

# 磁场退火对 CoFeNiNbSiB 薄带巨磁阻抗的影响 \*

吴厚政 刘宜华 代由勇 张林 萧淑琴

(山东大学物理与微电子学院, 济南 250100)

**摘要** 本文研究了磁场退火对 CoFeNiNbSiB 非晶薄带巨磁阻抗 (GMI) 效应的影响. 样品在不同条件下进行了退火热处理. 结果表明, 在 300 °C 下经横向磁场退火处理后获得了最佳的软磁特性, 从而得到了最大的 GMI 效应. 在 800 kHz 的交变电流频率下, 得到了 236% 的最大磁阻抗比. 在低场下, 材料的磁阻抗磁场灵敏度达到 1152%/mT.

**关键词** 巨磁阻抗效应, 非晶态软磁钴基合金薄带, 趋肤效应

中图法分类号 TG139

文献标识码 A

文章编号 0412-1961(2002)10-1087-04

## INFLUENCES OF MAGNETIC FIELD ANNEALING ON GIANT MAGNETOIMPEDANCE EFFECTS OF CoFeNiNbSiB RIBBONS

WU Houzheng, LIU Yihua, DAI Youyong, ZHANG Lin, XIAO Shuqin

Department of Physics, Shandong University, Jinan 250100

Correspondent: WU Houzheng, Tel: (0531)8377032, Fax: (0531)8377031, E-mail: yhliu@sdu.edu.cn

Supported by National Natural Science Foundation of China (No.59981004)

Manuscript received 2001-12-30, in revised form 2002-04-10

**ABSTRACT** The influences of magnetic field annealing on GMI effects of CoFeNiNbSiB amorphous soft magnetic ribbons were studied. The samples were annealed under different conditions. After the samples were annealed at 300 °C in a transverse magnetic field, the best soft magnetic properties and the maximum GMI effect have obtained. The maximum magnetoimpedance ratio is 236% at a frequency of 800 kHz. The magnetic field sensitivity of the GMI is as large as 1152%/mT at low field.

**KEY WORDS** giant magnetoimpedance effect, Co based amorphous soft magnetic ribbon, skin effect

材料的交流阻抗随外加直流磁场的改变而变化的特性, 称巨磁阻抗 (GMI) 效应. 产生 GMI 效应的主要原因是高频电流的趋肤效应. 1992 年日本名古屋大学毛利佳年雄等人首先在钴基软磁非晶细丝中发现并报导了这一现象<sup>[1]</sup>. 最初对这一效应研究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, 近年来对 GMI 效应的研究已经扩大到非晶和纳米晶软磁合金薄带<sup>[2-4]</sup>和薄膜<sup>[2,5-7]</sup>. 由于 GMI 效应具有灵敏度高, 无磁滞, 响应快和稳定性好等特点, 因而具有很大的应用潜力, 受到国内外研究者的广泛关注. 利用巨磁阻抗效应已经制成许多有价值的磁传感元件<sup>[8]</sup>. CoFeNiNbSiB 是一种成分

复杂的优良软磁材料<sup>[9]</sup>, 用它有可能获得性能优良的 GMI 效应. 本文系统研究了磁场退火热处理对该材料 GMI 效应的影响, 获得了性能优良的结果. 实验表明, 磁场退火热处理是在低磁场范围内获得高灵敏度 GMI 效应的有效手段.

### 1 实验方法

实验所用的 CoFeNiNbSiB 非晶薄带是用单辊快淬法制成的, 厚度约为 25 μm, 成分 (原子分数, %) 为 (Co<sub>0.85</sub>Fe<sub>0.05</sub>Ni<sub>0.075</sub>Nb<sub>0.015</sub>)<sub>0.75</sub>Si<sub>0.1</sub>B<sub>0.15</sub>. 用振动样品磁强计测量材料的磁特性. 样品的饱和磁化强度  $M_s$  与温度  $T$  的关系是在高温炉中测量的. 高温炉保持为 1 Pa 的真空度, 以防样品氧化. 测量磁场为 50 mT, 该磁场足以使样品磁化饱和. 为提高材料的软磁特性, 样品在  $1.5 \times 10^{-3}$  Pa 的真空中, 在 350 °C 的温度下退火 60 min, 再使温度降至 Curie 温度以下加磁场退火. 用 HP4192A 阻抗分析仪测量样品的有效磁导率及阻抗特性. 阻抗测量的频率范围为 1 kHz 到 13 MHz, 交变电流保持为

\* 国家自然科学基金 59981004 和山东省优秀中青年科学家奖励基金资助项目

收到初稿日期: 2001-12-30, 收到修改稿日期: 2002-04-10

作者简介: 吴厚政, 男, 1967 年生, 硕士

10 mA, 电流方向沿样品长度方向. 测量时采用四端法, 通过四条同轴线将样品接于阻抗分析仪上. 有效磁导率及阻抗测量中所用的样品尺寸为 2 mm 宽, 20 mm 长. 外加磁场由一个直径为 30 cm 的 Helmholtz 线圈提供. 它可产生一个从 -7 mT—7 mT 的直流磁场. 磁场方向与电流方向平行 (纵向磁化). Helmholtz 线圈放置的方向是使其所产生的磁场与地磁场垂直, 以减小地磁场的影响. 样品的结构由 X 射线衍射测定.

## 2 结果与讨论

X 射线衍射结果表明, 淬态样品为非晶态结构. 用振动样品磁强计测量了淬态样品的饱和磁化强度  $M_s$  与温度  $T$  的关系, 从曲线上的磁性相变点可以确定出材料的 Curie 温度约为 324 °C, 晶化温度约为 524 °C. 淬态材料的饱和磁化强度约为 38.5 kA/m.

为消除样品在制备过程中产生的内应力, 改善样品的软磁特性, 对材料进行了退火热处理. 处理方法如下: 先将样品在 350 °C 下退火 30 min, 该温度高于 Curie 温度, 低于材料的晶化温度, 所以可以有效地消除内应力. 然后, 将温度降至 300 °C 沿样品宽度方向在样品平面内加 0.2 T 的磁场进行不同时间的磁场退火热处理. X 射线衍射结果表明, 经过上述退火处理后, 样品仍保持非晶态结构. 图 1 给出薄带样品在 300 °C 下经不同时间的磁场退火热处理后所测得的磁阻抗谱. 这里, 磁阻抗比定义为  $\Delta Z_m/Z_s = (Z_m - Z_s)/Z_s$ , 其中  $Z_m$  和  $Z_s$  分别为材料的最大阻抗和 7 mT 磁场下的阻抗值. 下文可以看出, 在磁场为 0.18 mT 时, 材料阻抗达到最大值  $Z_m$ . 图 1 中的横坐标采用对数坐标, 目的是为了看清低频下磁阻抗的变化情况. 从图中可以看到, 样品在 300 °C 下经 60 min 磁场退火热处理后获得了最大的磁阻抗效应. 下面我们只讨论在这个最佳退火条件下材料的 GMI 效应.

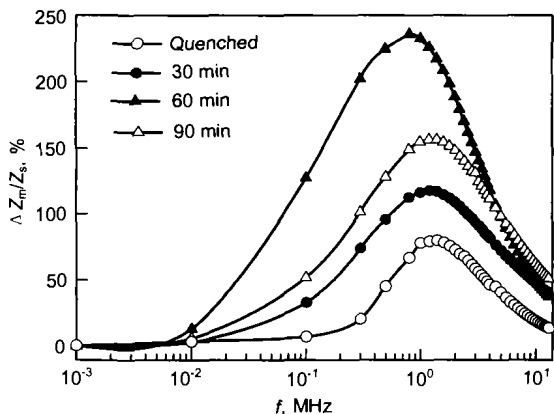


图 1 在 300 °C 下经不同时间的磁场退火热处理后样品的  $\Delta Z_m/Z_s$  与频率的关系

Fig.1 Dependences of  $\Delta Z_m/Z_s$  on the frequency  $f$  for the field-annealed samples at 300 °C for different times

图 2 为经最佳退火热处理后样品有效磁导率  $\mu_e$  与频率  $f$  的关系, 其中圆圈代表外加磁场为零的结果, 圆点代表外加 7 mT 纵向磁场的结果. 在无外加磁场时, 在低频范围内  $\mu_e$  随频率增加而迅速减小. 这是因为当频率增高时, 涡流损耗增加, 使材料的磁导率下降. 当加入 7 mT 的磁场时,  $\mu_e$  在整个频率范围内几乎为一个很小的常数. 由图 2 可见, 外加磁场可以明显影响材料的有效磁导率, 这是产生 GMI 效应的主要原因. 外加磁场通过改变材料的磁导率而改变交变电流的趋肤深度, 由此产生了 GMI 效应.

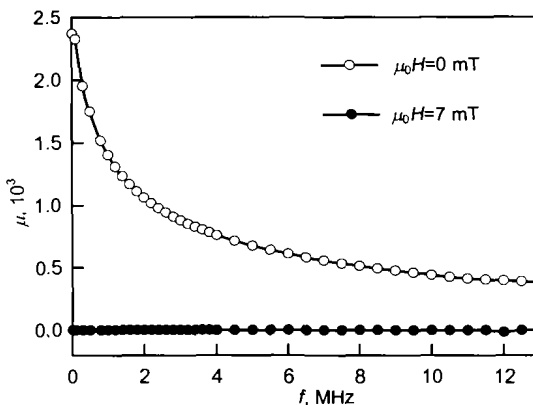


图 2 在零场和 7 mT 磁场下, 样品有效磁导率与频率的关系  
Fig.2 Frequency dependences of the effective permeability of sample in zero (O) and 7 mT (●) fields

结合图 2 再对图 1 做进一步讨论. 从图 1 可以看到, 磁阻抗谱存在如下特点: 第一, 磁阻抗存在一个临界频率  $f^*$ , 在这个频率下, 样品开始表现出明显的磁阻抗特性, 这时存在关系  $a/\delta_m=1$ <sup>[10]</sup>, 其中  $a$  是样品的厚度,  $\delta_m = [\rho/(\pi f^* \mu_e \mu_0)]^{1/2}$  是样品在  $f^*$  下的趋肤深度,  $\rho$  是样品的电阻率,  $\mu_0$  是真空磁导率. 当频率高于  $f^*$  时, 趋肤效应开始发挥作用. 从图 1 可以看出, 退火产生了二个明显的作用, 一是大幅度提高了材料的磁阻抗比, 第二明显降低了临界频率  $f^*$ . 淬态下材料的  $f^*$  约为 200 kHz, 经最佳条件下的退火热处理后,  $f^*$  降到 7 kHz 左右. 产生这种变化的原因是由于退火提高了材料的磁导率, 降低了交变电流的趋肤深度, 使产生 GMI 效应的临界频率降低. 第二, 磁阻抗谱存在一个特征频率  $f_m$ , 当  $f=f_m$  时,  $\Delta Z_m/Z_s$  达到最大值. 从图 1 可以看出, 退火处理对材料的特征频率影响很小. 对经最佳磁场退火条件处理过的样品, 在  $f_m=800$  kHz 下  $\Delta Z_m/Z_s$  达到最大值 236%. 当频率超过  $f_m$  时,  $\Delta Z_m/Z_s$  值就会逐渐降低. 特征频率的出现可以分析如下: 当频率升高时, 趋肤效应增强, 这有利于磁阻抗效应, 但另一方面, 频率升高会使有效磁导率下降, 这使有效磁导率受外磁场的影响减小, 这又不利于磁阻抗效应, 两个因素竞争的结果形成了特征频率  $f_m$ .

第三, 当频率足够高时, 磁阻抗比下降到很小的值, 可以想到, 一定存在一个截至频率  $f_c$ , 当  $f \geq f_c$  时, 磁阻抗效应消失. 这是因为, 当频率足够高时, 有效磁导率将降到很小的值, 这时, 磁场引起磁导率的变化可以忽略, 这在图 2 中已经反映出来, 这种情况下磁场对趋肤效应的影响可以忽略, 使磁阻抗效应消失. 由于实验条件的限制, 使用的频率还不够高, 所以从图 1 中还确定不出截至频率的具体值.

图 3 为薄带样品在几个典型的交变电流频率下磁阻抗比  $\Delta Z/Z_s$  随纵向磁场的变化关系, 这里, 磁阻抗比定义为:  $\Delta Z/Z_s = (Z_H - Z_s)/Z_s$ ,  $Z_H$  和  $Z_s$  分别是磁场为  $H$  和 7 mT 时材料的阻抗值. 从图 3 可以看出, 纵向磁阻抗比在  $\pm 0.18$  mT 的磁场下出现二个大的峰值, 这是样品受横向各向异性场  $H_K$  影响产生的, 峰值的位置即对应横向各向异性场的大小. 峰值的出现是由于当外场的大小等于横向各向异性场时, 材料的磁导率达到极大值, 这就是所熟知的在软磁材料中, 磁导率在  $H = \pm H_K$  处所出现的双峰现象. 在磁导率的峰值处, 趋肤深度达到最小, 因而材料的阻抗达到最大值, 使阻抗出现双峰. 图 3 说明样品沿纵向有一个 0.18 mT 的各向异性分量, 这是通过磁场退火热处理感生的. 所以磁场退火热处理一方面改善了材料的软磁特性, 另一方面也感应了一个横向各向异性场. 从图 3 中还可以看出, 当外场小于横向各向异性场时, 磁阻抗比随磁场增大而急剧增大, 表现出极高的磁场灵敏度. 所以采用磁场退火方法是获得磁阻抗低场灵敏度的有效方法. 在几个典型频率下, 如 0.1, 0.8, 3, 13 MHz 时, 在低场范围, 样品磁阻抗的磁场灵敏度分别为 570, 1152, 753, 207%/mT. 这里灵敏度定义为:  $(Z_m - Z_0)/(Z_s \cdot \Delta H)$ , 其中  $Z_0$ ,  $Z_m$  和  $Z_s$  分别是零磁场, 磁阻抗的峰值磁场和 7 mT 磁场下样品的阻抗值,  $\Delta H$  是磁阻抗峰值下所对应的磁场值. 可以看出, 在 800 kHz 时磁阻抗有最大的

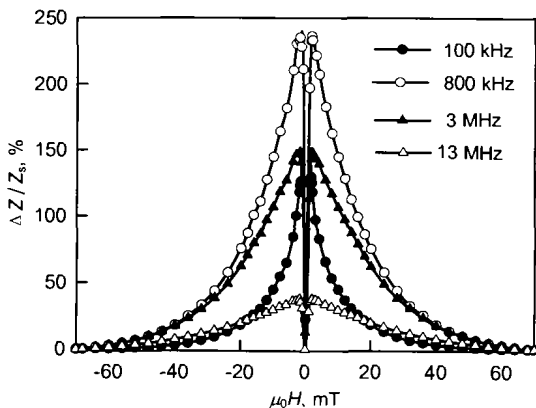


图 3 样品的磁阻抗比  $\Delta Z/Z_s$  与纵向磁场的关系

Fig.3 Dependences of magnetoimpedant ratio,  $\Delta Z/Z_s$ , of sample on the longitudinal magnetic field

磁场灵敏度 1152%/mT. 磁阻抗有如此高的磁场灵敏度, 这在钴基非晶材料中是少见的, 这特别有利于器件的低场应用.

图 4 给出磁场为 0.18 mT 时样品的磁阻抗比与频率的关系, 图中圆点、圆圈和三角分别表示  $\Delta R_m/R_s$ ,  $\Delta X_m/X_s$  和  $\Delta Z_m/Z_s$ . 其中:  $\Delta R_m = R_m - R_s$ ,  $\Delta X_m = X_m - X_s$ ,  $\Delta Z_m = Z_m - Z_s$ ,  $R_m$ ,  $X_m$ ,  $Z_m$  和  $R_s$ ,  $X_s$ ,  $Z_s$  分别为 0.18 mT 和 7mT 磁场下阻抗各分量的值. 由图可以看出  $\Delta R_m/R_s$  随频率的增加而增加, 而  $\Delta X_m/X_s$  则随频率的上升而下降. 在频率约 800 kHz 时两曲线与  $\Delta Z_m/Z_s$  交于一点. 磁阻抗比在此交点的值达到最大. 低频下对 GMI 起作用的主要是磁电感应, 在 10 kHz 下, 磁电感项的变化量高达 1720%. 如此高的磁电感应只在铁基多层膜中得到过 [7]. 低频下磁电阻比变化较小. 随着频率上升, 由于涡流损耗增加, 磁导率下降, 使电感项的变化迅速减小, 随着趋肤效应的明显提高, 电阻项的变化逐渐增加, 到 13 MHz 时磁电阻项的变化率达到 396%, 而磁电感应比却降到了很小的值. 所以, 在高频时, 磁电阻项对 GMI 效应起着主要作用.

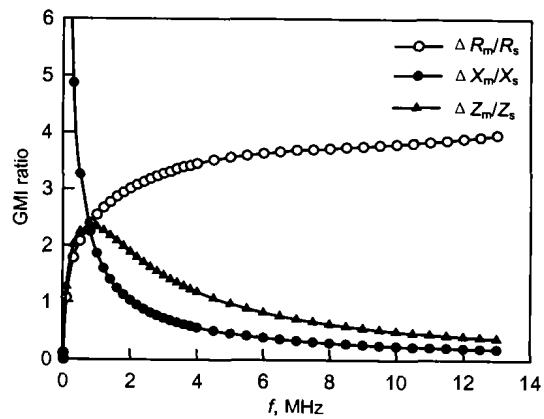


图 4 样品的  $\Delta R_m/R_s$ ,  $\Delta X_m/X_s$  和  $\Delta Z_m/Z_s$  与频率  $f$  的关系

Fig.4 Frequency dependences of  $\Delta R_m/R_s$ ,  $\Delta X_m/X_s$  and  $\Delta Z_m/Z_s$  of sample

### 3 结论

外加磁场通过改变材料的有效磁导率而改变交变电流的趋肤深度, 由此产生了 GMI 效应. 在 300 °C 下经 60 min 的横向磁场退火处理后获得了最佳的软磁特性, 从而得到了最大的 GMI 效应, 并且明显降低了 GMI 效应的临界频率. 这是由于磁场退火提高了材料的磁导率, 增加了磁场对磁导率影响的程度, 降低了交变电流的趋肤深度. 在 800 kHz 的交变电流频率下, 得到了 236% 的最大的磁阻抗比. 在低场下, 材料的磁阻抗磁场灵敏度达到 1152%/mT. 低频下材料主要表现为巨磁电感应, 在 10 kHz 下磁电感应比达到 1720%. 高频下材料主要表现为

磁电阻效应, 在 13 MHz 下, 磁电阻比达到 396%. 实验结果表明, 磁场退火热处理是提高材料 GMI 效应的有效方法, 特别在低磁场下, 可以得到很高的磁阻抗灵敏度, 这显示了磁场退火的优越性. 如此优良的阻抗性能在低场磁传感器中有很大的应用潜力.

#### 参考文献

- [1] Mohri K, Kohzawa T, Kawashima K, Yoshida H, Panina L V. *IEEE Trans Magn*, 1992; 28: 3150
- [2] Panina L V, Mohri K, Uchiyama T, Noda M, Bushida K. *IEEE Trans Magn*, 1995; 31: 1249
- [3] Sommer R L, Chien C L. *J Appl Phys*, 1996; 79: 5139
- [4] Chen C, Luan K Z, Liu Y H, Mei L M, Guo H Q, Shen B G, Zhao J G. *Phys Rev B*, 1996; 54: 6092
- [5] Dai Y Y, Xiao S Q, Liu Y H, Zhang L, Wu H Z. *Chin Phys Lett*, 2001; 18: 272
- [6] Liu Y H, Chen C, Zhang L, Yan S S, Mei L M. *J Phys D: Appl Phys*, 1996; 29: 2943
- [7] Xiao S Q, Liu Y H, Yan S S, Dai Y Y, Zhang L, Mei L M. *Phys Rev B*, 2000; 61: 5734
- [8] Mohri K, Panina L V, Uchiyama T, Bushida K, Noda M. *IEEE Trans Magn*, 1995; 31: 1266
- [9] Inomata K, Hasegawa M, Shimanuki S. *Jpn J Appl Phys*, 1979; 18: 937
- [10] Grossinger R, Turtelli R S. *IEEE Trans Magn*, 1994; 30: 455