

磁场取向对 Sm-Co/ α -Fe 交换耦合双层膜矫顽力的影响

刘正方，伍清萍，陈爱喜

(华东交通大学 基础科学学院，南昌 330013)

摘要：微磁学理论为基础，采用三维动力学模型研究了 Sm-Co/ α -Fe 双层膜的内禀矫顽力与外场取向的关系，以预测交换耦合双层膜(硬磁层和软磁层)磁性体系的磁性。结果表明：随外场角度(外磁场方向与硬磁层易轴间的夹角)的增大，内禀矫顽力减小；但当软磁层厚度小于其临界尺寸或软磁层厚度远大于其临界尺寸时，出现局部极小及局部极大现象；外场角度较小时，随软磁层厚度的增加，内禀矫顽力出现一峰值；这表明适当方向的外场有助于获得比较高的内禀矫顽力。采用能垒分析法对此结果进行定性解释。

关键词：交换耦合双层膜；微磁学；内禀矫顽力；磁场取向

中图分类号：O 482.52 文献标识码：A

Effect of orientation of magnetic field on intrinsic coercive field of Sm-Co/ α -Fe exchange-coupling bilayers

LIU Zheng-fang, WU Qing-ping, CHEN Ai-xi

(School of Basic Science, East China Jiaotong University, Nanchang 330013, China)

Abstract: To forecast the magnetism of hard/soft exchange-coupling bilayers, the relation between the intrinsic coercive field of the bilayers and the angle between orientation of magnetic field and easy axes of hard layer was investigated by using three-dimension dynamic model based on micromagnetic theory. The results show that the intrinsic coercive field decreases with increasing angle. But for the thickness of soft layer smaller than a critical thickness or far larger than the critical thickness, there exist a local minimum at small angle and a local maximum at big angle. For the small angle, with increasing thickness of soft layer, there exists a peak in the calculated intrinsic coercive field curve as a function of soft layer thickness. This indicates that the appropriate magnetic field angle is beneficial to the intrinsic coercive field, and these results are interpreted qualitatively based on the energy-barrier analysis.

Key words: exchange-coupling bilayer; micromagnetic; intrinsic coercive field; magnetic field orientation

交换耦合磁体(Exchange-coupling magnets)由于具有垂直交换耦合、磁电阻、磁致伸缩、磁能积和交换偏置等诸多效应，越来越成为一种引人注目的新型磁性材料。交换耦合磁体的一个主要用途是制造高性能的永磁材料。永磁材料要求尽可能大的矫顽力和饱和磁化强度，而交换耦合磁体既具有软磁的高饱和磁化强度，同时又具有硬磁的高矫顽力特性，因此，可成为一种良好的永磁材料^[1-2]。SKOMSKI 和 COEY^[2]曾预

言在合适的纳米交换弹性磁体中，有可能得到约 955 kJ/m³(大约是普通永磁体磁能积的 3 倍)的磁能积。特别当软磁相为非稀土相时，可节约稀土的用量，降低材料的价格。研究者通过理论^[3-5]与实验^[6-10]已对该体系进行了大量的研究，主要采用一维准静态模型研究软硬磁相厚度以及体系的结构对体系磁性能及反转特性的影响^[11-12]。然而由于一维准静态模型忽略了体系退磁能且磁矩只在膜面内旋转，实际上，当磁层较

基金项目：江西省自然科学基金资助项目(2007GZW0819)

收稿日期：2008-01-16；修订日期：2008-04-28

通讯作者：刘正方，讲师；电话：0791-3160323；E-mail: lzhangfang7519@163.com

厚时，退磁能对体系反磁化过程的影响也不容忽视，这时磁矩在垂直膜面方向也会有旋转。而且众所周知，外场的取向对磁体的磁性能也有一定的影响^[13-16]。基于此，本文作者以微磁学理论为基础，采用三维动力学模型研究外场取向对交换耦合硬/软磁双层膜的内禀矫顽力的影响。

1 模型和方法

图1所示为交换耦合硬/软磁双层膜(FCB)的结构示意图； n_s 与 n_h 分别是软、硬磁层厚度； L 和 W 分别表示体系的长和宽。

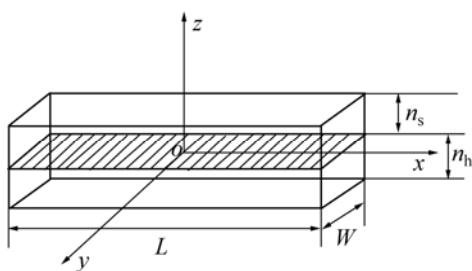


图1 交换耦合硬/软磁双层膜体系的模型

Fig.1 Model of exchange-coupling hard/soft magnetic bilayer films

在微磁学理论中，自由能的表达式为：

$$E_t = E_{an} + E_{ex} + E_H + E_{demag} \quad (1)$$

式中 E_{ex} 是交换作用能； E_k 是磁晶各向异性能； E_H 是外磁场能； E_{demag} 是退磁能；其中 E_{ex} 由软硬磁层间交换能、软磁层内交换能与硬磁层内交换能这3部分组成。磁矩从一个稳定状态到另一个稳定状态的变化过程遵循Landau-Lifshitz-Gilbert(LLG)动态方程：

$$\frac{d\mathbf{M}}{dt} = -\frac{\omega}{1+\alpha^2} \mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff} - \frac{\alpha\omega}{(1+\alpha^2)\mathbf{M}_s} \mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}) \quad (2)$$

式中 \mathbf{M} 为磁化强度矢量； ω 是旋磁比； α 是阻尼系数；有效场 \mathbf{H}_{eff} 定义为自由能的变分； $\mathbf{H}_{eff} = -\frac{1}{\mu_0} \frac{\partial E_t}{\partial \mathbf{M}}$ ，它提供作用在磁化强度矢量上的实际力矩。模拟基于有限差分的思想，将材料进行适当的网格划分。假定每个网格内磁矩分布是均匀的，给定一初始的磁矩分布，计算每个网格内的有效场并求解Gilbert方程，得到磁化强度矢量的动力学变化过程，从而获得磁体的

微磁结构分布(计算中只考虑最近邻相互作用，计算过程选择了自由边界条件)。

2 模拟结果及讨论

模拟过程中采用的样品为Sm-Co/ α -Fe双层膜^[12]，其硬磁层交换耦合常数、各向异性常数与饱和磁化强度分别是： $A_h = 1.2 \times 10^{-11}$ J/m、 $K_h = 5 \times 10^6$ J/m³、 $M_h = 0.55 \times 10^6$ A/m；软磁层交换耦合常数、各向异性常数与饱和磁化强度分别是： $A_s = 2.8 \times 10^{-11}$ J/m、 $K_s = 10^2$ J/m³、 $M_s = 1.7 \times 10^6$ A/m；层间交换耦合系数(A_{hs})取 1.8×10^{-11} J/m。

体系长、宽均为500 nm，硬磁层厚度为20 nm，每一部分单元的长、宽和高分别为20、20与0.5 nm；不同的软磁层厚度下，通过改变外场方向(ψ)(外场与x轴正向间的夹角)来观察在内禀矫顽力(H_c)的变化。模拟中软、硬磁层初始磁化强度矢量方向都沿外场，软、硬磁层易磁化轴都沿x轴，且 ψ 在xz平面内变化。

图2所示为不同软磁层厚度的Sm-Co/ α -Fe双层膜内禀矫顽力随外场取向的变化规律。由图可知， H_c 与 ψ 表现出复杂的关系：当 ψ 较小时随软磁层厚度增加， H_c 先增大然后逐渐减小；而当 ψ 较大时， H_c 变化逐渐趋于平缓($\psi=90^\circ$ 时， $H_c=0$)。另外，软磁层厚度较小($n_s=1.25$ nm)时，随 ψ 增大，在 ψ 的低角度范围， H_c 出现局域极小以及在 ψ 的高角度范围， H_c 出现局域极大现象(见图2(a))；而当 $n_s=2.5$ nm时， H_c 随 ψ 增大表现出递减的现象(见图2(b))；如果 n_s 进一步增大，则又会出现局域极小以及局域极大现象，且随 n_s 增大局域极大现象逐渐明显(见图2(c)、(d)和(e))；最后，当 n_s 比较大时，局域极大现象逐渐消失，这时随 ψ 增大， H_c 逐渐减小(见图2(f))。

众所周知，内禀矫顽力场对应磁化发生反转时的外场值 H 。当系统处于内禀矫顽力场时，阻碍磁化反转的能量消失，整个系统变得不稳定^[17]；在FCB系统中，有以下几种控制体系磁化强度矢量反转的能量： E_{B_s} 能垒阻碍软磁层的反转， E_{B_h} 能垒阻碍硬磁层的反转， E_{B_sh} 能垒阻碍软、硬磁层同时反转。当外场沿硬磁层易轴时，随反转方向的外场(H)增加，平衡位置的能量(E)将增加； H 等于软磁层的内禀矫顽力场(H_{sc})时，能垒 E_{B_s} 将消失(阻碍软、硬磁层同时反转的能垒 E_{B_sh} 存在)，软磁层的 M_s 反转到相反的方向。随着外场在反转方向继续增加， H 等于 H_{hc} 时，能垒 E_{B_h} 将消失，硬磁层的 M_s 反转到相反的方向。这种反转过程

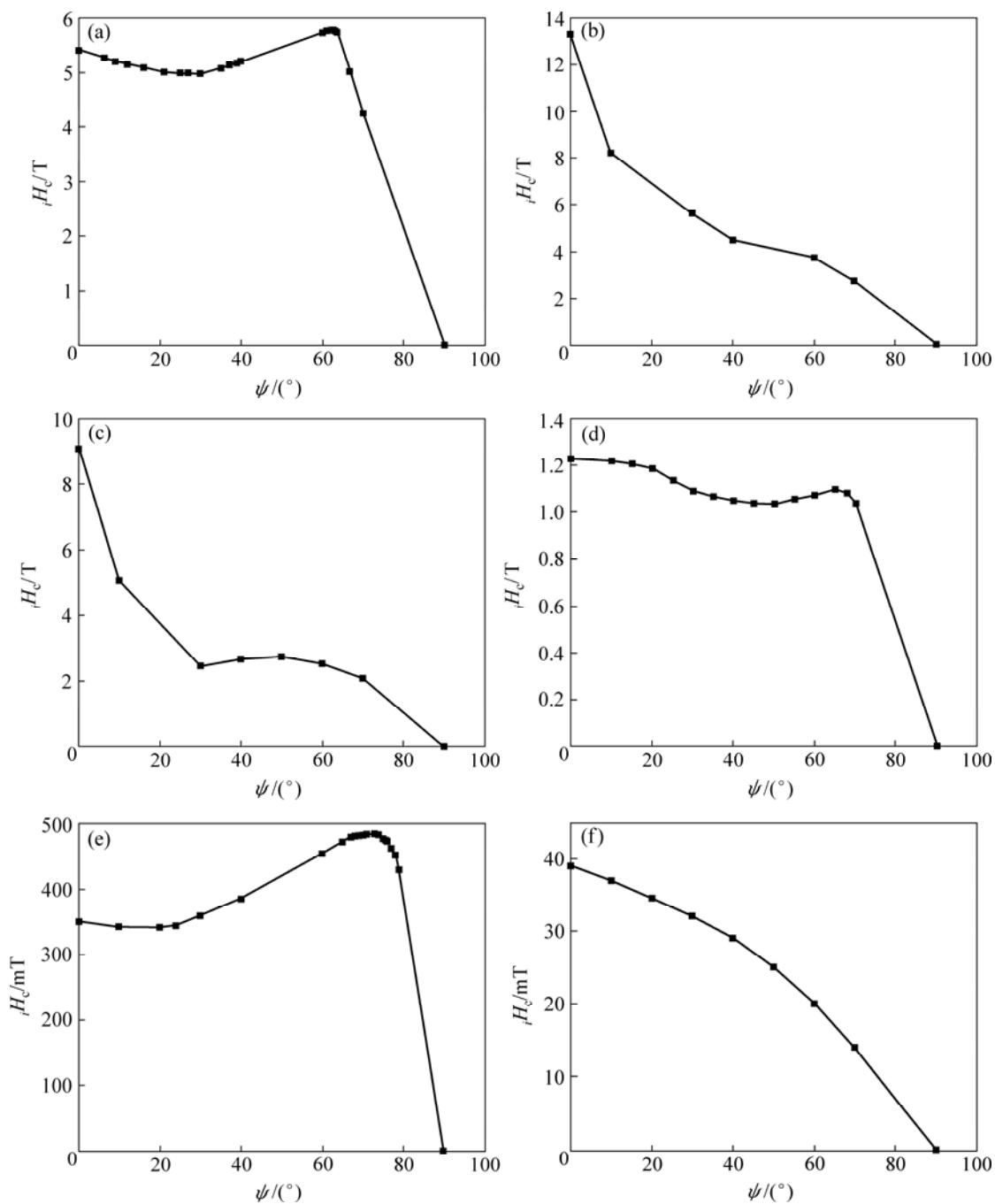


图2 不同软磁层厚度(n_s)下体系内禀矫顽力(H_c)与外场角度(ψ)的关系曲线

Fig.2 Calculated intrinsic coercive field (H_c) with different field directions(ψ) for different soft magnetic layer thicknesses(n_s) of system: (a) 1.25 nm; (b) 2.5 nm; (c) 4 nm; (d) 10 nm; (e) 20 nm; (f) 100 nm

是两步反转,其磁滞回线将会显示一台阶(Kink)(见图3(a)和(b)),其物理机制说明软磁层的磁化强度矢量并不完全与硬磁层的磁化强度矢量耦合。随着层间耦合增强, H_{sc} 增加而 H_{hc} 将减小^[11]。当耦合强度增加到一临界值时,能垒 E_{B_s} 与 E_{B_h} 在一定外场下将同时消失,软、硬磁层的磁化强度矢量同时发生反转,这种反转过程是一步反转,其磁滞回线并没台阶(见图3(c))。

软磁层厚度较小时,体系层间耦合较强,软磁层

主要通过磁矩一致转动实现其反磁化过程。此时决定磁化方向的能量主要是磁晶各向异性能 E_{an} ,交换耦合能 E_{ex} 和外磁场能 E_H ($E_{an} = k_s n_s \sin^2 \theta_s + k_h n_h \sin^2 \theta_h$, $E_H = -\mu_0 H M_s n_s \cos(\psi - \theta_s) - \mu_0 H M_h n_h \cos(\psi - \theta_h)$),且这时体系的交换耦合能主要由层间耦合能决定,硬磁层磁矩反转前 $E_{ex} \approx -J \cos(\theta_h - \theta_s)$ 。 θ 表示磁矩与硬磁层易轴的夹角, ψ 与 J 表示外场与硬磁层易轴的夹角以及软硬磁层间耦合常数。这时总能量为:

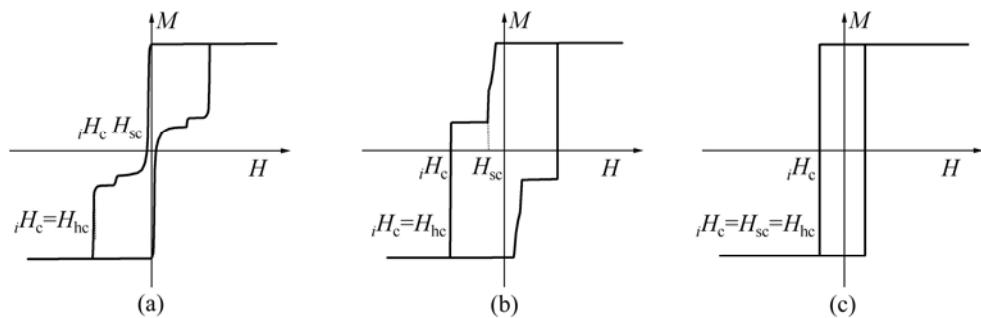


图3 有台阶与没台阶时 FCB 的磁滞回线图

Fig.3 Diagrams of hysteresis loop for FCB with and without kink

$$\begin{aligned} E &= E_H + E_{an} + E_{ex} = \\ &-H\mu_0 M_s n_s \cos(\psi - \theta_s) + k_s n_s \sin^2 \theta_s - \\ &H\mu_0 M_h n_h \cos(\psi - \theta_h) + k_h n_h \sin^2 \theta_h - J \cos(\theta_h - \theta_s) \end{aligned}$$

在 ψ 的低角度范围 ($\psi = 0^\circ$)，软磁层厚度较小 ($n_s = 1.25 \text{ nm}$) 时，软、硬磁层同时反转，这时硬磁层的内禀矫顽力场 ($H_{hc} = \frac{2k_h n_h - J}{\mu_0 M_h n_h}$) 等于软磁层的内禀矫顽力场 ($H_{sc} = \frac{2k_s n_s + J}{\mu_0 M_s n_s}$)，也等于 iH_c (见图 3(c))，即 $iH_c = H_{sc} = H_{hc} = \frac{2(k_s n_s + k_h n_h)}{(M_h n_h + M_s n_s)}$ ；但软磁层的厚度增加到 2.5 nm 时，这时软、硬磁层则不再同时反转， H_{hc} 将增大，而 H_{sc} 将会减小，但这时 $E_{B_h} - E_{B_s}$ ($iH_c = H_{hc}$) (见图 3(b))，进而导致内禀矫顽力场随软磁层厚度增大而增大；若继续增大软磁层的厚度，则由于 $E_{B_h} - E_{B_s}$ ($H_c = H_{sc}$)，体系的软磁性质逐渐明显，磁矩反转越来越容易；这时交换能不仅包括层间耦合能还包括层内耦合能，因此总能量中耦合能的比例会增大而且软磁层的反磁化模式发生了很大的变化，逐渐由一致反转模式变为局部形核反转与磁矩反转的混合模式，因此出现随软磁层厚度增大内禀矫顽力场先增大然后逐渐减小的现象。这不同于在纳米复合永磁材料中得到的结果^[18]。

当软磁层厚度等于 1.25 nm 时，

$$\begin{aligned} E &= -H\mu_0 M_s n_s \cos(\psi - \theta_s) + k_s n_s \sin^2 \theta_s - \\ &H\mu_0 M_h n_h \cos(\psi - \theta_h) + k_h n_h \sin^2 \theta_h - \\ &J \cos(\theta_h - \theta_s) = -H\mu_0 M_s n_s + k_s n_s \sin^2 \psi - \\ &H\mu_0 M_h n_h \cos(\psi - \theta_h) + k_h n_h \sin^2 \theta_h - J \cos(\theta_h - \psi) \end{aligned}$$

由于软磁层各向异性较弱，可以认为软磁层时刻沿外场方向，利用平衡条件 $\frac{\partial E}{\partial \theta_h} = -H\mu_0 M_h n_h \cdot \sin(\psi - \theta_h) + k_h n_h \sin 2\theta_h - J \sin(\psi - \theta_h) = 0$ ，以及极

小值条件 $\frac{\partial^2 E}{\partial \theta_h^2} = H\mu_0 M_h n_h \cos(\psi - \theta_h) + 2k_h n_h \cdot \cos 2\theta_h + J \cos(\psi - \theta_h) > 0$ ，可知：只有当外场沿硬磁层易轴以及垂直硬磁层易轴时，硬磁层磁矩沿外场方向才能使体系处于能量最低态，否则就与外场会有一夹角。因此当外场垂直硬磁层易轴时， H 与 M 的关系是一折线，亦即是一无磁滞的回线，此时体系内禀矫顽力为零，结果导致整体上随 ψ 增大 iH_c 减小。当 ψ 较小时，由于层间交换耦合能的贡献较小，此时体系近似为一单畴颗粒，因此，随 ψ 增大， iH_c 逐渐减小 (iH_c 由不可逆反转场决定)；但随 ψ 逐渐增大，此时层间交换耦合能已不能忽略，结果导致体系可逆反转场会局域增大 (此时 iH_c 由可逆反转场决定)；当 ψ 较大 (接近 90°) 时，由于硬磁层磁矩会逐渐趋近外场方向，因此，在 $iH_c - \psi$ 曲线上，会出现局域极小与局域极大现象。

当软磁层厚度等于 2.5 nm 时，层间耦合减弱，软、硬磁层不再同时反转，但软磁层仍然主要通过磁矩的一致转动来实现其反磁化过程，总能量仍可表示为： $E = E_H + E_{an} + E_{ex}$ 。 ψ 较小时，由于 $iH_c = H_{hc}$ ，随 ψ 增大 E_{ex} 逐渐减小，若继续增加 ψ ，则此时 $iH_c = H_{sc}$ ，甚至当 ψ 较大 (接近 90°) 时，此时内禀矫顽力场将不再等于不可逆反转场，而是由软磁层的可逆反转场决定，结果随外场与硬磁层易轴夹角的增大，体系内禀矫顽力会逐渐减小。另外，当软磁层厚度较大时，随外场与易轴夹角增大，尽管交换耦合能的贡献逐渐减弱磁晶各向异性能的贡献越来越明显，但同时退磁能也在逐渐增加，导致体系磁矩反转时必须克服这一势垒，因此，在外场的高角度范围，内禀矫顽力会出现一峰值。但当软磁层厚度足够大时，体系主要体现为软磁性，因此，中间峰值的现象会逐渐消失。可见 iH_c 的局域极小与局域极大现象并不仅仅出现于具有垂直各向异性的纳米线体系，在具有面内各向异性的多层膜体系中同样会出现。

3 结论

1) 在外场低角度范围, 随软磁层厚度增加, 体系内禀矫顽力先增大然后逐渐减小; 而在高角度范围, 内禀矫顽力变化逐渐趋于平缓, 并且当外场垂直硬磁层易轴时, 内禀矫顽力几乎为零。这说明存在最佳耦合的软磁相尺寸。

2) 软磁层厚度较小时, 随外场角度增大, 在低角度范围内禀矫顽力出现局域极小, 而在高角度范围内禀矫顽力出现局域极大现象, 这可归于层间交换耦合的贡献。当软磁层达到某一厚度(2.5 nm)时, 内禀矫顽力随外场角度的增大表现出递减的趋势, 这时随外场角度增大, 内禀矫顽力场将不再等于不可逆反转场, 而是由软磁层的可逆反转场决定。随软磁层厚度进一步增大, 内禀矫顽力又会出现局域极小以及局域极大现象, 且随软磁层厚度增大局域极大现象逐渐加强, 这主要是由于退磁能的影响。当软磁层厚度较大时, 局域极大现象逐渐消失, 这时随外场角度增大, 内禀矫顽力逐渐减小, 体系体现为软磁性。这表明适当方向的外场将有助于获得比较高的内禀矫顽力。

REFERENCES

- [1] KNELLER E F, HAWIG R. The exchange-spring magnet: a new material principle for permanent magnets[J]. IEEE Trans Magn, 1991, 27(4): 3588–3600.
- [2] SKOMSKI R, COEY J M D. Giant energy product in nano-structured two-phase magnets[J]. Phys Rev B, 1993, 48(21): 15812–15816.
- [3] JIANG J S, BADER S D, KAPER H, LEAF G K, SHULL R D, SHAPIRO A J, GORNAKOV V S, NIKITENKO V I, PLATT C L, BERKOWITZ A E, DAVID S, FULLERTON E E. Rotational hysteresis of exchange-spring magnets[J]. J Phys D, 2002, 35(19): 2339–2343.
- [4] MIBU K, NAGAHAMA T, SHINJO T. Reversible magnetization process and magnetoresistance of soft-magnetic(NiFe)/hard-magnetic (CoSm) bilayers[J]. J Magn Magn Mater, 1996, 163(1): 75–79.
- [5] MONTAIGNE F, MANGIN S, HENRY Y. Transition of magnetic configuration at the interface of exchange-coupled bilayers: TbFe/GdFe as a model system[J]. Phys Rev B, 2003, 67(14): 144412–144425.
- [6] FULLERTON E E, JIANG J S, GRIMSDITCH M, SOWERS C H, BADER S D. Exchange-spring behavior in epitaxial hard/soft magnetic bilayers[J]. Phys Rev B, 1998, 58(18): 12193–12200.
- [7] CHOI Y, JIANG J S, PEARSON J E, BADER S D. Element-specific recoil loops in Sm-Co/Fe exchange-spring magnets[J]. J Appl Phys, 2008, 103(7): 07E132(1–3).
- [8] SHIDO M, ISHIZONE M, KATO H, MIYAZAKI T, SAKUMA A. Exchange-spring behavior in sputter-deposited α -Fe/Nd-Fe-B multi-layer magnets[J]. J Magn Magn Mater, 1996, 161(1): L1–L5.
- [9] 张卫国, 姜莹, 姚素薇. 电沉积Ni₈₀Fe₂₀/Cu纳米多层膜及其巨磁电阻效应[J]. 化工学报, 2008, 59(2): 503–507.
ZHANG Wei-guo, JING Ying, YAO Su-wei. Electrodeposition and giant magnetoresistance of Ni₈₀Fe₂₀/Cu nanometer multilayers[J]. Journal of Chemical industry and Engineering, 2008, 59(2): 503–507.
- [10] 蒋洪川, 张万里, 张金平, 彭斌, 张文旭, 杨仕清. TbFe/Fe 交换耦合磁致伸缩多层膜的制备[J]. 功能材料, 2005, 36(2): 193–195.
JIANG Hong-chuan, ZHANG Wan-li, ZHANG Jin-ping, PENG Bin, ZHANG Wen-xu, YANG Shi-qing. Fabrication of TbFe/Fe exchange-coupling magnetostrictive multilayers[J]. Journal of Functional Materials, 2005, 36(2): 193–195.
- [11] SHAN Z S, LIU J P, CHAKKA V M, CHAKKA V M, ZENG H, JIANG J S. Energy barrier and magnetic properties of exchange-coupled hard/soft bilayer[J]. IEEE Trans Magn, 2002, 38(5): 2907–2909.
- [12] AMATO M, RETTORI A, PINI M G. Exchange-spring behavior of hard/soft magnetic multilayers: optimization study of the nanostructure[J]. Physics B, 2000, 275(1/3): 120–123.
- [13] 张腊梅, 郭光华, 韩念梅. 磁性镍纳米线矫顽力随角度变化规律的微磁学模拟[J]. 中国有色金属学报, 2006, 16(8): 1400–1404.
ZHANG La-mei, GUO Guang-hua, HAN Nian-mei. Micromagnetic simulation of angular dependence of coercivity of magnetic nanowires[J]. The Chinese Journal of Nonferrous Metals, 2006, 16(8): 1400–1404.
- [14] HAN G C, ZONG B Y, LUO P, WU Y H. Angular dependence of the coercivity and remanence of ferromagnetic nanowires arrays[J]. J Appl Phys, 2003, 93(11): 9202–9207.
- [15] FREI E H, SHT RIKMAN S, TREVES D. Critical size and nucleation field of ideal ferromagnetic particles[J]. Phys Rev, 1957, 106(3): 446–455.
- [16] HUYMANS G T A, LODDER J C. Magnetization curling in perpendicular iron particle arrays (alumite media)[J]. J Appl Phys, 1988, 64(4): 2106–2021.
- [17] VAMSI M, CHAKKA, SHANA Z S, LIU J P. Effect of coupling strength on magnetic properties of exchange spring magnets[J]. J Appl Phys, 2003, 94: 6673–6677.
- [18] 张宏伟, 荣传兵, 张绍英, 沈保根. 高性能纳米复合永磁材料的模拟计算研究[J]. 物理学报, 2004, 53(12): 4347–4352.
ZHANG Hong-wei, RONG Chuan-bing, ZHANG Shao-ying, SHEN Bao-gen. Investigation of high-performance hard magnetic properties of nanocomposite permanent magnets by micromagnetic finite element method[J]. Acta Phy Sin, 2004, 53(12): 4347–4352.

(编辑 龙怀中)