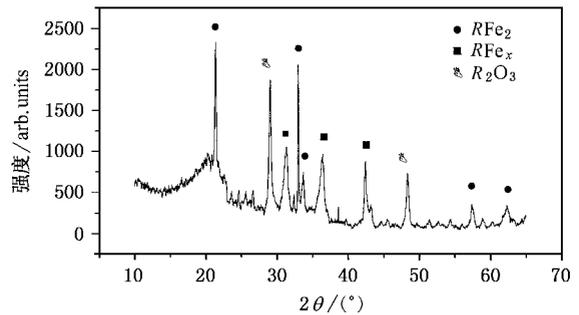


图 2 退火态 TbDyFe 薄膜的 XRD 谱 ( $R$  为稀土元素)

胀系数, 薄膜在冷却时产生较大的张应力, 使易磁化轴向平行膜面方向偏转, 提高了平行于膜面的磁导率, 从而显著增大了低磁场下的磁致伸缩系数变化率, 提高了薄膜低场下的磁致伸缩性质. 虽然饱和磁场很大, 但是在低磁场下平行于膜面的起始磁化率是很大的, 较大的起始磁化率使薄膜在低场下磁化时产生较大的磁化强度, 而引起明显的磁致伸缩. 所以在很低的磁场下, TbDyFe 薄膜就有较大的磁致伸缩性能, 产生较大的张应力, 这对三明治膜的 GMI 效应是有利的. 退火过程中晶粒尺寸的显著增大, 以及薄膜内的磁晶各向异性, 导致了饱和磁化强度和矫顽力急剧增加. 此结果与其他文献报道是相吻合的<sup>[8-10]</sup>.

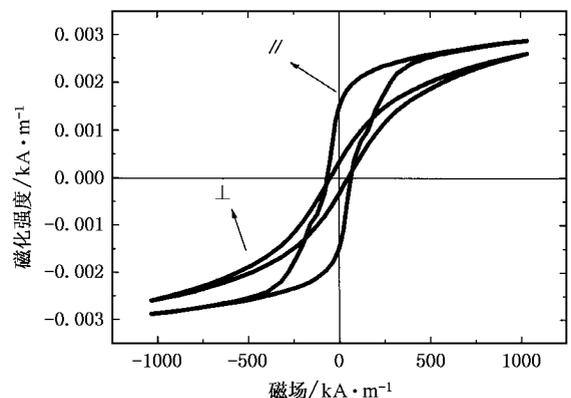


图 3 退火后 TbDyFe 薄膜面内和垂直膜面的磁滞回线

#### 3.2. 四层膜的巨磁阻抗效应

##### 3.2.1. 制备态四层膜的巨磁阻抗效应

利用 HP4192A 阻抗分析仪在 8MHz 下测量样品的阻抗. 我们将制备的四层膜与相同条件下制备的三层膜比较, 发现四层膜明显增大了材料的 GMI 效应.

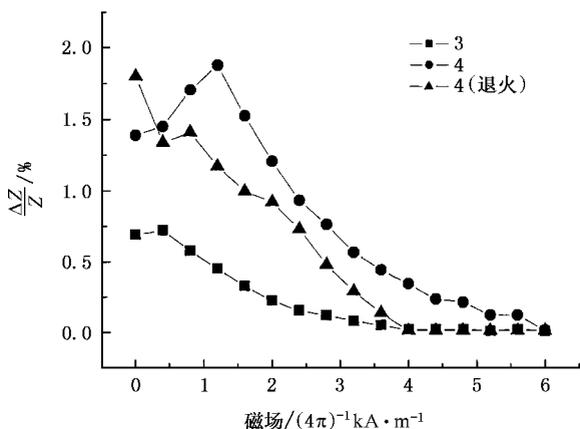


图4 GMI比率随纵向外磁场的变化曲线

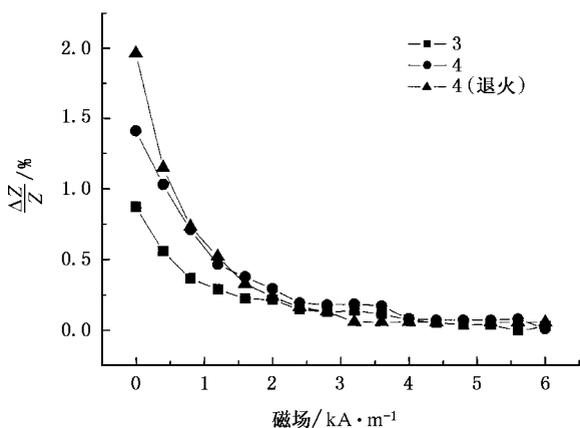


图5 GMI比率随横向外磁场的变化曲线

图4和图5给出了三组样品在纵向外加磁场和横向外加磁场下的GMI比率.制备态三层膜样品出现了微弱的GMI效应,这是由于三层膜在制备过程中形成了形状各向异性和应力各向异性.当外磁场 $H$ 与各向异性场 $H_k$ 相等时,磁导率达到最大,我们看到一个具有峰值的磁阻抗变化曲线.继续增大 $H$ 样品内的磁矩方向逐渐转向长轴方向,此时磁导率减小,导致 $Z$ 值减小,阻抗变化减小,并最终达到饱和.磁阻抗变化曲线上的峰值对应着材料中的各向异性场,从图中可以看出,此时材料中的平均等效各向异性场为 $0.4\text{kA/m}$ .与三层膜相比,四层膜则具有较明显的GMI效应.当施加纵向外磁场时,TbDyFe层受到外磁场的作用将发生应变效应,在外磁场方向产生形变.由于TbDyFe本身是一种正磁致伸缩材料,TbDyFe层将会沿外磁场方向产生一个拉(张)应力,此应力又会作用在磁性层上.根据压磁效应的原理,对于有正磁致伸缩系数的超坡莫合金来

说,应力作用在磁性层上,层内引起应变,应力方向的磁导率增大,垂直应力方向磁导率减小.应力方向磁导率的增大意味着在磁性层内外磁场方向由应力感生一个纵向磁场,从而增大了磁性层内的等效纵向磁场.增大的纵向磁场使磁性层中的磁矩更难向横向转动,从而减小了磁性层的横向等效各向异性场.良好的横向各向异性场使得四层膜的GMI比率有较明显的增大,四层膜GMI峰值是三层膜GMI峰值4倍.而此时四层膜材料中的横向各向异性则由于TbDyFe层内的磁晶各向异性而变大,根据GMI比率峰值对应的外磁场即为材料中的各向异性场,由图可知,此时四层膜的各向异性等效场为 $1.6\text{kA/m}$ .

对于三明治模型,其阻抗可以表示为

$$\begin{aligned} Z'_{\text{总}} &= R_e + i\omega L'_c + Z_i \\ &= \frac{2\pi\mu''\omega l a_1}{c^2} / b + \frac{i2\pi\mu'\omega l a_1}{c^2} / b \\ &\quad + \frac{kl}{2b\sigma} \frac{e^{ka/2} + e^{-ka/2}}{e^{ka/2} - e^{-ka/2}}, \end{aligned}$$

其中为复数磁导率 $\mu = \mu' - i\mu'' = 1 + 4\pi k = 1 + 4\pi \frac{\hat{L}\beta' + \alpha'}{\beta\beta' + \alpha'\alpha'}$ ,  $\hat{L} = \frac{\lambda}{\gamma M_s}$ ,  $i\beta = \frac{i\omega}{\gamma M_s} + \frac{\lambda H_z}{\gamma M_s^2}$ ,  $i\beta' = \beta + 4\pi \hat{L}$ ,  $\alpha = \frac{H_z}{M_s}$ ,  $\hat{F} = \frac{2A}{M_s^2} \left( \nabla^2 - \frac{1}{r^2} \right)$ ,  $\alpha' = \alpha + 4\pi$ ,其中 $M'$ 为复数磁导率, $\sigma$ 为Cu的电导率, $\omega$ 为圆频率, $c$ 为光速, $a_1$ 为磁性层厚度, $a_0$ 为Cu层厚度, $a$ 为导电层宽度, $b$ 为磁性层宽度, $l$ 为三明治膜长度, $H_z$ 为轴向外加磁场.前两项为材料中磁性层的电阻项和电感项,最后一项为Cu层的阻抗.从表达式中可以看出,Cu芯对 $R$ 的影响要远小于磁性层的影响,所以通常可以忽略Cu芯对 $R$ 的影响,而只考虑磁性层的作用.考虑磁性层中的各向异性场,随着各向异性场的增加,GMI比率峰值不断减小,峰值对应的外场不断减小,而各向异性场减小时,GMI比率将增大<sup>[5]</sup>.这与实验是符合的.

将材料中的各向异性场简化,令 $H_k = H_{k0} - \alpha H$ ,其中 $H_{k0}$ 为不加外场 $H$ 时的 $H_k$ , $\alpha$ 为系数.显而易见,当 $\alpha$ 大于零时,GMI效应增强;而当 $\alpha$ 小于零时,GMI效应减弱.我们在三明治膜上增加一层磁致伸缩层,特别是对于磁致伸缩系数较大的TbDyFe薄膜,由于外磁场的变化会使TbDyFe薄膜在超坡莫合金磁性层里产生一个随磁场变化的应力,从而使 $\alpha$ 大于零,减小了磁性层中的各向异性场,增强了GMI

效应.如果磁性层本身有磁致伸缩, $\alpha$ 则小于零,增大了各向异性场,GMI效应就总会被减弱<sup>[6]</sup>.

### 3.2.2. 退火态四层膜的巨磁阻抗效应

280℃磁场退火处理后的四层膜的GMI效应则有所下降.随着磁场的增大,材料的阻抗一直变小,没有出现峰值.我们分析这是因为在高温退火过程中,TbDyFe层中的稀土元素向超坡莫合金层中扩散,在磁性层中形成了磁致伸缩相,磁性层中任何的磁致伸缩都会使磁性层中的各向异性场增大,从而减小巨磁阻抗效应.这与文献[5,6]中提出的理论也是相吻合的.三明治膜和磁场退火后的四层膜在4kA/m到饱和,制备态四层膜在6kA/m下才达到饱和.样品的纵向巨磁阻抗比较则显示四层膜的磁阻

抗率比三层膜大,退火四层膜的磁阻抗率最大.这是由于退火后的四层膜软磁性能更好,提高了纵向GMI比率.并且随着磁场的增大,三组样品的磁阻抗逐渐减小,均在4kA/m达到饱和.

## 4. 结 论

在退火处理的TbDyFe薄膜上制备了NiFeSiMnMo/Cu/NiFeSiMnMo多层膜.样品又在280℃磁场退火1h,通过三层膜与四层膜的GMI效应对比,发现超磁致伸缩材料TbDyFe在磁场作用下的应力影响三明治膜中的各向异性场,使磁性层中的各向异性场减小,横向GMI效应相对于三层膜增大4倍.

- [1] Mohri K, Kohzawa T, Kawashima K *et al* 1992 *IEEE Trans. Magn* **28** 3150
- [2] Panina L V, Mohri K 1994 *Appl. Phys. Lett.* **65** 1189
- [3] Dai Y Y, Liu Y H, Xiao S Q *et al* 2000 *J. Phys. : Condens. Matter* **12** 10591
- [4] Xiao S Q, Liu Y H, Dai Y Y *et al* 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 4127
- [5] Liu J T, Zhou Y S, Wang A L *et al* 2003 *Acta Phys. Sin.* **52** 2859 (in Chinese) 刘江涛、周云松、王艾铃等 2003 物理学报 **52** 2859
- [6] Wang A L, Liu J T, Zhou Y S *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 905

(in Chinese) [王艾玲、刘江涛、周云松等 2004 物理学报 **53** 905]

- [7] Loveless M, Guruswamy S, Shiele J E 1997 *IEEE Trans. Mag.* **33** 3937
- [8] Ried K, Schnell M, Schatz F *et al* 1998 *Phys. Stat. Sol. A* **167** 195
- [9] Shatz F, Hirscher M, Schnell M 1994 *J. Appl Phys.* **76** 5380
- [10] Xie H T, Liu X C, Si Y M *et al* 2001 *Mater. Sci. Eng.* **19** 38 (in Chinese) 谢海涛、刘希从、斯永敏等 2001 材料科学与工程 **19** 38]

# Influence of TbDyFe film on giant magnetoimpedance in sandwiched films

Shao Ming-Hui Chen Qing-Yong Zheng Wu<sup>†</sup>

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

( Received 20 May 2005 ; revised manuscript received 16 June 2005 )

## Abstract

The  $\text{Ni}_{80.2}\text{Fe}_{14.1}\text{Si}_{0.2}\text{Mn}_{0.4}\text{Mo}_{5.1}$  sandwiched films are prepared on the magnetostrictive  $(\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73})_{0.3}\text{Fe}_{0.7}$  film substrate. Due to magnetostrictive stress effect on magnetic anisotropy which is believed to be critical for the giant magneto-impedance (GMI) effect, the GMI ratio is seen to increase sharply in the magnetic fields. The GMI effect also increases when the samples are annealed at 280°C. But the GMI ratio is still less than that of the as-deposited films.

**Keywords** : giant magnetoimpedance (GMI) effect , sandwiched films , TbDyFe film , magnetic anisotropy

**PACC** : 7220M , 7570 , 7580

\* Project supported by the Development Foundation of Beijing Education Commission.

<sup>†</sup> Corresponding author. E-mail zw-phy@mail.cnu.edu.cn