

文章编号:1000-5641(2008)05-0098-06

不同衬底温度下 Tb/Fe/Dy 纳米多层膜 超磁致伸缩性能研究

李晓东, 黄素梅, 潘丽坤, 陈奕卫, 杨燮龙, 孙卓
(华东师范大学 物理系, 纳光电集成与先进装备教育部工程研究中心, 上海 200062)

摘要: 采用多靶磁控溅射仪在室温和衬底温度为 300 °C 的条件下制备 Tb/Fe/Dy 纳米多层膜, 研究其磁性能和超磁致伸缩性能. 结果表明该纳米多层膜较 TbDyFe 单层膜有更明显的垂直磁各向异性和更大的矫顽力. 尽管纳米多层膜样品具有垂直各向异性, 但仍具有超磁致伸缩性能. 特别是衬底温度为 300 °C 的纳米多层膜样品, 具有 Laves 相结构的 TbDyFe 纳米晶体析出, 使得低磁场下磁致伸缩性能有了显著的提高.

关键词: Tb/Fe/Dy; 纳米多层膜; 超磁致伸缩效应; 垂直各向异性

中图分类号: TM271 **文献标识码:** A

Giant magnetostrictive effect in Tb/Fe/Dy nano-multilayer films under different deposition temperatures

LI Xiao-dong, HUANG Su-mei, PAN Li-kun, CHEN Yi-wei,
YANG Xie-long, SUN Zhuo

(Department of Physics, Engineering Research Center for Nanophotonics & Advanced Instrument, Ministry of Education, East China Normal University, Shanghai 200062, China)

Abstract: Tb/Fe/Dy nano-multilayer films were deposited by multi-targets magnetron sputtering system at room temperature and substrate temperature of 300 °C. The nano-multilayer films have large perpendicular anisotropy and high coercive force than the TbDyFe single layer film, and show giant magnetostrictive effect though they have perpendicular anisotropy. The nano-multilayer film deposited by substrate temperature of 300 °C has enhanced low field giant magnetostrictive effect because the nano-crystalline of TbDyFe with Laves phase structure segregates from the amorphous matrix.

Key words: Tb/Fe/Dy; nano-multilayer films; giant magnetostrictive effect; perpendicular anisotropy

收稿日期:2008-02

基金项目:国家自然科学基金(60477003, 10774046)

第一作者:李晓东,男,博士研究生. E-mail:ckjsli@gmail.com.

通讯作者:孙卓,男,教授,主要研究方向为碳纳米材料、器件及高密度等离子体沉积和刻蚀系统.

E-mail:zsun@phy.ecnu.edu.cn.

0 引言

磁致伸缩效应是指铁磁材料在外磁场发生变化时,其长度及体积发生变化的现象,首先是由焦耳^[1]在 1842 年发现。此后许多学者一直对此进行研究,在 1963~1965 年,Legvold, Clark 和 Rhyre 等先后发现稀土金属铽和镝在 0 K 附近的磁致伸缩达 10^{-3} 量级,远远大于普通过渡性金属材料及其合金和铁氧体材料(仅为 $10^{-6} \sim 10^{-5}$ 量级)^[2-4]。由于这样大的磁致伸缩只有在极低的温度下才能出现,使得具有高磁致伸缩系数的稀土金属无法在常温下使用。根据过渡金属电子云的特征,稀土-过渡金属形成的化合物具有较高的居里温度,使用磁致伸缩符号相同而磁晶各向异性符号相反的稀土元素与铁元素形成的赝二元化合物,就能获得较大的磁致伸缩性能,并且具有很小的磁晶各向异性^[5],特别是组分为 $Tb_{0.27} Dy_{0.63} Fe_2$ 商品号为 Terfenol-D 的材料具有很高的超磁致伸缩性能和低的磁晶各向异性。

Terfenol-D 研究多是集中在单晶或者多晶的棒材、块体复合材料^[6-11]以及用甩带法制备的合金^[12]。虽然 Terfenol-D 块体材料和条带在晶化条件下具有较大的超磁致伸缩系数,但是低场灵敏度差,需要很大的磁场来驱动。许多研究表明非晶态和部分晶化的薄膜^[13-19]可以降低超磁致伸缩材料的磁各向异性,从而提高低场超磁致伸缩的灵敏度,有利于在低磁场应用中获得应用。目前一般采用合金^[13,15]或者马赛克式的靶材^[20],利用磁控溅射^[13,15]或脉冲激光沉积^[21,22]等方法来制备薄膜,研究其磁性能和超磁致伸缩性能。但是采用合金靶材在溅射过程中存在择优溅射问题,难以精确控制薄膜的成分,不利于保持稳定一致的超磁致伸缩性能。

针对上述问题,本文采用多靶磁控溅射的方法制备 Tb/Fe/Dy 纳米多层膜,实现精确控制薄膜成分,并研究其磁性能和低磁场下的磁致伸缩性能。

1 实验方法

使用多靶磁控溅射系统制备 Tb/Fe/Dy 纳米多层膜。靶材为 Tb, Dy 和 Fe, 纯度为 99.99%, Tb, Dy 和 Fe, 靶厚度分别为 5 mm, 5 mm 和 1 mm, 靶材的直径均为 75 mm。使用厚度为 170 μm 的玻璃片作为溅射基片, 溅射之前将玻璃片在超声波溶液中清洗各 30 min, 溶液分别为乙醇和丙酮溶液, 用去离子水漂洗后放入干燥箱中烘干。靶和基片的距离为 50 mm。Tb/Fe/Dy 纳米多层膜样品的结构如图 1 所示, 在每一个重复单元中, Tb, Fe 和 Dy 各层膜的厚度分别为 2 nm, 4 nm 和 3 nm, 即多层膜结构为 $[Tb(2 \text{ nm})/Fe(4 \text{ nm})/Dy(3 \text{ nm})]_n$, 共有 55 个重复单元, 厚度约为 0.5 μm 。在溅射过程中, 靶和衬底都采用水冷。分别在衬底温度为室温和 300 $^{\circ}\text{C}$ 条件下制备 Tb/Fe/Dy 多层膜。其中, 样品 A 为室温条件下制备的多层膜样品, 样品 B 为衬底温度为 300 $^{\circ}\text{C}$ 条件下制备的多层膜样品。

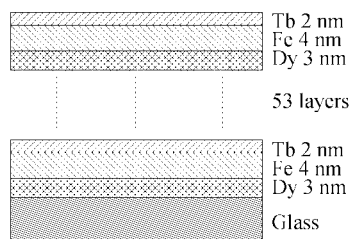


图 1 Tb/Fe/Dy 纳米多层膜的示意图

Fig. 1 The structure of Tb/Fe/Dy nano-multilayer films

使用 X 射线能谱仪(EDX)和电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP-AES)分析多层膜的成分,得到 Tb/Fe/Dy 多层膜的组分为 $Tb_{0.27}Dy_{0.73}Fe_2$. 使用振动样品磁强计(VSM)测量薄膜样品的磁滞回线,其中外加磁场的方向分别平行和垂直于多层膜的平面. 使用 D/max 2550 型 X 射线衍射仪分析薄膜样品的晶体结构. 在室温下利用光悬臂梁结构测试样品的磁弹性耦合系数 b . 测量时,外加磁场平行于薄膜的平面并沿样品的横向方向,样品的一端用样品夹固定.

2 结果与讨论

图 2 是室温和衬底温度 $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 下制备的纳米多层膜 X 衍射谱图. 曲线 A 中仅仅有一个很宽范围的衍射峰,这表明样品 A 处于非晶态. 衬底温度为 $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的纳米多层膜样品的 X 射线衍射谱图如曲线 B 所示,宽衍射峰的峰位没有发生变化,同时在衍射曲线中出现两个与 Laves 相 $R-Fe_2$ 相对应的衍射峰,表明有 Laves 相的 $R-Fe_2$ 纳米晶从非晶态中析出. 在纳米多层膜的沉积过程中,会产生结构涨落和不均匀性,通过形状各向异性和磁弹性耦合效应,使纳米多层膜样品具有宏观各向异性,通过以下薄膜样品的磁性能测试得以印证.

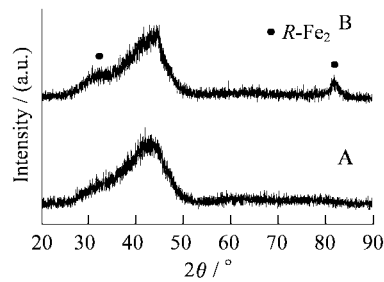


图 2 Tb/Fe/Dy 纳米多层膜的 X 射线衍射谱图

Fig. 2 The XRD patterns of Tb/Fe/Dy nano-multilayer films

图 3 为室温和衬底温度 $300\text{ }^{\circ}\text{C}$ 的 Tb/Fe/Dy 纳米多层膜的磁滞回线,外磁场分别垂直于样品平面和平行于样品平面. 图 3 中的磁滞回线表明样品 A 和 B 均具有明显的垂直各向异性,其易磁化方向垂直于薄膜平面,磁矩取向垂直于薄膜样品的平面. 纳米多层膜在外磁场下的磁化过程如下:外加垂直薄膜平面的磁场时主要以畴壁移动为主,外加平行薄膜平面的磁场时以磁畴旋转为主^[22].

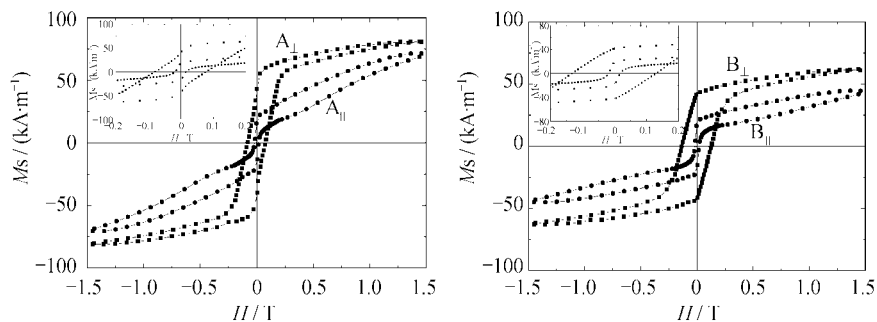


图 3 室温下 Tb/Fe/Dy 纳米多层膜样品的磁滞回线

Fig. 3 Magnetic hysteresis loops of the Tb/Fe/Dy nano-multilayer films at room temperature

表 1 为样品 A 和 B 的垂直和面向饱和磁化强度和矫顽力. 样品 A 和 B 的垂直和平行膜面的饱和磁化强度不同,分别为 81.1 kA/m 和 71.1 kA/m 及 62.4 kA/m 和 44.9 kA/m,而垂直和平行膜面方向矫顽力分别为 79.1 mT 和 17.7 mT 及 127.1 mT 和 18.4 mT,大于相同组分的 TbDyFe 合金单层膜的垂直和面向矫顽力 10 mT^[13],特别是垂直矫顽力远大于合金化 TbDyFe 单层膜的矫顽力. 垂直和面向磁滞回线曲线中不同饱和磁化强度和大矫顽力由以下因素所决定:第一是由薄膜沉积时残存应力决定. 由于在溅射过程中氩的原子和离子很容易沉积到薄膜中,使得薄膜内部有压应力存在^[23],压应力的存在导致样品具有垂直各向异性,因而具有不同面向和垂直饱和磁化强度和很大的矫顽力^[13];另一个因素是受稀土元素 Tb 和 Dy 的影响. 由于稀土元素和过渡性金属之间的强交换相互作用,引起稀土和过渡性金属间的自旋反平行耦合,使得薄膜具有磁各向异性,从而具有不同的垂直和面向饱和磁化强度与不同的矫顽力^[24]. 样品 B 比样品 A 具有更大的矫顽力和更明显的垂直各向异性,这主要是因为样品 B 沉积时,衬底温度为 300 °C,有部分 Laves 相纳米晶 TbDyFe 成核析出,导致内部非晶态结构发生变化,磁弹性耦合作用增强,使得样品 B 垂直磁晶各向异性变大,导致垂直各向异性更明显,同时矫顽力较样品 A 有明显的增大^[25].

表 1 样品 A 和 B 的磁性能

Tab. 1 The magnetic properties of the sample A and B

样品	矫顽力 H_c /mT	饱和磁化强度 M_s /(kA·m ⁻¹)
A	垂直	81.1
	平行	71.1
B	垂直	62.4
	44.9 平行	18.4

图 4 为纳米多层膜样品的磁弹性耦合系数与外磁场的关系曲线. 磁弹性耦合系数与磁致伸缩成正比^[14]. 磁弹性耦合系数随外磁场变化也就是反映了磁致伸缩随外磁场性能变化. 由图 4 可知,样品 A 和 B 的磁弹性耦合系数随外磁场增大而近似线性增大,在最大外磁场为 0.75 T 时磁弹性耦合系数达到极大值为 2.54 MPa 和 7.5 MPa. 样品 B 的磁弹性耦合系数大于样品 A,磁弹性耦合系数随着外加磁场的增大而迅速增大,在外加磁场为 0.18 T 时,磁弹性耦合系数为 2.5 MPa,远大于样品 A 在此磁场下的超磁致伸缩值 0.6 MPa,接近于在最大外磁场 0.75 T 下的 2.54 MPa. 尽管样品 B 也具有很强的垂直各向异性,由于具有 Laves 相结构的 TbDyFe 纳米晶体析出,磁弹性耦合作用增强^[25],使得样品 B 比样品 A 的磁弹性耦合系数有很大的提高.

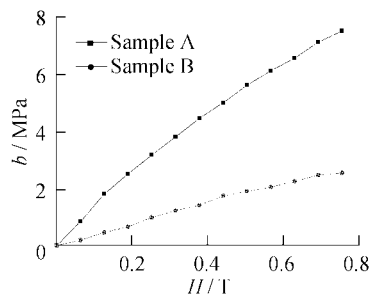


图 4 室温下多层膜样品的磁弹性耦合系数与外加磁场的关系

Fig. 4 The change of magnetoelastic coupling coefficient measured as a function of the external field at room temperature

3 结 论

本文制备了不同衬底温度下的 Tb/Fe/Dy 纳米多层膜,并研究了其磁性能和超磁致伸缩性能,结论如下:

在衬底未加热和衬底加热温度为 300 °C 下制备的 Tb/Fe/Dy 纳米多层膜具有很强的垂直磁各向异性,矫顽力大于相同条件下制备的 TbDyFe 合金薄膜.由于衬底加热制备的纳米多层膜样品中 TbDyFe 纳米晶 Laves 相的析出,使得衬底加热条件下的多层膜样品比衬底未加热的样品具有更强的垂直各向异性、更大矫顽力和更大的磁弹性耦合系数,其低场磁弹性耦合系数远大于衬底未加热的纳米多层膜样品.

[参 考 文 献]

- [1] JOULE J P. On a new class of magnetic forces [J]. *Annals of Electricity Magnetism and Chemistry*, 1942(8): 219-224.
- [2] LEGVOL S, ALSTAD J, RHYNE J. Giant magnetostriction in dysprosium and holmium single crystals [J]. *Physics Review Letters*, 1963(10): 509-511.
- [3] CLARK A E, DESAVAGE B F, CALLEN E R. Magnetostriction of single crystal dysprosium gadolinium iron garnet and dysprosium iron garnet [J]. *J Appl Phys*, 1964, 35: 1028-1029.
- [4] CLARK A E, DESAVAGE B F, BOZORTH R. Anomalous thermal expansion and magnetostriction of single crystal dysprosium [J]. *Physics Review*, 1965, 138: A216-A224.
- [5] CLARK A E. Magnetostrictive rare earth-Fe₂ compounds [C]//WOHAFARTH E P. *Ferromagnetic Materials*. Amsterdam: North-holland Publishing Company, 1980.
- [6] CLARK A E, SAVAGE H T. Giant magnetically induced changes in the elastic moduli in Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe₂ [J]. *IEEE Transactions on Sonics and Ultrasonics*, 1975, 22: 50-52.
- [7] ABELL J S, BUTLER D, GREENOUGH R D, et al. Magnetomechanical coupling in Dy_{0.73}Tb_{0.27}Fe₂ alloys [J]. *J Magn Magn Mater*, 1986, 62: 6-14.
- [8] CLARK A E, TETER J P, MCMASTERS O D. Magnetostriction jump in twined Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe_{1.9} single Crystal [J]. *J Appl Phys*, 1988, 63: 3910-3912.
- [9] BI Y J, ABELL J S. Microstructural characterization of Terfenol-D crystals prepared by the Czochralski technique [J]. *Journal of Crystal Growth*, 1997, 172: 440-449.
- [10] DUENAS T A, CARMAN G P. Large magnetostrictive response of Terfenol-D resin composites [J]. *J Appl Phys*, 2000, 87: 4696-4701.
- [11] GUO Z J, BUSBRIDGE S C, PIERCY A R, et al. Effective magnetostriction and magnetomechanical coupling of Terfenol-D composites [J]. *Appl Phys Lett*, 2001, 78: 3490-3492.
- [12] LIM S H, NOH T H, KANG I K, et al. Structure and magnetostriction of melt-spun Dy_x(Fe_{1-y}Co_y)_{1-x} alloys [J]. *J Appl Phys*, 1994, 76: 7021-7023.
- [13] QUANDT E. Multitarget sputtering of high magnetostrictive Tb-Dy-Fe films [J]. *J Appl Phys*, 1994, 75: 5653-5655.
- [14] LUDWIG A, QUANDT E. Giant magnetostrictive thin films for application in microelectromechanical systems [J]. *J Appl Phys*, 2000, 87: 4691-4695.
- [15] QUANDT E, GERLACH B, SEEMANN K. Preparation and application of magnetostrictive thin film [J]. *J Appl Phys*, 1994, 76: 7000-7002.
- [16] MITSUHIRO W, HIROHISA U, HIDEO K. Effect of annealing treatment of the Tb_{0.3}Dy_{0.7}Fe₂ thin films on the magnetic and magnetostrictive characteristics [J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 1997, 258: 169-173.
- [17] JIANG X Y, XU H B, JIANG C B, et al. The influence of stress and heat treatment on the magnetization of Tb-

- DyFe films[J]. *Journal of Alloys and Compounds*, 2000,311: 86-89.
- [18] SOELIOTIS A, HIARCHOS D. Magnetostrictive properties of amorphous and crystalline TbDyFe thin films [J]. *Sensors and Actuators A*, 2003,106: 298-301.
- [19] DELAFUENTE C D L, ARNAUDAS J I, BENITO L, et al. Magneto-crystalline anisotropy in a (110) $(\text{Tb}_{0.27}\text{Dy}_{0.73})\text{Fe}_2$ thin-film[J]. *J Phys Condens Matter*, 2004,16: 2959-2966.
- [20] GRUNDY P J, LORD D G, WILLIAMS P I. Magnetostriction in TbDyFe thin films [J]. *J Appl Phys*, 1994,76: 7003-7005.
- [21] JENNER A G, STONE L A, SNELLING H V. Magnetostrictive thin films by laser ablation deposition [J]. *J Alloys Compounds*, 1997,258: 138-142.
- [22] AUSANIO G, BARONE A C, IANNOTTI V, et al. Morphology, structure and magnetic properties of $(\text{Tb}_{0.3}\text{Dy}_{0.7}\text{Fe}_2)_{(100-x)}\text{Fe}_x$ nanogranular films produced by ultrashort pulsed laser deposition [J]. *Nanotechnology*, 2006,17: 536-542.
- [23] ZHAO S F, BI F, WAN J G, et al. Cluster-assembled Tb-Fe nanostructured films produced by low energy cluster beam deposition [J]. *Nanotechnology*, 2007,18: 5705-5709.
- [24] TAKAGI H, TSUNASHIMA S, UCHIYAMA S, et al. Stress induced anisotropy in amorphous Gd-Fe and Tb-Fe sputtered films [J]. *J Appl Phys*, 1979,50: 1642-1644.
- [25] CAMPBELL I A. Indirect exchange for rare earths in metals [J]. *J phys F metal phys*,1972(2): 47-50.

(上接第 83 页)