

淬态非晶 FeNiCrSiB/Cu/FeNiCrSiB 三明治薄带的巨磁阻抗特性

邵先亦, 陈卫平, 钟彬荃, 谢佳文

(台州学院, 浙江 台州 318000)

摘要: 研究了淬态非晶 FeNiCrSiB/Cu/FeNiCrSiB 三明治薄带样品的巨磁阻抗 (GMI) 特性。该三明治薄带具有十分显著的 GMI 效应, 在 0.5 MHz 频率下其纵横向 GMI 比分别达到 282% 和 408%。磁畴结构观察表明, 三明治薄带由于横向磁路闭合, 使得沿带轴方向主导的 180° 条形畴向横向产生约 10° 偏转。分析了三明治薄带磁电阻、磁感抗、有效磁导率的变化与 GMI 效应的关系, 发现在 40 Hz~10 MHz 测试频率范围内, 样品的磁感抗部分对 GMI 效应起主导作用, 这缘于三明治结构降低了损耗, 显著提高了材料有效磁导率、增强了磁电感效应, 受控于三明治薄带有效磁导率变化的磁电感效应是其 GMI 效应的主要特征。

关键词: 三明治薄带; 巨磁阻抗效应; 磁畴结构; 磁感抗; 有效磁导率

中图分类号: TG139+.8

文献标识码: A

文章编号: 1002-185X(2018)04-1160-06

巨磁阻抗 (GMI) 效应是指材料的交流阻抗随外加直流磁场变化而发生灵敏变化的特性。由于该效应在高性能磁传感器和高密度磁记录头等领域具有广阔的应用前景, 一直备受各国学者关注^[1-3]。优异的软磁性能是获得显著 GMI 效应的前提, 人们在 Co 基、Fe 基软磁丝、薄带、薄膜中都观察到了显著的 GMI 效应。FeNi 基坡莫合金软磁性能优良, 具备获得显著 GMI 效应的前提条件, 但是单一形态的 FeNi 基非晶薄带^[4]和薄膜^[5]的 GMI 效应都不太显著。与单一形态材料相比, 复合结构材料 GMI 效应更加显著, 且具有低频特性。较低的驱动电流频率能够达到降低 GMI 器件对外部驱动和检测电路的要求, 这有利于 GMI 磁传感器器件的实际应用, 因此成为近期研究的热点。人们在复合结构丝^[6]、多层膜^[7]、曲折结构薄膜和薄带^[8,9]、退火三明治薄带^[10]上都观察到了非常显著的 GMI 效应, 但有关淬态非晶三明治薄带的 GMI 效应研究鲜见报道。对于淬态 Fe 基非晶软磁薄带, 由于快淬过程中存在较大残余应力, 一般形成纵向磁畴结构, 软磁性能较差^[11], 通常须经适当的退火处理, 以消除内应力, 提高软磁性能, 从而提高 GMI 效应。但是退火处理会造成薄带变脆, 不利于 GMI 器件实际应用。FeNiCrSiB 淬态非晶薄带具有良好的机械韧性和焊接性能, 十分有利于器件的制备和使用。因此研制具有显著 GMI

效应的淬态 FeNiCrSiB/Cu/FeNiCrSiB 三明治薄带, 避免退火造成的脆性问题, 有着极为明显的意义。本实验着重研究了利用 Cu 箔为夹心导电层制备的淬态非晶 FeNiCrSiB/Cu/FeNiCrSiB 三明治薄带样品的 GMI 特性, 以及磁导率、磁电阻、磁感抗的变化对 GMI 效应的影响。

1 实验

三明治复合结构薄带由外部磁性层和夹心导电层构成。外部两磁性层为具有相同的几何尺寸, 长、宽、厚分别为 30 mm、3 mm 和 20 μm 的条状 FeNiCrSiB 淬态非晶薄带, 磁性层薄带通过单辊快淬法制备, 成分为 (FeNi)_{77.5}Cr_{0.5}(SiB)₂₂。夹心导电层为 Cu 箔, 长、宽、厚分别为 35 mm、1 mm 和 18 μm 。Cu 导电层夹于两磁性层中间, 各层沿长轴方向对称叠合, 层间以绝缘胶粘接, 构成 FeNiCrSiB/Cu/FeNiCrSiB 三明治复合结构。样品的磁阻抗特性采用 Agilent 4294A 阻抗分析仪测量。测量时, 通过 Agilent 16048G 标准夹具以四端法连接样品, 测量前进行了引线补偿。驱动电流由 Cu 箔两端点流经样品, 交变电流的幅值恒定为 10 mA, 测试频率范围为 40 Hz~10 MHz。外加直流磁场由一对 Helmholtz 线圈提供, 磁场的变化范围是 -23~23 kA/m, 直流磁场与样品的长方向平行或垂直, 相应的

收稿日期: 2017-04-20

基金项目: 浙江省自然科学基金 (Y4110547); 台州市科技计划项目 (14GY02)

作者简介: 邵先亦, 男, 1970 年生, 硕士, 高级实验师, 台州学院物理与电子工程学院, 浙江 台州 318000, 电话: 0576-88661918, E-mail: sxy8718@163.com

GMI 效应分别被称为纵向 GMI 效应 (LMI) 和横向 GMI 效应 (TMI)。为减少地磁场的影响, Helmholtz 线圈的轴向与地磁场垂直。样品的有效磁导率采用等效阻抗法^[12]测量, 探测线圈产生的交变磁场与样品长边垂直, 驱动电流和外加磁场都与阻抗测量的条件相同。用 X 射线衍射仪 (XRD) 测试样品的微结构。用扫描探针显微镜在磁力 (MFM) 模式下检测了单层薄带和三明治薄带的磁畴结构, 磁力成像探针抬高 300 nm。所有的测量均在室温下进行。

2 结果与讨论

2.1 淬态薄带的微结构

图 1 为淬态 FeNiCrSiB 软磁合金薄带的 X 射线衍射图谱。由图 1 可见, 薄带 X 射线衍射峰呈典型的非晶态漫散峰, 表明淬态 FeNiCrSiB 薄带为非晶结构。

2.2 三明治薄带的 GMI 特性

图 2a、2b 分别给出了单层薄带样品(几何尺寸与三明治薄带的相同)和三明治薄带样品的巨磁阻抗比随驱动电流频率变化曲线。这里磁阻抗 (MI) 比定义为 $\Delta Z/Z_m=(Z_0-Z_m)/Z_m$, 其中 Z_0 和 Z_m 分别表示样品在磁场为 0 和 23 kA/m 时的阻抗。由图 2a 可见, 单层薄带样品在 40 Hz~4 MHz 范围内, 由于趋肤效应随频率的升高而增强, 纵向和横向 MI 比几乎随频率呈线性快速增大, 随着频率的继续增大, 因涡流损耗引起磁导率下降而导致 MI 比增速变缓, 频率增至特征频率 $f_m=7.5$ MHz 时纵向和横向 MI 比都达到最大值, 最大 LMI 和 TMI 分别为 22%和 20%, 纵向 MI 比略高于横向 MI 比。从图 2b 可见, 三明治薄带样品的 GMI 效应十分显著, 在 0.5 MHz 频率下达到最大值, 最大 LMI 比和 TMI 比分别高达 282%和 408%, 横向 MI 比远大于纵向 MI 比。比较图 2a 和 2b, 显而易见三明治薄带

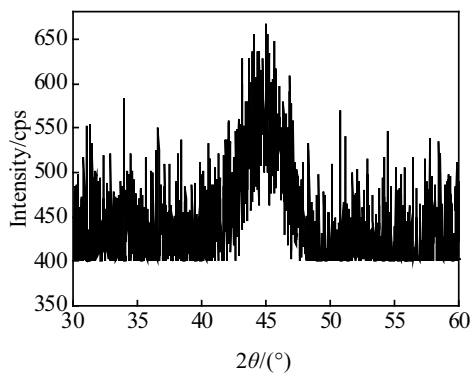


图 1 淬态 FeNiCrSiB 薄带的 X 射线衍射图谱

Fig.1 XRD pattern of the as-quenched FeNiCrSiB ribbon

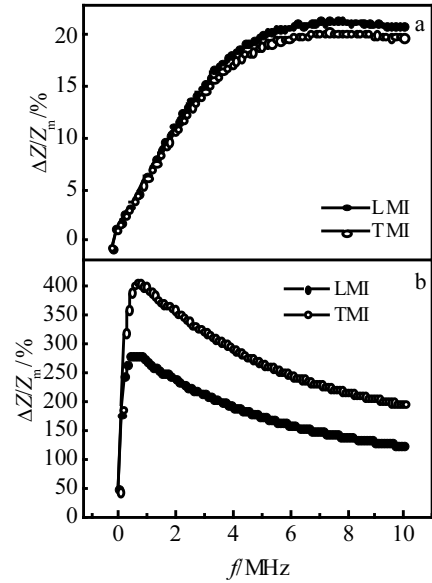


图 2 单层薄带和三明治薄带磁阻抗比随频率变化

Fig.2 Variations of MI ratios with frequency in single layer (a) and sandwiched ribbons (b)

样品具有更优异的 GMI 特性: 三明治薄带样品 GMI 效应远远高于单层薄带的 GMI 效应, 其最大纵向和横向 GMI 效应分别是单层薄带样品的 13 倍和 20 倍, 如此显著的 GMI 效应即使在最佳退火态纳米晶薄带中也不易达到^[13], 相比文献报道的退火态 FeNiCrSiB/Cu/FeNiCrSiB 三明治薄膜^[14], 该三明治薄带不仅制备工艺简单、避免了因退火带来的脆性问题, 而且 GMI 效应更加显著, 特征频率大大降低。淬态 FeNiCrSiB/Cu/FeNiCrSiB 三明治薄带的这一低频 GMI 特性, 能显著降低 GMI 传感器对分析测试仪器的频率要求, 因此有利于实际应用, 也扩大了 FeNiCrSiB 薄带材料的应用范围。

图 3 为三明治薄带样品 LMI 比和 TMI 比随外加磁场变化曲线。这里磁阻抗 (MI) 比定义为 $\Delta Z/Z=(Z_H-Z_m)/Z_m$, 其中 Z_H 和 Z_m 分别表示样品在磁场为 H 和 23 kA/m 时的阻抗。由图 3a 可见在 0.5 MHz 频率下, LMI 曲线呈单峰形态, 3.0 MHz 出现微弱的各向异性峰, 表明 FeNiCrSiB 薄带的畴壁弛豫频率约为 3 MHz, 高于此频率时畴壁位移被涡流阻止, 材料的磁化过程由单一的磁矩转动来实现, 因此 6.0 和 9.0 MHz LMI 随外加磁场变化曲线均呈双峰形态, LMI 曲线所呈现的双峰宽度相同, 对应的各向异性场的大小均为 $H_k \approx 0.4$ kA/m, 没有出现像单层 FeNiCrSiB 薄带中由于各向异性在厚度方向存在空间分布, GMI 各向异性峰因趋肤效应随

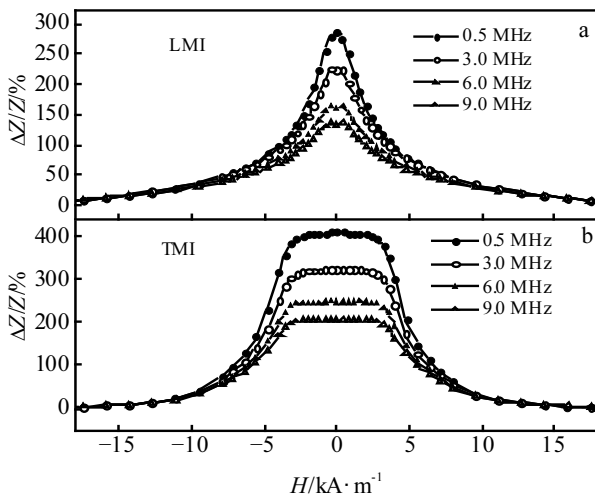


图 3 三明治薄带样品 LMI 比和 TMI 比随外磁场变化

Fig.3 Variations of MI ratios on longitudinal (a) and transverse (b) fields for sandwiched ribbon under different frequencies

频率升高而展宽的现象^[4]。也就是说，三明治薄带中趋肤效应不如单层薄带的显著，在高于一定频率后，三明治薄带磁性层中的趋肤效应不再随频率升高而增强。这是因为三明治结构将导电层和磁性层分开，磁性层中只有交变磁通经过，外部磁性层中只存在交变磁通趋肤效应，不存在高频电流趋肤效应现象，因此趋肤效应不显著。图 3b 中 4 个不同频率下的 TMI 曲线均呈展宽峰（钟形峰）形态，不同频率下钟形峰的宽度基本相同，钟形峰的形成与横向退磁场有关^[15]。比较图 3a 和 3b 可见，横向 GMI 效应的饱和场要比纵向 GMI 效应小得多，相同频率下横向 GMI 效应要比纵向的显著。

2.3 三明治薄带的磁畴结构

图 4 为用磁力显微镜(MFM)观察到的 FeNiCrSiB 薄带自由面形貌，单层薄带和三明治薄带边缘的磁畴结构，扫描范围均为 15 μm。由图 4a 可见，薄带自由面团簇物具有明显的取向，即沿带轴呈连珠线分布。图 4b 显示单层薄带磁畴取向为沿带轴方向主导的 180°条形磁畴，磁畴宽度约 1.5 μm，磁畴取向（易轴）与带轴方向的夹角大约为 5°，薄带样品存在各向异性，各向异性是薄带样品 GMI 出现双峰现象的原因。由图 4c 可见，三明治薄带样品边缘磁畴亦为 180°条形畴，易轴与带轴方向的夹角大约为 15°，相比单层薄带，易轴向横向发生了约 10°偏转。这是因为单层薄带样品存在较大的横向退磁场，横向退磁场使得磁畴向纵向倾斜，易轴与带轴的夹角变小；三明治薄带有利于形成横向闭合磁路，削弱了横向退磁场，使得易轴向横向偏转，从而有利于提高横向交流驱动下的有效磁导率和降低横向饱和磁化场，增强 GMI 效应。

2.4 三明治薄带的有效磁导率比

图 5 给出的是单层薄带和三明治薄带有效磁导率比 (PR)随频率变化关系, PR 定义为 $\Delta\mu'/\mu'_m=(\mu'_0-\mu'_m)/\mu'_m$, μ'_0 和 μ'_m 分别表示外磁场为 0 和 23 kA/m 时的有效磁导率, LPR 和 TPR 分别表示直流磁场与样品的长方向平行(纵向)和垂直(横向)时单层薄带的有效磁导率比, LPR-s 和 TPR-s 分别为三明治薄带的纵横向磁导率比。由图可见，单层和三明治薄带 PR 曲线随频率具有相似的变化规律, LPR 略大于 TPR, 曲线几乎重合, 即在频率低于 0.8 MHz 时 PR 随频率升高迅速减小, 之后由于涡流损耗使得 PR 比随频率进一步升高缓慢下降; 三明治薄带形成横向闭合磁路以及向横向偏转的易轴取向提高了材料有效磁导率, 因此三明治薄带纵横向 PR 都比单层的大。又由于横向外磁场易于使三明治薄带磁化达到饱和, 因此相同频率下 TPR-s 都远大于 LPR-s, 而大的磁导率比可以获得大的 GMI 效应 (见图 2)。

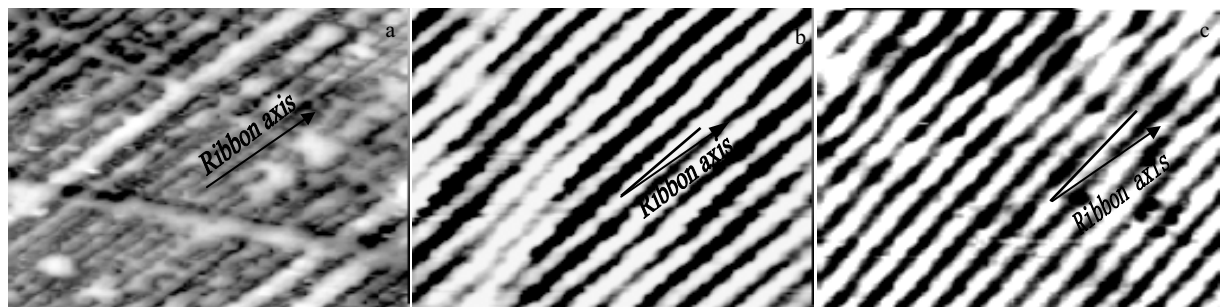


图 4 薄带自由面形貌、单层薄带和三明治薄带的磁畴结构

Fig.4 Image of the free surface (a) and magnetic domains of single layer ribbon (b) and sandwiched ribbon (c)

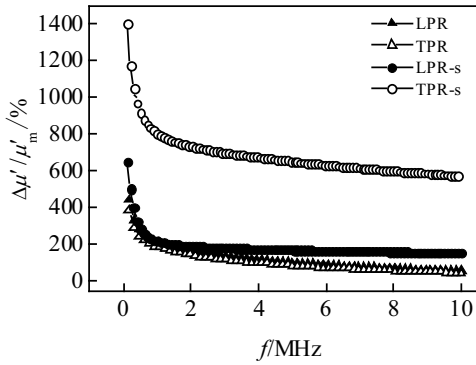


图 5 单层薄带和三明治薄带有效磁导率比随频率变化曲线
Fig.5 Variations of permeability ratios with frequency in single layer and sandwiched ribbons

2.5 三明治薄带的磁电感应

由复阻抗表达式 $Z = R + jX$ 可知磁阻抗的变化与磁电阻和磁电抗的变化密切相关。图 6 给出了三明治薄带的横向电阻 R 、感抗 X 、阻抗 Z 值以及电阻比 $\Delta R/R_m$ 、磁感抗比 $\Delta X/X_m$ 随频率的变化关系 (纵向情形类似未给出)。图中 R_0 、 X_0 、 Z_0 和 R_m 、 X_m 、 Z_m 分别表示零磁场和最大磁场 $H=23 \text{ kA/m}$ 下的电阻、感抗和阻抗。由图 6a 可见, R_0 几乎随频率呈线性增大, X_0 随频率升高而增大, 这是电感性的特征, X_0 远大于 R_0 , 零场下阻抗主要来自于感抗。按照能量转化观点^[16], 等效电阻 R 对应于能量损耗, 三明治这一特殊结构, 一方面

由于中间高电导率 Cu 层降低了电流损耗, 另一方面, 外部磁性层中高频激励下涡流效应不很显著 (见图 3a 结果), 涡流损耗较小, 因此材料的等效电阻小; 等效电感则对应于磁储能, 感抗 $X = \frac{2\pi\mu'\omega}{c^2} \cdot \frac{la}{b}$, 其中 ω 为角频率, μ' 为磁性层有效磁导率, c 为光速, l 、 b 和 a 分别为磁性层的长度、宽度和厚度, 可见三明治薄带 $X \propto \omega\mu'$, 而单层薄带磁阻抗由趋肤效应引起, $Z \propto (\omega\mu')^{1/2}$ ^[11], 因此三明治薄带感抗随频率和有效磁导率变化更敏感。又因为三明治结构显著提高了材料的有效磁导率, 因此磁感抗 X 随频率升高显著增大。在 $H=23 \text{ kA/m}$ 磁场下, R_m 随频率变化不明显, 各频率下的电阻值与直流电阻值相近, 这是因为在 $H=23 \text{ kA/m}$ 磁场下, 磁化已趋饱和, 磁损耗很小, 所测得的 R_m 主要为夹心 Cu 层电阻, 因此 R_m 与直流电阻相接近。由于磁化趋于饱和, 有效磁导率很小且近乎于常数, 而 $X \propto \omega\mu'$, 因此 X_m 随频率呈线性递增, 又因夹心层直流电阻很小, 故 X_m 曲线与 Z_m 曲线重合。可见在 40 Hz~10 MHz 频率范围内, 三明治薄带样品的阻抗主要来自于感抗。

图 6b 给出的是三明治薄带样品的横向磁电阻比 $\Delta R/R_m = (R_0 - R_m)/R_m$ 、磁感抗比 $\Delta X/X_m = (X_0 - X_m)/X_m$ 随频率的变化关系。由图 6b 可见, $\Delta R/R_m$ 随频率先增大而后减小, 约于 5 MHz 处达最大值为 1350%。 $\Delta X/X_m$ 随频率升高而下降, 其值从 40 Hz 时的 960% 迅速下降至 0.8 MHz 时的 400%, 之后随频率升高进一步而下降, 相比图 5 可以发现, 三明治薄带磁感抗比与磁导率比随频率变化曲线具有近乎相同的变化规律。由 $X \propto \omega\mu'$ 可得, 在相同频率下 $\Delta X/X_m \propto \Delta\mu'/\mu'_m$, 因此磁感抗比的变化是三明治薄带横向有效磁导率比变化的表现。

由复阻抗表达式及阻抗比定义可知, GMI 效应不仅与磁电阻、磁电抗效应有关, 而且与不同磁场不同频率下的磁电阻和磁电抗值有关。根据 $|Z| = \sqrt{R^2 + X^2}$

及阻抗比定义 $\Delta Z/Z_m = (Z_0 - Z_m)/Z_m$, 经过简单的数学变换可得:

$$\frac{\Delta Z}{Z_m} = \frac{R_m(R_0 + R_m)}{Z_m(Z_0 + Z_m)} \cdot \frac{\Delta R}{R_m} + \frac{X_m(X_0 + X_m)}{Z_m(Z_0 + Z_m)} \cdot \frac{\Delta X}{X_m}$$

为了表达方便, 令: $\alpha = \frac{R_m(R_0 + R_m)}{Z_m(Z_0 + Z_m)}$,

$\beta = \frac{X_m(X_0 + X_m)}{Z_m(Z_0 + Z_m)}$, α , β 为随频率变化的量, 反映的

是不同频率下阻抗中电阻、电抗所占比重。图 7 为根据上式和图 6 实验数据得到的结果, 图中 $\Delta Z/Z_m = \alpha(\Delta R/R_m) + \beta(\Delta X/X_m)$ 。

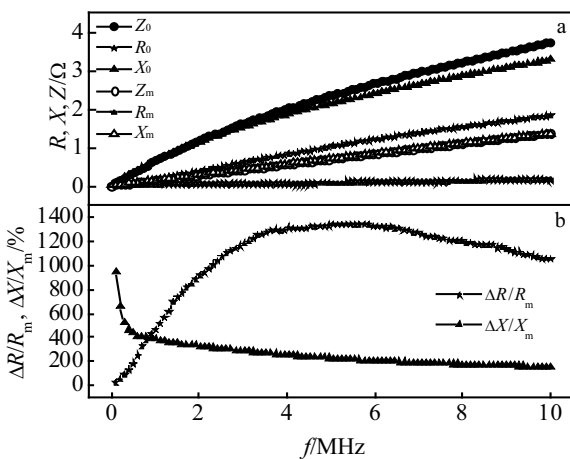


图 6 三明治薄带横向电阻 R 、感抗 X 和阻抗 Z 以及电阻比 $\Delta R/R_m$ 、感抗比 $\Delta X/X_m$ 随频率变化

Fig.6 Variations of R , X , Z (a) and $\Delta R/R_m$, $\Delta X/X_m$ (b) with frequency on transverse field for sandwiched ribbon

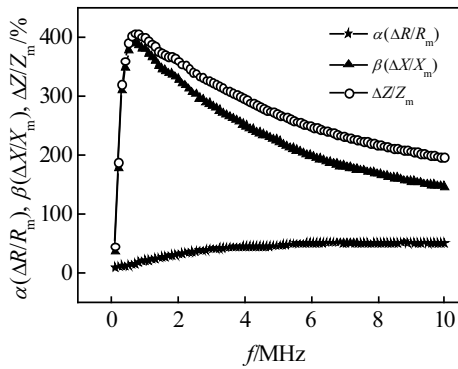


图 7 三明治薄带 $\alpha(\Delta R/R_m)$ 、 $\beta(\Delta X/X_m)$ 、 $\Delta Z/Z_m$ 与横向 MI 比的关系

Fig.7 Relationship of $\alpha(\Delta R/R_m)$, $\beta(\Delta X/X_m)$, and $\Delta Z/Z_m$ with MI ratios on transverse field for sandwiched ribbon

由图 7 可见, $\alpha(\Delta R/R_m)$ 随频率缓慢增大, $\beta(\Delta X/X_m)$ 曲线则先随频率升高而迅速增大, 在 40 Hz~0.4 MHz 范围内与 $\Delta Z/Z_m$ 曲线完全重合, 在样品 GMI 效应特征频率 0.5 MHz 处达到最大值, 其值高达 395%(此时横向 $\Delta Z/Z_m$ 值为 408%), $\beta(\Delta X/X_m)$ 对 GMI 效应的贡献约为 97%, 表现出三明治薄带低频下(特征频率附近)的磁电感应特性^[17], 之后随频率升高 $\beta(\Delta X/X_m)$ 逐渐下降而与 $\Delta Z/Z_m$ 曲线分离, 但两者变化趋势极为相似。可见, 在所测量的 40 Hz~10 MHz 频率范围内, 三明治薄带的 GMI 效应主要决定于 $\beta(\Delta X/X_m)$, 也就是三明治薄带的感抗部分。

3 结 论

1) 淬态非晶 FeNiCrSiB 三明治薄带具有十分显著的 GMI 效应, 0.5 MHz 为其最佳 GMI 效应频率, 在此频率下其纵横向 GMI 比分别达到 282% 和 408%, 相比同尺寸单层薄带分别提高了 13 倍和 20 倍, 而且 GMI 效应的特征频率大大降低, 这有利于实际应用。

2) 非晶 FeNiCrSiB 薄带表面磁畴取向为沿带轴方向主导的 180° 片形畴, 三明治薄带由于横向磁路闭合, 使得易轴向横向偏转, 这有利于提高横向交流驱动下的有效磁导率, 增强 GMI 效应。

3) 三明治结构有利于降低损耗并显著提高材料有效磁导率, 在 40 Hz~10 MHz 测试频率范围内, 样品的磁感抗对 GMI 效应起主导作用, 三明治薄带样品的磁感抗比与磁导率比密切相关, 受控于样品有效磁导率变

化的磁电感应效应是三明治薄带 GMI 效应的主要特征。

参考文献 References

[1] Panina L V, Mohri K, Bushida K *et al.* *J Appl Phys*[J], 1994, 76(10): 6198

[2] Das T, Mandal S, Banerji P. *ICST*[C]. Kolkata, India: IEEE, 2013: 102

[3] Kurlyandskaya G V, Fernandez E, Safronov A P *et al.* *Appl Phys Lett*[J], 2015,106(19): 193 702

[4] Shao Xianyi(邵先亦), Chen Weiping(陈卫平), Li Zhigang(李志刚) *et al.* *Chinese Journal of Vacuum Science and Technology*(真空科学与技术学报)[J], 2011, 31(6): 743

[5] Xie Zhongwei(谢中维), Guo Wei(郭 薇). *Metallic Functional Materials*(金属功能材料)[J], 1999, 6(4): 177

[6] Mishra A C. *Physica B: Condensed Matter*[J], 2012, 407(6): 923

[7] da Silva R B, Corrêa M A, Silva E F *et al.* *Appl Phys Lett*[J], 2014, 104(10): 102 405

[8] Lodewijk K J, Fernandez E, Garcia-Arribas A *et al.* *J Appl Phys*[J], 2014, 115: 17A323

[9] Chen L, Zhou Y, Lei C *et al.* *Phys Status Solidi A*[J], 2010, 207(2): 448

[10] Alves F, Moutoussamy J, Coillot C *et al.* *Sensors and Actuators A: Physical*[J], 2008, 145-146: 241

[11] Phan M H, Peng H X. *Progress in Materials Science*[J], 2008, 53(2): 323

[12] Ruan Kaizheng(栾开政), Liu Yihua(刘宜华). *Journal of Magnetic Materials and Devices*(磁性材料及器件)[J], 1985, 16(3): 34

[13] Guo H Q, Kronmuller H, Dragon T *et al.* *J Appl Phys*[J], 2001, 89(1): 514

[14] Liu Dezhen(刘德镇), Xiao Shuqin(萧淑琴), Zhou Shaoxiong(周少雄) *et al.* *Acta Metallurgica Sinica*(金属学报)[J], 2000, 36(5): 535

[15] Sommer R L, Chien C L. *Phys Rev B: Condens Matter*[J], 1996, 53(10): R5982

[16] Wang Ailing(王艾玲), Liu Jiangtao(刘江涛), Zhou Yunsong(周云松) *et al.* *Acta Physica Sinica*(物理学报)[J], 2004, 53(3): 905

[17] Hika K, Panina L V, Mohri K. *IEEE Trans Magn*[J], 1996, 32(5): 4594

Giant Magneto-Impedance Properties of Quenched Amorphous FeNiCrSiB/Cu/FeNiCrSiB Sandwiched Ribbon

Shao Xianyi, Chen Weiping, Zhong Binqun, Xie Jiawen

(Taizhou University, Taizhou 318000, China)

Abstract: The giant magneto-impedance (GMI) properties of FeNiCrSiB/Cu/FeNiCrSiB sandwiched ribbon were studied. The results show that the sandwiched ribbon has remarkable GMI effects. The maximum values of the longitudinal and transverse GMI ratios are 282% and 408%, respectively, at the frequency of 0.5 MHz. The orientation of 180° stripe domains tend towards the ribbon axis. Due to the transverse closed magnetic flux loop of sandwiched ribbon, a 10 degrees deflection of stripe domains to the transverse direction is observed. Besides, the relationship of magneto-resistance, magneto-inductance, and effective permeability to GMI were analyzed. It is found that in the frequency range of 40 Hz~10 MHz, the magneto-inductance plays a decisive role. It is attributed to the special sandwiched structure, which reduces energy losses, improves effective permeability significantly and then enhances magneto-inductance effect. The magneto-inductance effect controlled by effective permeability is the principal feature of the GMI.

Key words: FeNiCrSiB sandwiched ribbon; GMI; domain structure; magneto-inductance; effective permeability

Corresponding author: Chen Weiping, Professor, School of Physics and Electronic Engineering, Taizhou University, Taizhou 318000, P. R. China, Tel: 0086-576-88661918, E-mail: chenweip@126.com