磁性多功能材料专题

硬磁/软磁多层膜的成核场、磁滞回线、磁相图和临界厚度

赵国平^{①②*}, 郭乃理^①, 夏静^①, 丁浩峰^①, 常景^①^① 四川师范大学物理与电子工程学院, 成都 610068;^② 电子科技大学电子薄膜与集成器件国家重点实验室, 成都 610054

*联系人, E-mail: zhaogp@uestc.edu.cn; zapple2004@yahoo.com

收稿日期: 2012-04-26; 接受日期: 2012-05-08; 网络出版日期: 2012-06-19

国家自然科学基金资助项目(批准号: 11074179, 10747007)

摘要 本文通过微磁学方法, 较为系统地研究了不同组合的硬磁/软磁多层膜的磁矩分布和磁滞回线, 并给出了成核场以及成核场和钉扎场分离的软磁相厚度(临界厚度)的解析公式. 研究发现, 当软磁相厚度 L^s 较小时, 钉扎场与成核场一致, 磁滞回线为矩形, 对应的磁相为刚性磁体; 随着 L^s 增大, 钉扎场与成核场发生分离, 磁滞回线在第二象限开始发生倾斜, 磁相由刚性磁体变为交换弹簧磁体; 随着软磁相厚度进一步增大, 硬磁相和软磁相的磁矩反转相对独立, 磁相由交换弹簧磁体变为退耦合磁体. 解析推导表明, 临界厚度和硬磁相的磁晶各向异性的平方根成反比, 这一点与 Kneller 的估算公式一致. 根据临界厚度的解析公式, 我们计算了不同材料的临界厚度, 并与实验值和 Kneller 等人的估算值进行了比较, 探讨了差别产生的原因.

关键词 微磁学, 硬软磁多层膜, 磁滞回线, 磁相图, 临界厚度

PACS: 75.60.JK, 75.10.Hk, 75.50.Bb, 75.70.Cn

doi: 10.1360/132012-258

交换弹簧由 Kneller 等人^[1]在 1991 年提出, 它结合了硬磁相高矫顽力和软磁相高剩磁的优点, 具有很大的磁能积, 具备垂直交换耦合、磁电阻、磁致伸缩等诸多效应, 是目前国内外磁性物理和磁性材料研究的一个热点^[2–12].

典型的硬磁/软磁组成的交换弹簧在硬磁相和软磁相之间存在着很强的铁磁交换耦合, 并且在退磁场小于交换耦合临界场时磁化转动呈可逆的弹性行

为, 因此, 该现象在文献中被称为交换弹簧现象^[6,7,13]. 磁性交换弹簧的一个主要用途是制造高性能的永磁材料, 该领域的计算以 Brown^[14]提出的微磁学为主. 1993 年 Skomski 和 Coey^[2]通过微磁学计算指出: 取向排列的纳米多层膜复合磁体的理论磁能积可达到 1 MJ/m^3 , 它要比目前磁性能最好的烧结 Nd-Fe-B 磁体的磁能积高一倍, 而目前所报道的该材料的磁能积最大值还远远低于理论值. 这一现象在文献中被称

引用格式: 赵国平, 郭乃理, 夏静, 等. 硬磁/软磁多层膜的成核场、磁滞回线、磁相图和临界厚度. 中国科学: 物理学 力学 天文学, 2012, 42: 667–676
Zhao G P, Guo N L, Xia J, et al. Nucleation fields, hysteresis loops, magnetic phase diagrams and critical thickness in hard/soft multilayers (in Chinese). Sci Sin-Phys Mech Astron, 2012, 42: 667–676, doi: 10.1360/132012-258

为磁能积矛盾^[10].

虽然交换弹簧的理论 1991 年才由 Kneller 等人^[1]正式提出, 微磁学计算早在 20 世纪 60 年代就已经被 Goto 等人^[15]开始用来研究复合磁体的成核场. 当时的模型还比较粗糙, 不仅没有考虑到软磁相的各向异性, 也没有考虑硬磁相的磁矩分布^[15]. 该模型在 20 世纪 90 年代逐步完善, 被 Skomski 和 Coey^[2], Leineweber 和 Kronmüller^[5]以及 Fullerton 和 Jiang 等人^[6,7]用来计算交换弹簧的成核场和磁滞回线. 最近几年, Asti 等人^[11,12,16]和 Zhao 等人^[10,17-20]结合了解析分析和数值计算, 使用更为精细的微磁学分析了交换弹簧体系的成核场、磁滞回线和矫顽力机制. 然而, 复合磁体磁能积的理论值和实验值依然存在很大的差距^[3,4,10].

因此, 对交换弹簧体系还有必要作更为系统和深入的研究. 为了实现高磁能积, 这种材料必须具有矩形磁滞回线以及刚性的磁相, 其磁相图以及得到矩形磁滞回线的临界厚度的研究具有重要的意义. 本文系统地研究了不同组合的硬磁/软磁多层膜的成核场、磁矩分布和磁滞回线, 并分析了不同复合材料的磁相图, 讨论了它们的临界厚度.

1 计算模型与方法

我们的微磁学计算基于图 1 的多层膜结构, 其中软硬磁相周期交替排列. 为方便讨论, 假设两相都具有单轴各向异性, 软硬磁相的易轴 e 和外磁场 H 相互平行, 并且平行于薄膜表面. Skomski 和 Coey 的关于巨磁能积的预言就是基于这种结构, 它主要用在高性能微型永磁材料的设计中. 平行膜面的计算结果很容易推广到垂直于膜面取向的情况, 即易轴 e 和外

磁场 H 都垂直于薄膜表面的情况, 这种结构对于高密度磁记录材料的制备具有重要的意义.

考虑到体系的对称性和周期性, 可取多层膜内部任意相邻两层的一半, 下层为软磁相, 上层为硬磁相, 来代替整体研究. 经过这样的变化, 图 1(a)所示的多层膜体系便可以简化为图 1(b)所示的双层膜体系进行研究. 以软、硬磁界面中心为原点, 建立坐标系 $o-xyz$, 膜面在 xy 平面内, 易轴 e 和外磁场 H 都平行于 x 轴. 其中, 软、硬磁相的厚度分别表示为 L^s, L^h . 假设膜面无限大, 从而将问题简化为一个一维模型.

由微磁学理论^[5,10,14], 采用 CGS 单位制, 如图 1(b)所示的平行于膜面的双层膜体系单位面积的自由能可表示为

$$F = \int_0^{L^h/2} \left[A^h \left(\frac{d\theta}{dz} \right)^2 + K^h \sin^2 \theta - H M_s^h \cos \theta \right] dz + \int_{-L^s/2}^0 \left[A^s \left(\frac{d\theta}{dz} \right)^2 + K^s \sin^2 \theta - H M_s^s \cos \theta \right] dz, \quad (1)$$

其中, A 表示交换能量常数, K 表示磁晶各向异性常数, θ 表示磁矩的空间取向, 即磁化强度与外加磁场的夹角, M_s 为饱和自发磁化强度, 上标 h 和 s 分别表示硬磁相和软磁相. 上式中积分号里面的三项能量分别是交换能、磁晶各向异性能和塞曼能. 容易发现, 图 1(a)所示的多层膜体系单位面积的自由能是(1)式的 $2n$ 倍, 其中 n 是多层膜的周期数.

在软、硬磁相的中心, 根据对称性可以得到

$$\left. \frac{d\theta}{dz} \right|_{z=\frac{L^h}{2}} = 0, \quad \left. \frac{d\theta}{dz} \right|_{z=-\frac{L^s}{2}} = 0. \quad (2)$$

另一方面, 在软、硬磁相的界面, 根据 Karl Weierstrass 关系可得

图 1 计算模型

(a) 多层膜模型; (b) 平行取向情况; (c) 垂直取向情况

Figure 1 Model for the calculation. (a) Model of the multilayer; (b) parallel oriented; (c) perpendicularly oriented.

$$A^s \frac{d\theta}{dz} \Big|_{z=0^-} = A^h \frac{d\theta}{dz} \Big|_{z=0^+}. \quad (3)$$

将(1)式代入欧拉方程 $\frac{\partial F}{\partial \theta} = \frac{d}{dz} \left(\frac{\partial F}{\partial \frac{d\theta}{dz}} \right)$, 结合边界条件(2)和(3)可求出能量极小值时的磁矩分布(θ 与 z 的关系):

$$A^h \left(\frac{d\theta}{dz} \right)^2 = K^h (\sin^2 \theta - \sin^2 \theta^h) - M_s^h H (\cos \theta - \cos \theta^h), \quad (4)$$

$$A^s \left(\frac{d\theta}{dz} \right)^2 = K^s (\sin^2 \theta - \sin^2 \theta^s) - M_s^s H (\cos \theta - \cos \theta^s), \quad (5)$$

其中 θ^s 和 θ^h 分别表示软、硬磁相中心的磁矩取向. 将(4)和(5)式对 θ 与 z 积分可得

$$\int_{\theta^h}^{\theta} \frac{d\theta}{\sqrt{(\sin^2 \theta - \sin^2 \theta^h) - 2h^h (\cos \theta - \cos \theta^h)}} = \pi \left(\frac{\frac{L^h}{2} - z}{\Delta^h} \right), \quad (6)$$

$$\int_{\theta}^{\theta^s} \frac{d\theta}{\sqrt{(\sin^2 \theta - \sin^2 \theta^s) - 2h^s (\cos \theta - \cos \theta^s)}} = \pi \left(\frac{\frac{L^s}{2} + z}{\Delta^s} \right), \quad (7)$$

其中, $\Delta = \pi(A/K)^{1/2}$ 是 Bloch 畴壁宽度. 方程(6)和(7)结合边界条件(3)联立求解, 可以得到磁矩的空间分布和磁滞回线. 另外, 边界条件(3)通过数学变换可以写成下面的形式:

$$A^s K^s (\sin^2 \theta^o - \sin^2 \theta^s - 2h^s \cos \theta^o + 2h^s \cos \theta^s) = A^h K^h (\sin^2 \theta^o - \sin^2 \theta^h - 2h^h \cos \theta^o + 2h^h \cos \theta^h), \quad (8)$$

其中 θ^o 是软、硬磁相界面的磁矩取向. 以下的计算主要依据公式(6)–(8).

对于如图 1(c)所示的垂直于膜面取向的情况, 除了(1)式所表示的三项能量之外, 还应该包括形状各向异性能^[19,20], 其自由能表达式为

$$F_{\perp} = \int_0^{L^h} \left[A^h \left(\frac{d\theta}{dz} \right)^2 + K^h \sin^2 \theta - H M_s^h \cos \theta + \frac{1}{2} \times 4\pi (M_s^h)^2 \cos^2 \theta \right] dz + \int_{-L^s}^0 \left[A^s \left(\frac{d\theta}{dz} \right)^2 + K^s \sin^2 \theta - H M_s^s \cos \theta + \frac{1}{2} \times 4\pi (M_s^s)^2 \cos^2 \theta \right] dz, \quad (9)$$

后续的公式也需要作相应的修正.

2 成核场

成核是磁矩反转的第一步, 而成核场也是矫顽力的下限. 在 20 世纪 40 年代, Brown 提出著名的矫顽力矛盾, 就是基于成核场的计算. 因此, 对成核场进行系统的分析具有重要的意义. 在成核点, 磁矩方向偏离量很小(即 $\theta \ll 1^\circ$), 对(6)和(7)两式泰勒展开取最低阶的两项并积分. 在积分时, (6)和(7)式的积分限分别取为 $[\theta^h, \theta^o]$ 和 $[\theta^o, \theta^s]$ 并代入 $z=0$ 可以得到

$$-h^s = 1 + \left[\frac{2\Delta^s}{\pi L^s} \cos^{-1} \left(\frac{\theta^o}{\theta^s} \right) \right]^2, \quad (10)$$

$$-h^h = 1 - \left\{ \frac{2\Delta^h}{\pi L^h} \ln \left[\frac{\theta^o}{\theta^h} + \sqrt{\left(\frac{\theta^o}{\theta^h} \right)^2 - 1} \right] \right\}^2. \quad (11)$$

对界面上的约束条件(8)式泰勒展开并取最低阶的两项可得

$$\left(\frac{\theta^s}{\theta^o} \right)^2 = 1 + \frac{A^h K^h (h^h + 1)}{A^s K^s (-h^s - 1)} \left[1 - \left(\frac{\theta^h}{\theta^o} \right)^2 \right]. \quad (12)$$

联立(10)–(12)式并消去 θ^o , θ^s , θ^h , 可得平行膜面取向交换耦合磁性多层膜的成核场公式:

$$\frac{\tan^2 \left(\frac{\pi L^s}{2\Delta^s} \sqrt{-h^s - 1} \right)}{\tanh^2 \left(\frac{\pi L^h}{2\Delta^h} \sqrt{h^h + 1} \right)} = \frac{A^h K^h (h^h + 1)}{A^s K^s (-h^s - 1)}. \quad (13)$$

同样方法可得垂直膜面取向时的成核场公式:

$$\frac{\tan^2 \left(\frac{\pi L^s}{2\Delta^s} \sqrt{-h^s - 1 + \frac{2\pi(M_s^s)^2}{K^s}} \right)}{\tanh^2 \left(\frac{\pi L^h}{2\Delta^h} \sqrt{h^h + 1 - \frac{2\pi(M_s^h)^2}{K^h}} \right)} = \frac{A^h K^h \left(h^h + 1 - \frac{2\pi(M_s^h)^2}{K^h} \right)}{A^s K^s \left(-h^s - 1 + \frac{2\pi(M_s^s)^2}{K^s} \right)}, \quad (14)$$

式中 $h = H/H_K^s$ 和 $h^h = H/H_K^h$ 为约化外场, $H_K^s = 2K^s/M_s^s$ 与 $H_K^h = 2K^h/M_s^h$ 分别表示软、硬磁相的磁晶各向异性场。

在(13)和(14)式中代入不同的材料参数(见表 1), 可以得到不同的软、硬磁多层膜体系的成核场随薄膜厚度变化的曲线。

图 2 是根据(13)式计算的 SmCo_5/Co 多层膜的成核场随软磁相厚度变化的曲线。 SmCo_5 是目前发现的最硬的材料, 它的磁晶各向异性场和矫顽力都位居首位。由图可见, 不同 L^h 下的成核场都随 L^s 增加而减小。平行取向情况的成核场从硬磁相 SmCo_5 的磁晶各向异性场 $H_K^h = 407 \text{ kOe}$, 单调减小到软磁相 Co 的磁晶各向异性场 $H_K^s = 6 \text{ kOe}$ 。垂直取向情况的成核场与此类似, 从 SmCo_5 的等效各向异性场 $(H_K^h)' = 2[K^h - 2\pi(M_s^h)^2]/M_s^h = 396 \text{ kOe}$, 单调减小到 Co 的等效各向异性场 $(H_K^s)' = 2(K^s - 2\pi(M_s^s)^2)/M_s^s = -12 \text{ kOe}$ 。当 L^s 小于硬磁相的布洛赫宽度的一半 ($\Delta^h/2 = 1.3 \text{ nm}$) 时, 由于硬磁相 SmCo_5 的磁晶各向异性 K^h 远大于它的形状各向异性 $2\pi(M_s^h)^2$, 平行取向和垂直取向的成核场差别不大。随着 L^s 的增大, 成核场越来越小, 两种情况下的

成核场之差也越来越大。当 $L^s > 1.3 \text{ nm}$ 时, 两者的差别就比较明显。值得注意的是, 两种情况下的成核场都随 L^s 增加而单调减小, 随 L^h 增加而单调增大, 都不会出现 Leineweber 等人^[5]发现的平台(即在软磁相厚度小于硬磁相的布洛赫宽度时, 成核场等于硬磁相的磁晶各向异性场而不随软磁相厚度变化)以及 Yang 等人^[22]计算所发现的峰值。Aharoni^[23], Asti 等人^[11,16]以及 Han 等人^[24]都得到了与我们类似的结果。详细分析发现, 前述平台其实并不是一个真实的平台, 而是因为用数值方法在这个区域找不到满足方程的解所导致的虚拟平台^[10,20]。而我们的解析分析则可以避免这样的问题。而 Zhao 等人^[20]计算所发现的峰值则是由于坐标系选取的不恰当所造成的。应该说明的是, 从理论上考虑成核场的前提条件是, 在成核点磁矩方向偏离量很小, 这只有在二级磁结构相变时才成立。而在我们考虑的体系中, 同时计入了硬磁层和软磁层的磁晶各向异性场, 在一定的软磁层厚度情况下, 形核场处软磁层的结构变化可以是一级磁相变, 此时计算形核场的前提条件不存在。考虑了这一因素以后, 峰值是有可能出现的。

其他软硬磁复合材料的成核场与此类似。图 3 给出了 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}/\text{Co}$ 多层膜的成核场随软磁相厚度变化的曲线。平行取向情况的成核场从硬磁相 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 的磁晶各向异性场 $H_K^h = 182 \text{ kOe}$, 单调减小到软磁相 Co 的磁晶各向异性场 $H_K^s = 6 \text{ kOe}$ 。垂直取向情况的成核场从 $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ 的等效各向异性场 $(H_K^h)' = 2[K^h - 2\pi(M_s^h)^2]/M_s^h = 175 \text{ kOe}$, 单调减小到 Co 的等效各向异性场 $(H_K^s)' = 2(K^s - 2\pi(M_s^s)^2)/M_s^s = -12 \text{ kOe}$ 。两种情况下的成核场都随硬磁相厚度的增加而增加。但是硬磁相厚度的影响只有在 L^h 比较小时影响才比较显著, 当厚度大于 5 nm (约等于 3 倍的硬磁相布洛赫宽度) 时, 硬磁相对成核场的影响可以忽略。实际应用的材

表 1 不同软硬磁材料的磁性参数^[10,21]

Table 1 Magnetic properties of various hard/soft materials

铁磁材料	$K (\times 10^7 \text{ erg/cm}^3)$	$M (\times 10^3 \text{ emu/cm}^3)$	$A (\times 10^{-7} \text{ erg/cm})$	$H_K (\text{kOe})$	$\Delta (\text{nm})$
FePt	7	1.15	10	121.7	3.77
$\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$	5	0.55	12	181.8	4.87
$\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$	4.3	1.28	7.7	67.2	4.2
SmCo_5	17.1	0.84	12	407	2.6
$\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3$	12	1.23	10.7	195	3.0
Co	0.43	1.43	10.3	6.0	15.4
$\alpha\text{-Fe}$	0.046	1.71	25	0.54	73.16

图 2 (网络版彩图)SmCo₅/Co 多层膜的成核场随软磁相厚度变化的曲线

Figure 2 (Color online) Changes of nucleation fields for SmCo₅/Co multilayers with the soft layer thickness.

图 3 (网络版彩图)Sm₂Co₁₇/Co 多层膜的成核场随软磁相厚度变化的曲线

Figure 3 (Color online) Changes of nucleation fields for Sm₂Co₁₇/Co multilayers with the soft layer thickness.

料 L^h 一般都大于这个宽度. 因此, 在以下的计算中, 除非特别说明, 我们都考虑 L^h 比较大时的情况.

图 4 给出了平行取向的三种不同铁基复合磁性多层膜的成核场随软磁相厚度变化的曲线. 相对于钴基材料而言, 铁基复合磁性多层膜的磁晶各向异性、成核场和矫顽力都要低一些, 但是铁基材料的饱和磁化强度和剩磁都比较大, 因此相对于钴基材料更容易获得高磁能积, 并且价格也更便宜. 我们下面主要讨论铁基复合磁多层膜的特性. 需要指出的是,

图 4 (网络版彩图)平行取向的三种不同铁基复合磁性多层膜的成核场随软磁相厚度变化的曲线

Figure 4 (Color online) Nucleation fields for three different parallel-oriented composite multilayers as functions of the soft layer (iron) thickness.

目前文献中有很多关于 FePt/ α -Fe 纳米磁性材料的理论计算, 但在大多数文献中, 人们采用的 FePt 材料的磁晶各向异性常数都比较小^[19,25], 一般为 $2 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$. 由于众所周知的矫顽力矛盾^[26]和磁能积矛盾^[10], 这样计算看起来理论和实验符合得好一些. 实际上, FePt 材料在不同的晶化条件下会产生不同的晶体结构, 对应不同的磁性参数. 特别是磁晶各向异性常数会有很大的不同. 本文选取的 FePt 材料的参数来自于文献[21], 磁晶各向异性常数为 $7 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$.

3 磁矩分布

成核是磁矩发生反转的第一步, 为全面了解复合磁多层膜的反转特性, 我们根据公式(6)–(8)数值计算出了磁矩反转过程中任意外场下平行取向多层膜在垂直于薄膜平面方向的磁矩分布, 这些分布也是计算磁滞回线的基础. 图 5 给出了 4 种不同软磁相厚度的 FePt (20 nm)/ α -Fe 磁性多层膜的磁矩空间分布曲线. 对于图 5(a)所示的 $L^s = 4 \text{ nm}$ 的情况, 成核发生在外场 $H = -35.1 \text{ kOe}$. 在外场大于这个外场时, 整个体系的磁矩处于一个一致的取向, 即 $\theta = 0^\circ$, 这也是多层膜体系此前的饱和磁化方向. 由于软磁相的厚度比较小(远小于 α -Fe 的布洛赫壁宽度 73 nm), 成核场比较大, 并且成核时软磁相的磁矩偏转也比较大, 对应的 θ^o 和 θ^s 分别为 56° 和 69° . 而硬磁相的表面磁

图 5 4 种不同软磁相厚度的 FePt (20 nm)/ α -Fe 磁多层膜在不同外场下的磁矩空间分布曲线

(a) $L^s = 4$ nm, (b) $L^s = 8$ nm, (c) $L^s = 12$ nm, (d) $L^s = 25$ nm

Figure 5 Spatial magnetic distributions for four different soft layer thicknesses of the FePt (20 nm)/ α -Fe multilayers at various applied fields.

(a) $L^s = 4$ nm, (b) $L^s = 8$ nm, (c) $L^s = 12$ nm, (d) $L^s = 25$ nm.

矩依然保持在原来饱和的方向上, 即 $\theta^h = 0^\circ$, 因此在成核时就形成一个比较明显的磁畴壁, 这个畴壁主要分布在硬磁相. 当外场继续降低时, 畴壁继续向硬磁相表面移动, 当外场降低到 $H = -35.8$ kOe 时, 达到体系的另外一个临界场, 即钉扎场. 在此之前的磁矩分布如图 5(a)所示. 这个磁矩分布并不稳定, 外场继续降低一个很小的数值就会使整个多层膜体系反转, 反转以后整个多层膜体系的磁矩达到另外一个一致的取向, 即 $\theta \equiv 180^\circ$. 在 L^s 较小时, 这个临界场也对应于体系的矫顽力. 图 5(b)–(d)给出的磁矩分布与图 5(a)类似. 随着软磁相厚度的增加, 成核场和钉扎场都有不同程度的降低, 同时软磁相在成核时畴壁所占的比例越来越大, 这增加了畴壁由软磁相向硬磁相移动所需要的历程, 导致钉扎场和成核场之差越来越大, 并且磁滞回线的矩形度也会越来越差(参见图 6). 如图 5(d)所示, 当 $L^s = 25$ nm 时, 成核时的 θ^o 和 θ^s 分别为 15° 和 50° , 即在成核时畴壁的绝大部分分布在

软磁相, 这一点与 $L^s = 4$ nm 的情况正好相反; 此外, 在 $L^s = 25$ nm 时, 钉扎场与成核场之差为 10.6 kOe, 是 $L^s = 4$ nm 情况下的约 15 倍.

4 磁滞回线、临界场和矫顽力机制

根据不同外场下的磁矩分布, 对不同位置的 $M_s \cos \theta$ 进行平均, 可以得到宏观磁滞回线. 图 6 给出了不同软磁相厚度下的 FePt (20 nm)/ α -Fe 磁性多层膜的磁滞回线. $L^s = 3$ nm 的磁滞回线为理想的矩形, 此时成核场和钉扎场相等, 除了 $\theta \equiv 0^\circ$ 和 $\theta \equiv 180^\circ$ 之外, 找不到稳定的磁矩分布, 矫顽力机制以成核为主. 这种情况下数值解不容易给出准确的结果, 而本文第 3 节的解析分析具有明显的优势. $L^s = 4$ nm 的情况下的磁滞回线形状与此类似, 由图 5(a)可见, 成核和钉扎之间的间隙很小, 磁滞回线接近矩形, 只是成核场要低一些. 随着软磁相厚度的增加, 成核场和钉扎场均

降低, 成核和钉扎之间的间隙增大, 矩形度逐渐变差, 矫顽力与成核场分离, 但是仍然等于钉扎场, 矫顽力机制变为钉扎. 图 6 中 $L^s = 10$ 和 15 nm 时的磁滞回线就属于这种情况. 进一步降低 L^s , 成核场和钉扎场均进一步降低, 矩形度变得更差, 矫顽力逐渐远离钉扎场, 向成核场靠拢, 图 6 中 $L^s = 20, 25, 30$ 和 45 nm 的磁滞回线均属于这种情况. 这一区间成核场还不到钉扎场的一半, 成核到钉扎的历程很长, 因此矩形度和磁能积都比较低.

从以上讨论可以发现, 成核场 H_N , 矫顽力 H_C 和钉扎场 H_P 这些临界磁场决定了磁滞回线的主要特征. 图 7 给出了 FePt (20 nm)/ α -Fe 磁性多层膜的成核场、矫顽力和钉扎场随软磁相厚度变化的曲线. 在 L^s 比较小时, 矫顽力、成核场和钉扎场相等, 此时的磁滞回线是矩形, 矫顽力机制为成核, 对应的复合磁体磁相为刚性磁体. 当 $L^s > 3$ nm 时, 成核场和钉扎场发生分离, 矫顽力等于钉扎场而大于成核场, 并且成核和钉扎的间隙随着 L^s 的增加而增大, 此时的矫顽力机制为钉扎. 磁滞回线的矩形度较刚性磁体为差, 对应的复合磁体磁相为交换弹簧. 我们称这一临界厚度 (3 nm) 为第一临界厚度, 记为 L_{crit1} . 当 $L^s > L_{\text{crit2}} = 15$ nm 时, 矫顽力在成核场和钉扎场之间, 矫顽力机制从钉扎逐渐变为成核. 此时的磁滞回线的矩形度进一步降低, 对应的复合磁体磁相为退耦合磁体. L_{crit2} 被称为第二临界厚度. 需要指出的是, 对于给定的各向异

图 6 7 种不同软磁相厚度下 FePt (20 nm)/ α -Fe 磁性多层膜的磁滞回线

Figure 6 Hysteresis loops for seven different soft layer thicknesses of the FePt (20 nm)/ α -Fe multilayers.

图 7 FePt (20 nm)/ α -Fe 磁性多层膜的成核场、矫顽力和钉扎场随软磁相厚度变化的曲线

Figure 7 Nucleation, coercive and pinning fields as functions of the soft layer thickness for FePt (20 nm)/ α -Fe multilayers.

性常数, 在软磁层成核场处是一级磁相变还是二级磁相变取决于软磁层厚度和界面交换耦合强度. 当软磁层厚时 (与畴壁厚度相当), 如图 6 所示, 将会出现一级磁相变. 因此, 本文所讨论的形核场问题, 从严格意义上讲, 只能局限于软磁层较薄时才成立.

5 磁相图和临界厚度

以上讨论的磁相图仅限于特定的 L^h , 即 L^h 比较大的情况. 根据方程 (6)–(8) 我们可以通过计算得到不同复合磁多层膜的磁相图. 图 8 给出了 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 复合磁多层膜的磁相图. 中间的 U 型区域是交换弹簧, 在它的左面和下面的狭长区域是刚性磁体, 右边是退耦合磁体. 硬磁相厚度很小 ($L^h < 1.5$ nm) 时只会出现刚性磁体. $L^h > 1.5$ nm 时三种磁相都会出现. 当 $L^s < 4$ nm 时出现刚性磁体, 当 $L^s > 17$ nm 时出现退耦合磁体. L^h 太小 (< 1.5 nm) 会严重影响复合磁体的有效磁晶各向异性系数, 从而极大地降低矫顽力. 所以在 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 复合磁多层膜中获得巨磁能积, 软磁相厚度一般应小于 4 nm, 这也是 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 复合磁多层膜的第一临界厚度.

其他复合磁多层膜的磁相图与此类似. 图 9 和 10 分别给出了 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3/\text{Co}$ 和 SmCo_5/Co 复合磁多层膜的磁相图. 与 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 相比, 这些材料出现刚性磁体的区域更小, 大量的区域都是退耦合磁

图 8 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 复合磁多层膜的磁相图Figure 8 Magnetic diagrams for $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ composite multilayers. 图 9 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3/\text{Co}$ 复合磁多层膜的磁相图Figure 9 Magnetic diagrams for $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3/\text{Co}$ composite multilayers. 图 10 SmCo_5/Co 复合磁多层膜的磁相图Figure 10 Magnetic diagrams for SmCo_5/Co composite multilayers.

体. 比如说 $\text{Sm}_2\text{Fe}_{17}\text{N}_3/\text{Co}$ 和 SmCo_5/Co 复合磁多层膜的第一临界厚度分别为 1.5 和 1 nm, 比 $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 体系小很多. 因此, $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}/\alpha\text{-Fe}$ 复合磁多层膜更易获得巨大的磁能积.

第一临界厚度是个很关键的尺度, 这一尺度可以通过考虑方程(1)中 θ^4 项系数的符号得到. 在成核时能量的变化与 θ^4 满足如下关系:

$$\Delta E = B \left(v \tan v - \sin^2 v \cos 2v - \frac{2}{\eta} \cos^4 v \right) \theta^4, \quad (15)$$

这里 B 是一个正数, 参数 v 和 η 由以下两式给出:

$$v = \frac{L^s}{2} \sqrt{\frac{H_N M^s}{A^s}}, \quad (16)$$

$$\eta = \frac{A^s M^s}{A^h M^h}. \quad (17)$$

在刚性磁体区域, 成核是不稳定的, 相应的能量变化大于 0; 而在交换弹簧区域, 成核是稳定的, 相应的能量变化小于 0. 让(15)式等于 0, 我们可以得到^[10]

$$L_{\text{crit1}} = \sqrt{\frac{A^s M^h}{M^s} (1 + \eta \tan^2 v)} \cdot \frac{2v}{\sqrt{K^h}}. \quad (18)$$

即第一临界厚度与硬磁相的磁晶各向异性的平方根成反比, 这一点与 Kneller 的估算公式^[1]

$$L_{\text{crit1}} = \pi \sqrt{A^s / 2K^h} \quad (19)$$

一致. 根据公式(18)和(19)我们可以得到不同复合磁多层膜的临界厚度, 见表 2. 由表 2 可见, 由公式(19)算出的第一临界厚度比由公式(18)算出的大. 一般来说, 临界厚度的理论值比实验值来得小, 意味着 Kneller 的估算公式(19)比我们的精确公式与实验符合得更好. 经过分析, 我们发现在计算模型中忽略了一些微结构, 可能是导致理论和实验差别比较大的原因. 这些微结构极大地降低了硬磁相的有效磁晶各向异性. 根据公式(18)和(19), 这会导致较大的第一临界厚度.

6 结论

综上所述, 我们可以得到以下结论.

纳米复合磁多层膜的成核场随软磁相厚度的增加而单调降低, 随硬磁相厚度的增加而单调增加, 不会出现平台和峰值. 其中, 硬磁相厚度只在 L^h 比较小时有比较明显的影响, 而软磁相厚度则在复合磁多层膜的所有厚度区域对成核场和磁滞回线都有比较

表 2 不同硬磁/软磁多层膜的临界厚度计算值及其对应的成核场

Table 2 Calculated critical thicknesses and the corresponding nucleation fields for various hard/soft multilayer

材料组合	临界厚度 (nm)	成核场 (kOe)	临界厚度估算值 (nm)
FePt/ α -Fe	2.9	47.5	4.20
Nd ₂ Fe ₁₄ B/ α -Fe	3.8	25.3	5.36
Nd ₂ Fe ₁₄ B/Fe ₆₅ Co ₃₅	3.0	26.8	4.38
Nd ₂ Fe ₁₄ B/Co	2.6	40.0	3.44
Sm ₂ Fe ₁₇ N ₃ / α -Fe	2.3	78.9	3.21
Sm ₂ Co ₁₇ /Fe ₆₅ Co ₃₅	1.8	63.8	4.06
Sm ₂ Fe ₁₇ N ₃ /Fe ₆₅ Co ₃₅	1.8	85.1	2.62
Sm ₂ Fe ₁₇ N ₃ /Co	1.6	111.5	2.06
SmCo ₅ / α -Fe	1.6	150.5	2.69
SmCo ₅ /Fe ₆₅ Co ₃₅	1.2	163.7	2.20
SmCo ₅ /Co	1.1	211.9	1.72

显著的影响. 当软磁相厚度 L^s 较小时, 钉扎场等于成核场, 磁滞回线为矩形, 对应的磁相为刚性磁体; 随着 L^s 的增大, 钉扎场与成核场之间的间隙逐渐增大, 磁滞回线的矩形度变差, 磁相由刚性磁体变为交换弹簧磁体; 随着软磁相厚度进一步增大, 硬磁相和软磁相的磁矩反转相对独立, 磁滞回线的矩形度和磁

能积进一步恶化, 磁相由交换弹簧磁体变为退耦合磁体. 刚性磁体变为交换弹簧磁体的第一临界厚度与硬磁相的磁晶各向异性常数的平方根成反比, 与 Kneller 的估算公式一致. 实验中各种各样的微结构极大地降低了硬磁相的有效磁晶各向异性, 导致临界厚度的实验值比理论值大很多.

参考文献

- Kneller E F, Hawig R. Exchange-spring magnet: A new material principle for permanent magnets. *IEEE Trans Magn*, 1991, 27: 3588–3560
- Skomski R, Coey J M D. Giant energy product in nanostructured two-phase magnets. *Phys Rev B*, 1993, 48: 15812–15816
- Parhofer S M, Wecker J, Kuhrt C, et al. Remance enhancement due to exchange coupling in multilayers of hard- and soft magnetic phases. *IEEE Trans Magn*, 1996, 32: 4437–4439
- Shindo M, Ishizone M, Sakuma A, et al. Magnetic properties of exchange-coupled α -Fe/Nd-Fe-B multilayer thin-film magnets. *J Appl Phys*, 1997, 81: 4444–4446
- Leineweber T, Kronmüller H J. Micromagnetic examination of exchange coupled ferromagnetic nanolayers. *J Magn Magn Mater*, 1997, 176: 145–154
- Fullerton E E, Jiang J S, Grimsditch M, et al. Exchange-spring behavior in epitaxial hard/soft magnetic bilayers. *Phys Rev B*, 1998, 58: 12193–12200
- Fullerton E E, Jiang J S, Bader S D. Hard/soft magnetic heterostructures: Model exchange-spring magnets. *J Magn Magn Mater*, 1999, 200: 392–404
- Sellmyer D J. Strong magnets by self-assembly. *Nature*, 2002, 420: 374–375
- Liu W, Zhang Z D, Liu J P, et al. Exchange coupling and remanence enhancement in nanocomposite multilayer magnets. *Adv Mater*, 2002, 14: 1832–1834
- Zhao G P, Wang X L. Nucleation, pinning, and coercivity in magnetic nanosystem: An analytical micromagnetic approach. *Phys Rev B*, 2006, 74: 012409
- Asti G, Ghidini M, Pellicelli R, et al. Magnetic phase diagram and demagnetization processes in perpendicular exchange-spring multilayers. *Phys Rev B*, 2006, 73: 094406
- Pellicelli R, Solzi M, Neu V, et al. Characterization and modeling of the demagnetization processes in exchange-coupled SmCo₅/Fe/SmCo₅ trilayers. *Phys Rev B*, 2010, 81: 184430–184440
- Bowden G J, Martin K N, Fox A, et al. The effect of inter-layer diffusion on magnetic exchange spring behaviour. *J Phys-Condens Matter*, 2008, 20: 125223
- Brown W F Jr. *Micromagnetics*. New York: Interscience, 1963. 1–100
- Goto E, Hayashi N, Miyashita T, et al. Magnetization and switching characteristics of composite thin magnetic films. *J Appl Phys*, 1965,

- 36: 2951–2958
- 16 Asti G, Solzi M, Ghidini M, et al. Micromagnetic analysis of exchange-coupled hard-soft planar nanocomposites. *Phys Rev B*, 2004, 69: 174401
- 17 Zhao G P, Zhao M G, Lim H S, et al. From nucleation to coercivity. *Appl Phys Lett*, 2005, 87: 162513
- 18 Zhao G P, Wang X L, Feng Y P, et al. Coherent rotation and effective anisotropy. *IEEE Trans Magn*, 2007, 43(6): 2908–2910
- 19 Bo N, Zhao G P, Ye L N, et al. The influence of the interface exchange coupling on demagnetization process for perpendicularly oriented FePt/ α -Fe/FePt trilayers. *Sci China-Phys Mech Astron*, 2010, 53: 1836–1841
- 20 Zhao G P, Xian C W, Yang C, et al. Analysis of the nucleation in hard/soft magnetic multilayers (in Chinese). *Sci China Ser G-Phys Mech Astron*, 2009, 39: 1728–1735 [赵国平, 鲜承伟, 杨春, 等. 硬、软磁多层膜体系成核的解析分析. *中国科学 G 辑: 物理学 力学 天文学*, 2009, 39: 1728–1735]
- 21 Takahashia Y K, Seki T O, Hono K, et al. Microstructure and magnetic properties of FePt and Fe/FePt polycrystalline films with high coercivity. *J Appl Phys*, 2004, 96: 475–481
- 22 Yang S Q, Wang H C, He S G, et al. Micromagnetic calculation of α -Fe/Nd₂Fe₁₄B nanostructured permanent multilayers (in Chinese). *Chin J Chem Phys*, 1999, 12: 44–48 [杨仕清, 王豪才, 何世光, 等. 纳米多层永磁膜 α -Fe/Nd₂Fe₁₄B 的成核场的微磁学计算. *化学物理学报*, 1999, 12: 44–48]
- 23 Aharoni A. Reduction in coercive force caused by a certain type of imperfection. *Phys Rev*, 1960, 119: 127–131
- 24 Han G B, Gao R W, Fu S, et al. Effective anisotropy between magnetically soft and hard grains in nanocomposite magnets. *Appl Phys A*, 2005, 81: 579–582
- 25 Guslienko K Y, Chubykalo-Fesenko O, Mryasov O, et al. Magnetization reversal via perpendicular exchange spring in FePt/FeRh bilayer films. *Phys Rev B*, 2004, 70: 104405
- 26 Brown W F Jr. Virtues and weaknesses of the domain concept. *Rev Mod Phys*, 1945, 17: 15–19

Nucleation fields, hysteresis loops, magnetic phase diagrams and critical thickness in hard/soft multilayers

ZHAO GuoPing^{1,2*}, GUO NaiLi¹, XIA Jing¹, DING HaoFeng¹ & Chang Jing¹

¹ College of Physics and Electronic Engineering, Sichuan Normal University, Chengdu 610068, China;

² State Key Laboratory of Electronic Thin Films and Integrated Devices, University of Electronic Science and Technology of China, Chengdu 610054, China

Magnetization distribution and hysteresis loops have been systematically investigated for various hard/soft multilayers in this paper, with the formulae for the nucleation fields and the critical thickness (where the nucleation and pinning fields detached) analytically derived. It is found that the nucleation fields equal to the pinning ones when the soft layer thickness L^s is small, accompanied by the square hysteresis loops and corresponding to the rigid magnets. As L^s increases, the pinning field detaches from the nucleation one and the hysteresis loops in the second quadrant are slant, corresponding to the exchange spring magnets. Further increase of L^s will lead to independent reversal of the magnetizations in the soft and hard layers, signifying the decoupled magnets. The critical thickness is inversely proportional to the crystalline anisotropy of the hard phase according to our analytical derivation, which is consistent with the approximate formula by Kneller. Finally, the critical thicknesses have been calculated for various hard/soft multilayers and compared with Kneller's formula as well as the experimental results, with the possible reason for the differences discussed.

micromagnetics, hard/soft magnetic multilayers, hysteresis loops, magnetic phase diagrams, critical thickness

PACS: 75.60.JK, 75.10.Hk, 75.50.Bb, 75.70.Cn

doi: 10.1360/132012-258