

FeCuCrVSiB 多层膜巨磁阻抗效应的研究*

陈卫平¹⁾²⁾ 萧淑琴²⁾ 王文静²⁾ 姜 山²⁾ 刘宜华²⁾

¹⁾ 浙江台州学院物理系, 临海 317000)

²⁾ 山东大学物理与微电子学院, 济南 250100)

(2004 年 9 月 8 日收到, 2004 年 11 月 29 日收到修改稿)

研究了结构为 $(\text{FM}/\text{SiO}_2)_3/\text{Ag}(\text{SiO}_2/\text{FM})_3$ 多层膜的巨磁阻抗(GMI)效应(这里的 $\text{FM} \equiv \text{FeCuCrVSiB}$)。多层膜采用射频溅射法沉积在单晶 Si 衬底上, 沉积过程中, 沿膜面长方向施加约 72kA/m 的磁场, 然后在不同的温度下对样品进行了退火处理。结果表明, 该多层膜样品即使在沉积态便具有相当好的软磁性能和 GMI 效应, 在 7MHz 的频率下, 最大纵向和横向巨磁阻抗比分别为 45% 和 44%。在 230℃ 下经 90min 退火处理后的样品具有最佳的 GMI 效应, 在 8.5MHz 的频率下, 最大纵向和横向巨磁阻抗比分别达到 251% 和 277%。与磁性层总厚度相同的 FeCuCrVSiB/Ag/FeCuCrVSiB 三层膜相比较, 在这种多层结构中出现的 GMI 效应更强。

关键词: 多层膜, 巨磁阻抗效应, 趋肤效应, 有效磁导率

PACC: 7550B, 7570

1. 引 言

材料的交流阻抗随着外加直流磁场的改变而发生高灵敏度变化的现象称为巨磁阻抗(giant magneto-impedance 简称 GMI)效应。利用 GMI 效应开发的器件具有灵敏度高、响应快、无磁滞、非接触、热稳定性好等优点, 因此它在高灵敏度微型磁传感器领域中有着十分诱人的应用前景^[1, 2]。自 1992 年在 CoFeSiB 软磁非晶丝中首先发现了 GMI 效应后, 基于其巨大的应用前景, 很快引起人们对软磁合金材料的 GMI 效应进行广泛而深入研究的兴趣。实验和理论研究表明, GMI 是一种经典电磁效应, 在高频下, 外加直流磁场通过改变材料的有效磁导率来改变高频电流的趋肤深度, 从而间接改变材料的阻抗。在软磁材料中, 磁导率是非常敏感的参量, 受材料的成分、磁畴结构、各向异性、制备工艺等诸多因素的影响, 所有影响材料磁导率的因素都会影响 GMI 效应, 因此研究各种因素对 GMI 效应的影响是非常有意义的。近年来, 人们对 GMI 效应的研究, 从 Co 基和 Fe 基非晶及纳米晶软磁合金细丝^[3]、薄带^[4]和薄膜^[5], 扩大到复合丝^[6]、三明治带^[7]和多层膜^[8-10]材料。另外, 随着现代信息技术的发展, 促使电子领域中的器件向

微型化、集成化方向发展, 与丝和带相比较, 薄膜容易通过光刻技术等来实现器件的微型化, 更与集成电路工艺相兼容。研究表明, 在几 μm 的单层膜中出现显著的 GMI 效应需要近百 MHz, 甚至更高频率的驱动电流, 过高的使用频率势必限制其应用范围。而多层膜则可在很低的频率范围内获得远高于同类单层膜的 GMI 效应, 因为其不需要强趋肤效应的条件^[11]。因此寻找高灵敏度的 GMI 多层膜材料, 也就成为该领域的研究热点之一。

本文详细研究了在外加磁场中, 采用射频溅射法沉积的 $(\text{FM}/\text{SiO}_2)_3/\text{Ag}(\text{SiO}_2/\text{FM})_3$ ($\text{FM} \equiv \text{FeCuCrVSiB}$) 多层膜的 GMI 效应。实验结果表明, 加磁场制备和在多层膜中插入 SiO_2 层是增强 GMI 效应的有效方法。

2. 实验方法

多层膜样品采用射频溅射法制备。溅射用的三个靶分别是烧结的 $\text{Fe}_{71.5}\text{Cu}_1\text{Cr}_{2.5}\text{V}_4\text{Si}_{12}\text{B}_9$ (FeCuCrVSiB) 合金 SiO_2 和 Ag 片。溅射时高频输入功率为 240W。靶和衬底均采用水冷。溅射样品室的本底真空度为 5×10^{-4} Pa, 溅射期间通入纯度为 99.999% 的 Ar 气,

* 山东省优秀中青年科学家科研奖励基金和山东大学青年基金资助项目。

并使 Ar 气压稳定在 1.3Pa. 衬底采用 0.5mm 厚的单晶 Si 片, FeCuCrVSiB, SiO₂ 和 Ag 的溅射速率分别为 0.2nm/s, 0.04nm/s 和 0.37nm/s. 多层膜的结构可表示为 (FM/SiO₂)₃/Ag(SiO₂/FM)₃, 其中 FM 代表 FeCuCrVSiB 铁磁层, 图 1 给出了该结构示意图 (a) 为俯视图 (b) 为截面图. 铁磁层和 SiO₂ 层的厚度分别为 1 μ m 和 0.04 μ m, 它们的长均为 10mm, 宽均为 3mm. 中心 Ag 层的厚度为 2 μ m, 长 15mm, 宽 0.3mm, 在 Ag 层的两端引出电极. 样品的每一层形状由放在衬底上的掩模板决定. 在沉积样品的过程中, 在衬底平面内沿样品长边方向(纵向)施加约 72kA/m 的静磁场. 制成的样品在约 1 \times 10⁻³ Pa 的真空系统中进行退火处理, 退火温度分别为 200 $^{\circ}$ C, 230 $^{\circ}$ C, 250 $^{\circ}$ C, 300 $^{\circ}$ C, 退火时间均为 90min. FeCuCrVSiB 膜的磁特性采用振动样品磁强计 (VSM) 测量. FeCuCrVSiB 膜的结构由 x 射线衍射测定. 样品的阻抗用 HP4192A 阻抗分析仪测量, 测试电流幅值稳定在 10mA, 频率范围为 10kHz—13MHz, 电流沿着样品的长方向. 外加直流磁场由一对直径为 30cm 的 Helmholtz 线圈提供, 磁场的变化范围是 -6kA/m—6kA/m. 外加直流磁场分别在膜面内与电流方向平行或垂直(简称纵向场与横向场). 为减少地磁场的影响, Helmholtz 线圈放置的方向是使其产生的磁场与地磁场垂直. 所有的测量均在室温下进行.

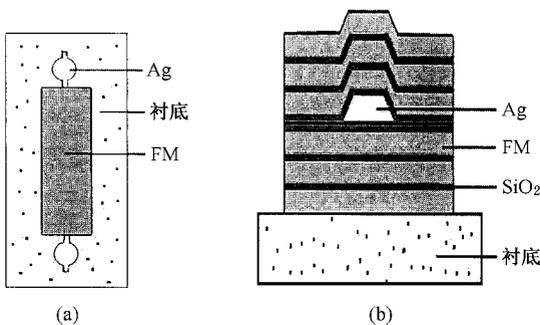


图 1 多层膜样品的结构示意图

3. 实验结果与讨论

x 射线衍射实验结果表明, 沉积态和退火态的 FeCuCrVSiB 膜均为非晶结构. 磁特性和阻抗测量表明, 对未加磁场沉积的样品软磁性能较差, 基本上没有观测到 GMI 效应. 对加磁场制备的样品, 其软磁性能得到明显改善, 即便在沉积态也能产生较大的 GMI 效应. 对加磁场沉积的样品经退火处理后的阻

抗测量表明, 230 $^{\circ}$ C 退火 90min 为最佳退火条件, 其 GMI 效应最大. 下面着重讨论在最佳退火条件下样品的 GMI 效应.

图 2 给出了在不同制备条件下获得厚度为 6 μ m 的 FeCuCrVSiB 单层膜的磁滞回线. 图 2(a) 是无磁场沉积态样品的磁滞回线, 图 2(b) 是加磁场沉积的样品在沉积态 (asd) 和最佳退火态 (ann) 的磁滞回线. 从图中可以看出, 加磁场沉积明显改善了材料的软磁性能, 使材料的矫顽力从 1080A/m 降到 64A/m. 经 230 $^{\circ}$ C 退火处理后样品的软磁性能进一步得到优化, 由于我们测量仪器的限制, 已测不出其矫顽力的精确值. 这表明通过适当的退火处理, 使沉积过程中在膜内产生的应力得到释放, 因而进一步提高了材料的软磁性能.

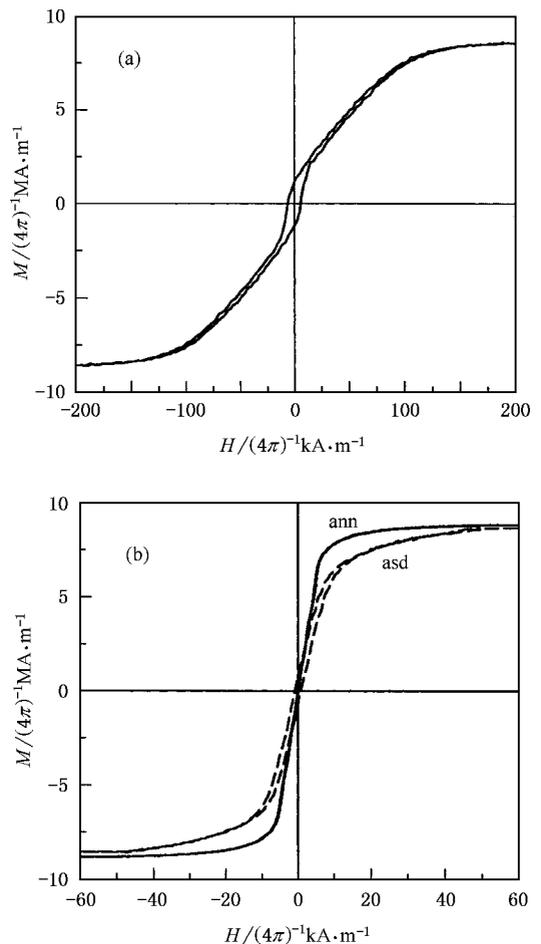


图 2 在不同制备条件下的 FeCuCrVSiB 单层膜的磁滞回线

图 3 给出了加磁场沉积态多层膜样品, 在 7MHz 的频率下, 纵向(图中用 LMI 表示)和横向(图中用 TMI 表示)巨磁阻抗比 $\Delta Z/Z_m = (Z_H - Z_m)/Z_m$ 随外加直流磁场 H 的变化关系, 其中 Z_H 和 Z_m 分别表

示外加直流磁场为 H 和 6kA/m 时样品的阻抗值. 这里只给出正向磁场的结果, 外加磁场为负时与正磁场的结果相同, 即巨磁阻抗比曲线对磁场是对称的. 由图可见, 这种即使在沉积态的多层膜也可以获得显著的 GMI 效应. 最大纵向和横向磁阻抗比分别达到 45% 和 44% . 在相同工艺条件下制备的沉积态三层膜 FeCuCrVSiB/Ag/FeCuCrVSiB 中没有观测到明显的 GMI 效应. 因而在沉积态有这么大的 GMI 比, 可归于材料的优异软磁性能和薄膜的多层结构.

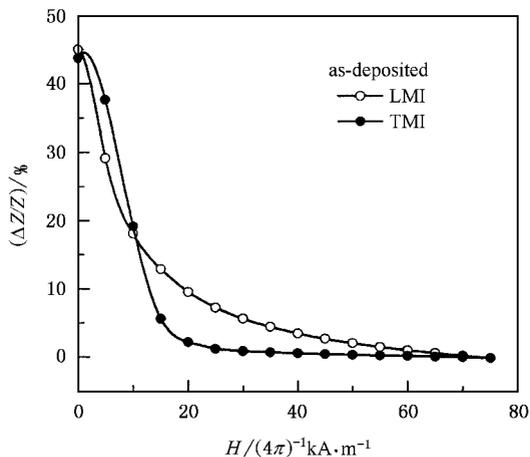


图3 沉积态样品在 7MHz 频率下纵向(LMI)和横向(TMI)巨磁阻抗比随磁场 H 的变化关系

图4(a)(b)分别给出几个典型交流电流频率下, 加磁场沉积样品在最佳退火态的巨磁阻抗比 $\Delta Z/Z_m$ 随外加纵向和横向直流磁场(分别用 H_L 和 H_T 表示)的变化关系. 由于曲线对正负磁场是对称的, 因此在这里也只给出正向磁场的结果. 从图4(a)可以看出, 在频率 13MHz 以下, 纵向磁阻抗比随着磁场的增加而单调下降, 当频率升高到 13MHz 时, 在 0.4kA/m 的磁场下出现了一个小峰值, 这是样品受磁各向异性横向分量影响的结果, 表明样品沿横向有一个约为 0.4kA/m 的各向异性场分量 H_k , 这个横向各向异性场分量主要是由残存的内应力产生的, 说明在样品制备过程中, 虽然有外加纵向磁场的作用, 并且样品经过了退火处理, 但应力感生各向异性仍然存在. 较强的应力感生各向异性是 Fe 基非晶软磁合金的特点, 它与材料的正磁致伸缩系数有关. 理论分析表明^[11], 磁阻抗峰的出现与探测电流的频率有关. 在低频下, 样品的磁化过程主要由畴壁位移决定, 这时外加磁场使有效磁导率单调下降, 所以低频下磁阻抗不会出现峰值. 随着频率升高, 畴壁位移

将被涡流阻尼掉, 磁矩的转动则对磁化过程起决定作用, 这时当外场 $H = H_k$ 时, 样品的横向磁导率达到最大值, 因而形成了 GMI 比的峰值. 从图4(b)可以看到, 在频率 8.5MHz 以下, 横向磁阻抗比随磁场增加而单调下降, 没有出现峰值. 在 8.5MHz 时, 在 0.2kA/m 的磁场下曲线有一个不明显的突起, 说明畴壁位移的弛豫频率可能在 8.5MHz 附近. 在 13MHz 时, 在 0.2kA/m 磁场下, 曲线出现了较明显的峰值, 说明沿样品纵向有一个约为 0.2kA/m 的各向异性场分量, 该各向异性场包含应力感生各向异性和形状各向异性.

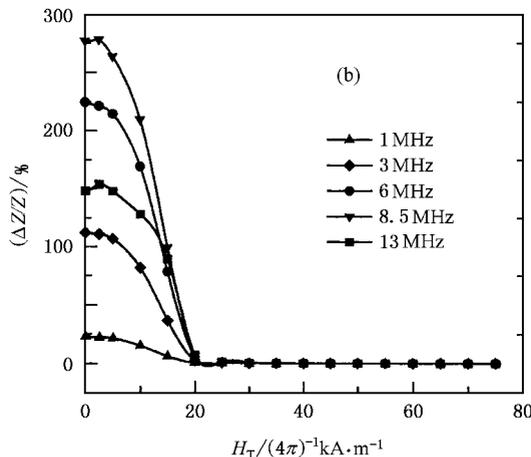
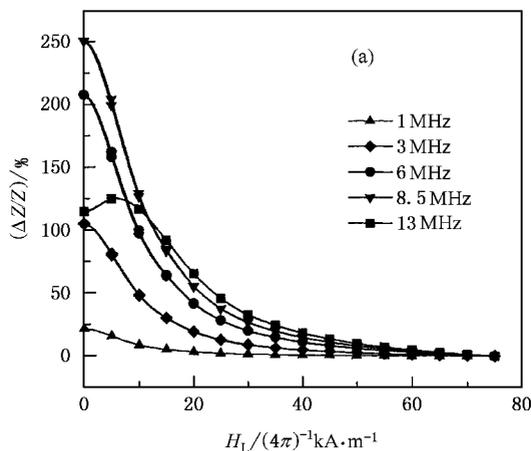


图4 退火样品在不同的频率下, 纵向(a)与横向(b) GMI 比随外加磁场 H 的变化关系

图4的结果说明, 经退火处理后样品的 GMI 比得到显著提高, 在 8.5MHz 的频率下, 最大纵向 GMI 比为 251% , 最大横向 GMI 比为 277% . 这些结果远远高于同类磁性层总厚度和 Ag 层厚度分别均相同的三层膜, 是 Dai 等人^[9]在 FeCuCrVSiB/Ag/FeCuCrVSiB 三层膜中获得的最大 GMI 比的 2 倍多. Hika 等

人^[12]的理论分析表明,当 $d_c \sigma_c / 2 \gg d_m \sigma_m$ 时, Z_j 的低频(相对于趋肤效应)展开式存在一简单形式

$$\begin{aligned} Z_j &= R_c - i\alpha(d_m/2b)\lambda\mu_{ef}, \\ R_c &= (\lambda/2)bd_c\sigma_c, \end{aligned} \quad (1)$$

式中, d_c 和 d_m 分别是导电层和每一磁性层的厚度, σ_c 和 σ_m 分别是导电层和磁性层的电导率, Z_j 是内禀表面阻抗, b 是磁性层的宽度, λ 是磁性层的长度, μ_{ef} 是磁性层的横向有效磁导率. 由(1)式可以解释多层膜中出现更强 GMI 效应的现象. 在多层结构中, 内部中间高电导率的导体层为交变电流提供了主要通路, 从而减小了交变电流的损耗. 外部包覆的磁性层为交变电流感应的磁通量提供了闭合回路, 从而提高了磁性层的磁导率. SiO_2 层则起着非常重要的作用: 一是 SiO_2 层防止 Ag 层和磁性层间的原子扩散, 提高 Ag 层的电导率; 二是减小磁性层内部在高频下的涡流损耗, 提高了多层膜在高频下的有效磁导率, 因此多层结构比三层结构具有更高的 GMI 效应. 从图 4 还可以看出, 多层膜样品的纵向 GMI 比在 5.6kA/m 的磁场下已趋饱和, 而横向 GMI 比则在更小的磁场(约 1.6kA/m)下达到饱和. 多层膜的 GMI 比达到饱和的磁场也明显低于 Dai 等人报道的结果. 多层膜阻抗比的饱和磁场降低的原因主要与沉积过程中加磁场使样品软磁性能优化和磁性层中插入 SiO_2 层减小了涡流损耗这两个因素有关.

比较图 4(a)和图 4(b)可以发现, 样品的横向 GMI 优于纵向 GMI. 横向的 GMI 的饱和磁场明显低于纵向. 这些现象可以用 Sommer 和 Chien 的观点^[13]来解释. 第一, 在多层膜中, 由于外部包覆的磁性层为交变电流产生的磁场提供了理想的闭合回路, 大大减小了磁通量的泄漏和薄膜边缘的杂散磁场, 使这种情况下横向退磁场的影响变得很弱. 第二, 在纵向 GMI 测量中, 交流磁场 H_{ac} 垂直于直流磁场 H_{ex} , 因此是横向磁导率对纵向 GMI 效应产生贡献. 但在横向测量的情况中, H_{ex} 平行于 H_{ac} , 是纵向磁导率对横向 GMI 效应产生贡献. 由于在纵向情况下, H_{ex} 使交变电流产生的圆周方向的磁力线朝纵向倾斜, 所以样品的磁导率达到饱和要比横向慢, 因而导致纵向 GMI 比达到饱和要比横向慢.

图 5 是沉积态和退火态样品的纵向和横向 GMI 比 $(\Delta Z/Z)_m$ 随频率的变化关系. 这里 GMI 比定义为 $(\Delta Z/Z)_m = (Z_0 - Z_m)/Z_m$, 其中 Z_0 和 Z_m 分别表示外加直流磁场为 0 和 6kA/m 时样品的阻抗值. 图 5

显示了沉积态样品的纵向和横向 GMI 比随频率而变化的曲线几乎是重迭的. 所有的阻抗频谱曲线均存在一个临界频率 f^* , 在这个频率下, 样品开始表现出明显的磁阻抗特性. 当 $f > f^*$ 时, 样品的 GMI 比随着频率的增加而快速增加, 这是由于趋肤效应增强的结果. 当频率增加到一个特征频率 f_m 时, GMI 比达到最大值. 沉积态样品的临界频率 f_1^* 约为 1.1MHz, 退火态样品的临界频率 f_2^* 约为 300kHz. 样品经退火处理后, 临界频率明显降低, 这是由于退火后材料的软磁性能变好, 磁导率提高的结果. 退火处理也改变了样品的特征频率 f_m , 沉积态样品的特征频率 f_{m1} 约为 7MHz, 退火态样品的特征频率 f_{m2} 约为 8.5MHz. 这样低的临界频率和特征频率只有在厚度超过 20 μm 的薄带或细丝材料中才可能得到, 在厚度只有几个 μm 的单层膜中是永远不可能得到的^[9], 这充分显示了多层膜的优势. 当频率 $f > f_m$ 时, 样品的 GMI 比则随着频率的进一步增加而快速下降, 这是由于高频下磁性层的涡流损耗增加使材料磁导率的下降成为影响 GMI 效应的主要因素. 可以想到当频率足够高时由于磁导率变得很小而不再随磁场的变化而变化, 此时 GMI 效应将消失. 因测试仪器的限制, 我们未能观测到高频 GMI 效应的消失点.

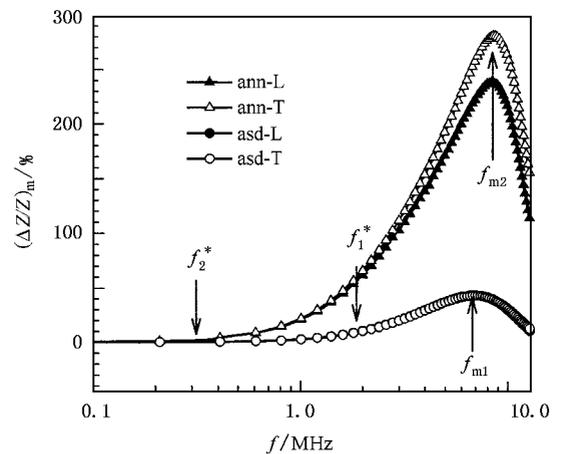


图 5 沉积态和退火态样品纵向与横向 GMI 比随频率的变化关系

4. 结 论

加磁场沉积的 $(\text{FM}/\text{SiO}_2)_3/\text{Ag}(\text{SiO}_2/\text{FM})_3$ ($\text{FM} \equiv \text{FeCuCrVSiB}$) 多层膜, 在沉积态便具有优良的软磁性能和 GMI 效应. 加磁场沉积明显改善了材料的软磁性能, 使材料的矫顽力从 1080A/m 降低到 64A/m, 沉

积态样品在 7MHz 的交变电流频率下获得的最大纵向和横向 GMI 比分别为 45% 和 44%。加磁场沉积的多层膜在最佳条件下经 230℃, 90min 退火处理后, 软磁性能进一步得到优化, 尤其在低频范围内 GMI 效应显著增强。在 8.5MHz 的频率下, 最大纵向 GMI 比达到 251%, 最大横向 GMI 比达到 277%, 纵向 GMI 比在 5.6kA/m 的磁场下趋于饱和, 横向则在更

低的 1.6kA/m 磁场下趋于饱和。多层膜的 GMI 比大大高于 FeCuCrVSiB/Ag/FeCuCrVSiB 三层膜, GMI 比的饱和磁场明显降低。其主要原因是加磁场沉积样品提高了铁磁层的软磁性能和插入 SiO₂ 层降低了涡流损耗, 提高了材料在高频下的有效磁导率。研究结果表明, 多层结构的非晶软磁合金膜的 GMI 特性更优于三层结构膜。

- [1] Mohri K *et al* 2001 *Sens. Actuators A* **91** 85
- [2] Panina L V, Makhnovskiy D P and Mohri K 2004 *J. Magn. Mater.* **272-276** 1452
- [3] Mandal K, Puerta S, Vazquez M and Hernando A 2000 *Phys. Rev. B* **62** 6598
- [4] He J *et al* 1999 *Acta Phys. Sin.* **48** S159 (in Chinese) [何峻等 1999 物理学报 **48** S159]
- [5] Xiao S Q *et al* 2000 *Phys. Rev. B* **61** 5734
- [6] Li X P *et al* 2003 *J. Appl. Phys.* **94** 7629
- [7] Amalou F and Gijs M A M 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 1364
- [8] Antonov A S, Buznikov N A and Rakhmanov A L 2003 *J. Magn. Mater.* **258** 192
- [9] Dai Y Y *et al* 2000 *J. Phys: Condens Matter* **12** 10591
- [10] Wang A L *et al* 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 905 (in Chinese) [王艾玲等 2004 物理学报 **53** 905]
- [11] Panina L V *et al* 1995 *IEEE Trans. Magn.* **31** 1249
- [12] Hika K, Panina L V and Mohri K 1996 *IEEE Trans. Magn.* **32** 4594
- [13] Sommer R L and Chien C L 1996 *Phys. Rev. B* **53** 5982

Study on the giant magnetoimpedance effect of FeCuCrVSiB multilayered films *

Chen Wei-Ping¹⁾²⁾ Xiao Shu-Qin²⁾ Wang Wen-Jing²⁾ Jiang Shan²⁾ Liu Yi-Hua²⁾

¹⁾ Department of Physics, Zhejiang Taizhou College, Linhai 317000, China

²⁾ School of Physics and Microelectronics, Shandong University, Jinan 250100, China

(Received 8 September 2004 ; revised manuscript received 29 November 2004)

Abstract

Giant magneto-impedance (GMI) effect of a multilayered film with the structure of (FM/SiO₂)₃/Ag(SiO₂/FM)₃ (FM ≡ FeCuCrVSiB) was studied. The multilayered film was deposited by radio frequency sputtering onto a single crystal Si substrate. A constant magnetic field of about 72kA/m was applied along the longitudinal direction of the film plane during deposition process, and then the samples were annealed at different temperatures. Results obtained show that the multilayered film has good soft magnetic properties and GMI effect even though in the as-deposited state. The maximum magnetoimpedance ratios are about 45% and 44% in longitudinal and transverse cases, respectively. After the samples were annealed at 230℃ for 90min, the best GMI effect could be obtained. The maximum longitudinal and transverse magnetoimpedance ratio up to 251% and 277% were obtained at the frequency of 8.5MHz, respectively. The GMI effect in this multilayered structure is much stronger than the one in FeCuCrVSiB/Ag/FeCuCrVSiB sandwiched film with the same thickness of total magnetic layers.

Keywords : multilayered film, giant magnetoimpedance effect, skin effect, effective permeability

PACC : 7550B, 7570

* Project supported by the Foundation for Outstanding Young Scientists of Shandong Province, China, and the Young Teacher Foundation of Shandong University, China.