

FeCuCrVSiB 单层和多层膜的横向巨磁阻抗效应^{*}

王文静¹⁾ 袁慧敏¹⁾ 姜 山¹⁾ 萧淑琴^{1)†} 颜世申¹⁾

1) (山东大学物理与微电子学院, 济南 250100)

2) (山东大学晶体材料国家重点实验室, 济南 250100)

(2006 年 2 月 27 日收到, 2006 年 4 月 10 日收到修改稿)

用射频溅射法制备了 $\text{Fe}_{71.5}\text{Cu}_1\text{Cr}_{2.5}\text{V}_4\text{Si}_{12}\text{B}_9$ 单层膜和结构为 $(F/S)_3/M(F/S)_3$ 的多层膜, 在制备过程中加 72kA/m 的纵向磁场. 研究表明在制备过程中加磁场明显改善了材料的软磁性能, 降低了材料的矫顽力. 将样品经不同温度退火热处理后, 发现经 230°C 退火 1.5h 的单层膜和多层膜具有最佳的软磁性能和最大的磁阻抗效应, 单层膜最大横向磁阻抗比为 37.5%, 多层膜最大横向磁阻抗比高达 277%. 通过比较单层和多层膜磁阻抗效应随频率和磁场的变化, 发现多层膜具有较低的磁阻抗效应的临界频率和峰值特征频率, 和较大的磁阻抗变化率, 而且有较低的横向磁阻抗效应的饱和场.

关键词: 铁基合金, 多层膜, 巨磁阻抗效应

PACC: 7550B, 7570, 7220M

1. 引 言

巨磁阻抗(GMI)效应是指软磁材料的交流阻抗随外加直流磁场的变化而变化的现象, 它具有高灵敏度、无磁滞、响应快、温度稳定性好和饱和磁场低等特点. 近年来, 随着磁传感器在自动控制、机器人等领域的广泛应用, GMI 效应受到人们越来越多的关注. 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, 特别是长度只有几毫米的小尺寸细丝^[1,2]. 目前对 GMI 效应的研究已扩大到薄带^[3-6]、薄膜^[7-9]和多层膜^[10-12], 材料也进一步扩大到铁基非晶和纳米晶软磁合金. 对 GMI 效应来说, 外加直流磁场通过改变材料的磁导率改变材料的阻抗, 而软磁材料的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, 因此研究各种影响磁导率的因素对 GMI 效应的影响是非常有意义的. 铁基纳米晶软磁合金薄膜是各类微型磁传感器、高密度磁记录头等磁性元件的一种关键材料, 特别是早期开发的 FeCuNbSiB 合金材料具有非常优异的软磁性能^[6], 被称为 FINEMET, 但是, Nb 的成本高. 为了降

低成本, 采用更便宜的 Cr 和 V 代替 Nb 开发的新型软磁材料 FeCuCrVSiB 合金^[11,13], 同样具有优良的软磁性能, 但性价比提高了, 是研究 GMI 效应的优良材料. 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, 薄膜 GMI 传感器具有批量生产及与半导体集成电路的兼容能力, 能大大降低生产成本, 因此研究软磁薄膜材料中的巨磁阻抗效应具有重要的实用价值. 本文研究了 $\text{Fe}_{71.5}\text{Cu}_1\text{Cr}_{2.5}\text{V}_4\text{Si}_{12}\text{B}_9$ 的单层膜和结构为 $(F/S)_3/M(F/S)_3$ 的多层膜的磁特性和 GMI 效应, 这里 F, S, M 分别代表 $\text{Fe}_{71.5}\text{Cu}_1\text{Cr}_{2.5}\text{V}_4\text{Si}_{12}\text{B}_9, \text{SiO}_2$ 和 Ag.

2. 实验方法

样品用射频溅射法制备. 在溅射过程中, 分别沿样品长边方向(纵向)施加 72kA/m 静磁场和不加磁场(分别称为 MF 样品和 NMF 样品). 三个靶的成分分别为 $\text{Fe}_{71.5}\text{Cu}_1\text{Cr}_{2.5}\text{V}_4\text{Si}_{12}\text{B}_9$ 合金、 SiO_2 和 Ag. 靶和衬底均采用水冷. 本底真空为 5×10^{-4} Pa, 溅射过程中通入纯度为 99.999% 的 Ar 气, 并使 Ar 气压稳定在 1.3Pa. 衬底采用 0.5mm 厚的单晶 Si 片. 在多层膜

^{*} 国家自然科学基金(批准号: 30234010)和 973 项目(批准号: 2001CB610603)资助的课题.

[†] E-mail: xsq@sdu.edu.cn

中,铁磁层和 SiO_2 层的厚度分别为 $1\mu\text{m}$ 和 $0.04\mu\text{m}$, 它们的长均为 10mm , 宽为 3mm ; Ag 层的厚度为 $2\mu\text{m}$, 长 15mm , 宽 0.3mm , 在 Ag 层的两端引出电极. 样品的每一层形状由掩模板决定. 单层膜厚为 $6\mu\text{m}$, 长 10mm , 宽 3mm . 制成的样品在约 $1.3 \times 10^{-3} \text{ Pa}$ 的真空系统中进行退火处理, 退火温度分别为 100°C , 150°C , 200°C , 230°C , 250°C , 退火时间为 1.5h . 用振动样品磁强计 (VSM) 测量薄膜的磁特性, X 射线衍射测量结构, HP4192A 阻抗分析仪测量样品的阻抗和磁导率. 测量阻抗时, 交变电流沿着样品的长方向, 幅值稳定在 10mA , 频率范围为 10kHz — 13MHz . 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 . 直流磁场在膜面内垂直薄膜长方向, 对应的磁阻抗抗效应称为横向磁阻抗效应. 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. GMI 比定义为 $\Delta Z/Z = 100 \times [Z(H) - Z(H_{\text{max}})] / Z(H_{\text{max}})$, 其中 $H_{\text{max}} = 6\text{kA/m}$.

3. 实验结果与讨论

X 射线衍射实验结果表明, 制备态和退火态的 FeCuCrVSiB 膜均为非晶结构. 图 1 为在制备过程中加磁场 (MF) 和不加磁场 (NMF) 的单层膜溅态样品的磁滞回线. 从图中可以看出, 加磁场制备的薄膜软磁性能明显优于不加磁场制备的薄膜, 其矫顽力为 64A/m , 远小于不加磁场制备的薄膜的矫顽力 560A/m , 这表明在制备过程中加磁场可以改善材料的软磁性能.

图 2 给出了单层膜最大 GMI 比随退火温度的变化趋势. 从图中可以看出, 随退火温度的升高, 最大横向 GMI 比先下降然后逐渐升高, 在 230°C 时达到最大值, 然后再迅速下降. 这是由于当退火温度较低时, 不能释放薄膜在制备过程中产生的内应力, 但由于薄膜与衬底的热膨胀系数不同引起薄膜热应力增大, 因此导致总的残余应力变大, 降低了材料的软磁性能, 使得薄膜 GMI 比减小; 当退火温度足够高时, 薄膜在制备过程中形成的内应力被充分释放, 这时热应力的变化对总的残余应力并不起决定作用, 起决定作用的应该是内应力^[14], 从而总的应力逐渐减小, 应力对畴壁的阻碍作用也减小, 提高了材料的软磁性能, 使得薄膜的 GMI 比变大, 最大横向 GMI

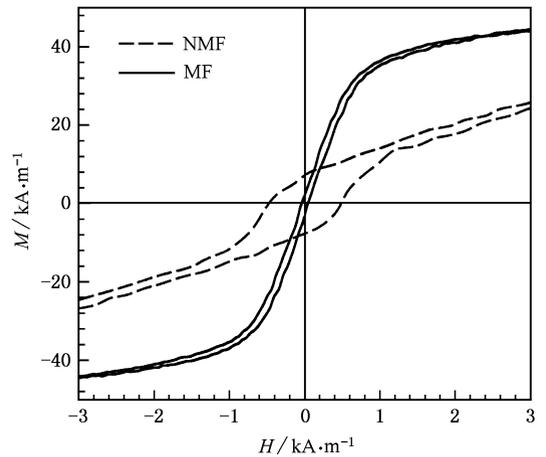


图 1 不同制备条件下, FeCuCrVSiB 单层膜的磁滞回线

效应从制备态的 20% 增大到 37.5% . 随着退火温度的继续升高, 材料可能进行纳米晶相成核过程, 薄膜内部磁晶各向异性变大, 从而破坏了薄膜结构的均匀性, 软磁性能降低, 使得薄膜 GMI 比迅速下降到 15% . Dai 等人^[13] 在不加磁场的条件下制备了 FeCuCrVSiB 单层膜, 在 400°C 退火 20min 的样品中得到最大横向磁阻抗效应, 为 25% , 远小于我们的结果. 这可能是由于制备过程中加纵向磁场, 影响材料在横向磁场下的磁导率, 使得横向磁阻抗效应变大.

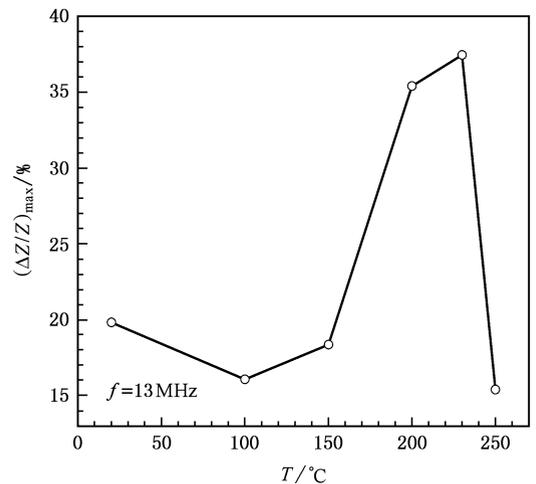


图 2 FeCuCrVSiB 单层膜最大 GMI 比随退火温度的变化曲线

在不同频率下, 经 230°C 退火的单层膜阻抗变化率和有效磁导率随横向外加直流磁场的变化如图 3 所示. 比较 (a) (b) 可以看出, 二者均为双峰结构, 峰值在 $\pm 1.2\text{kA/m}$ 附近, 在磁场小于 1.2kA/m 范围内磁导率和阻抗变化率随磁场缓慢上升. 在磁场为 $\pm 2\text{kA/m}$ 附近, 磁导率下降迅速, 阻抗变化率曲线也

陡直下降,说明样品的主要磁化是由磁化矢量的转动造成的.双峰结构是由于薄膜具有纵向各向异性,该各向异性是由磁场感应各向异性、应力各向异性和形状各向异性的综合效应所致,峰值位置对应着各向异性场.

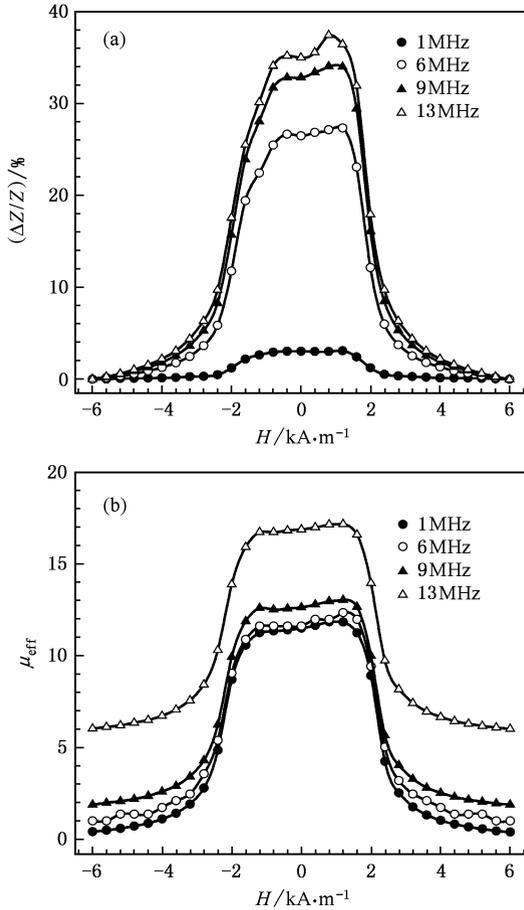


图 3 单层膜 GMI 比和有效磁导率随外加横向磁场的变化曲线 (a) GMI 比 (b) 有效磁导率

图 4 给出了经 230°C 退火 1.5h 后的单层膜和多层膜 (F/S)₃/M/(F/S)₃ 的横向 GMI 比随频率的变化关系曲线,可以看出多层膜 GMI 比远远大于单层膜,最大 GMI 比达到 277%.从图中我们看到两条曲线都存在一个临界频率 f_1^* 表示多层膜的临界频率(约 400kHz), f_2^* 表示单层膜的临界频率(约 2MHz),当交变电流的频率高于该临界值,样品开始出现明显的 GMI 效应.在单层膜中,当频率等于 f_2^* 时有 $\frac{a}{2\delta}$

$= 1$ 其中 a 为样品的厚度, $\delta = \sqrt{\frac{\rho}{\pi\mu_r\mu_0 f_2^*}}$ 为样品在频率为 f_2^* 时的趋肤深度, $\mu_0 = 4\pi \times 10^{-7}$, μ_r 为材料的有效磁导率,当频率高于 f_2^* 时,趋肤效应开始发

挥作用,随着频率的升高,GMI 比逐渐变大.从图 3 可以看出 $f_1^* < f_2^*$,即多层膜比单层膜显著降低了 GMI 效应的临界频率.另外,在特征频率 $f_{1m} = 8.6\text{MHz}$ 下,多层膜的 GMI 比达到最大值 277%,高于该频率 GMI 比下降,在如此低的频率下就达到峰值的现象,只有在厚度或直径超过 20 μm 的薄带或细丝材料中才可能发生,在厚度只有几微米的单层膜样品中是很难观察到的.这是由于在多层膜中,中间导体层为电流的主要通路,Ag 的高导电率大大减小了对交流电流的阻力;另一方面,外部磁性层形成闭合磁路,减小了杂散磁场和退磁场的影响,提高了材料的磁导率,所以多层膜既具有导体层的高导电性,又具有磁性层的优异软磁性能,因而使得趋肤效应起作用的频率大幅度降低.同时在多层膜中, SiO₂ 隔离层可以防止磁性层与导体层之间的原子扩散,对导体层起到保护作用;它还可以减小磁性层中的涡流损耗.而在单层膜中,膜本身既是交变电流的通路,又是交变磁场的通路,材料的高电阻率再加上杂散磁场和退磁场的影响,限制了 GMI 的提高.因此多层膜的临界频率和特征频率都远低于单层膜,这对降低巨磁阻抗材料的使用频率,提高 GMI 效应有重要意义.在薄膜制备过程中加磁场可以改善材料的软磁性能,显著提高磁阻抗效应,而多层膜结构不仅使临界频率大幅下降,而且大大提高了 GMI 效应,这些结果都可使应用 GMI 效应的外围电路简化,高频噪声降低,有利于扩大 GMI 效应的应用范围.

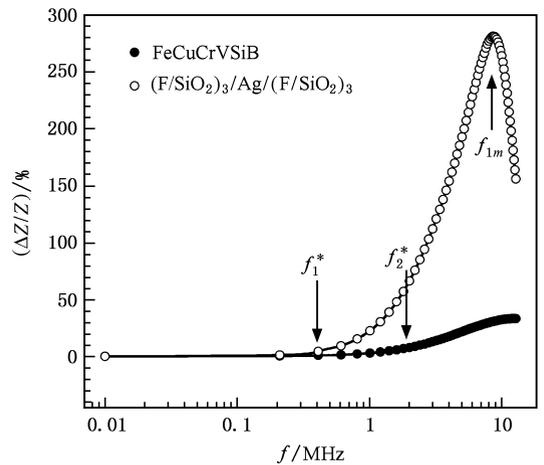


图 4 单层膜与多层膜横向 GMI 比随频率的变化曲线

不同频率下多层膜 GMI 比随横向磁场的变化趋势如图 5 所示.从图 5 可以看出,在频率低于

9MHz 时, GMI 比曲线为单峰结构, 当频率达到 13MHz 时, 在磁场为 $\pm 0.2\text{kA/m}$ 处曲线出现微小的峰值, 这说明样品沿纵向有一个 0.2kA/m 的各向异性场. 通常在低频下, 薄膜的磁化过程主要以畴壁位移为主, 这时有效磁导率随外加磁场单调下降, 所以低频下阻抗变化不会出现峰值. 随着频率的升高, 涡流损耗的增加阻尼了畴壁的位移, 磁矩的转动将对磁化起主要作用, 在低场下, 磁矩向外加磁场方向转动, 磁导率缓慢升高, 当外加磁场的量值等于纵向各向异性场的大小时, 磁矩迅速转向外场方向, 磁导率达到最大值. 随着外加磁场的继续升高, 磁导率快速下降, 从而在纵向各向异性场处阻抗变化出现峰值. 比较图 5 和图 3(a) 可以看出多层膜纵向各向异性小于单层膜, 而且多层膜横向阻抗变化的饱和场远低于单层膜. 这可能是由于, 在单层膜中, 不仅存在纵向磁场感应各向异性, 还受到形状各向异性的影响, 使得纵向为薄膜的易磁化方向, 因此薄膜纵向各向异性比较大. 横向阻抗变化的饱和场高, 而在多层膜中, 外部磁性层形成闭合回路, 减小了杂散场和退磁场的影响, 因此使得薄膜的易磁化方向为横向, 降低了饱和场, 但是由于受到纵向感应各向异性的影响, 使得在多层膜中各向异性的方向与横向有一定的夹角^[11], 所以多层膜的纵向各向异性比较小.

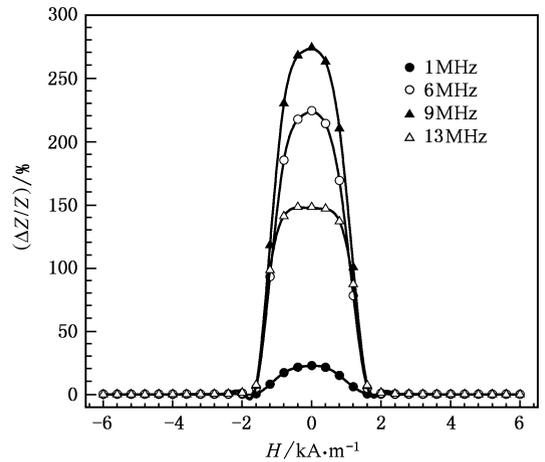


图 5 不同频率下, 多层膜 GMI 比随横向磁场的变化趋势

4. 结 论

我们的结果表明在射频溅射过程中加磁场可明显改善 FeCuCrVSiB 薄膜的软磁性能, 降低材料的矫顽力, 得到 230°C 退火 1.5h 的单层膜最大横向阻抗比为 37.5%; 发现多层膜产生磁阻抗效应的临界频率和达到最大值的特征频率都远低于单层膜, 而且大幅提高了磁阻抗效应, 最大横向 GMI 比达到 277%, 横向 GMI 效应的饱和场也大大降低.

- [1] Mohri K, Kohzawa T, Kawashima K, Yoshida H, Panina L V 1992 *IEEE Trans. Magn.* **28** 3150
- [2] Montero Ó, García D, Raposo V, Chiriac H, Íñiguez J 2005 *J. Magn. Magn. Mater.* **290-291** 1075
- [3] Kurlyandskaya G V, Sánchez M L, Hernando B, Prida V M, Gorria P, Tejedor M 2003 *Appl. Phys. Lett.* **82** 3053
- [4] Kraus L, Malátek M, Postava K, Janičkovič D 2005 *J. Magn. Magn. Mater.* **290-291** 1131
- [5] Chen C, Luan K Z, Liu Y H, Mei L M 1996 *Phys. Rev. B* **54** 6092
- [6] He J, Guo H Q, Shen B G, He K Y, Liu Y H, Hu J F 1999 *Acta Phys. Sin.* **8** 208
- [7] Nakai T, Abe H, Yabukami S, Arai K I 2005 *J. Magn. Magn. Mater.* **290-291** 1355
- [8] Xiao S Q, Liu Y H, Yan S S, Dai Y Y, Zhang L, Mei L M 2000 *Phys. Rev. B* **61** 5734
- [9] Wang W J, Xiao S Q, Liu Y H, Chen W P, Dai Y Y, Jiang S,

Yuan H M, Yan S S 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1821 (in Chinese)

[王文静、萧淑琴、刘宜华、陈卫平、代由勇、姜山、袁慧敏、颜世申 2005 物理学报 **54** 1821]

- [10] Delooye P, Panina L V, Mapps D J, Ueno K, Sano H 2004 *J. Magn. Magn. Mater.* **272-276** 2266
- [11] Chen W P, Xiao S Q, Wang W J, Jiang S, Liu Y H 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 2929 (in Chinese)[陈卫平、萧淑琴、王文静、姜山、刘宜华 2005 物理学报 **54** 2929]
- [12] Wang A L, Liu J T, Zhou Y S, Jiang H W, Zheng W 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 905 (in Chinese)[王艾玲、刘江涛、周云松、姜宏伟、郑 鹤 2004 物理学报 **53** 905]
- [13] Dai Y Y, Liu Y H, Xiao S Q, Zhang L, Yue L Q, Wu H Z, Zhang Y Z 2000 *Phys. Stat. Sol. (a)* **181** 413
- [14] Shen Y M, He H B, Shao S Y, Fan Z X, Shao J D 2005 *High Power Laser and Particle Beams* **17** 1812 (in Chinese)[申雁鸣、贺洪波、邵淑英、范正修、邵建达 2005 强激光与粒子束 **17** 1812]

Transverse giant magneto-impedance effect in FeCuCrVSiB single layered and multilayered films^{*}

Wang Wen-Jing¹⁾ Yuan Hui-Min¹⁾ Jiang Shan¹⁾ Xiao Shu-Qin^{1,2)†} Yan Shi-Shen¹⁾

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

2) (The State Key Laboratory of Crystal Materials , Shandong University , Jinan 250100 , China)

(Received 27 February 2006 ; revised manuscript received 10 April 2006)

Abstract

Magnetic properties and giant magneto-impedance (GMI) effects of FeCuCrVSiB single layered and multilayered films with Ag as the central layer and SiO₂ as the isolating layers , which were prepared by radio frequency sputtering without field and with a magnetic field about 72kA/m along the films length , are investigated. The hysteresis loops of single layered films show that the samples deposited with a magnetic field possess excellent soft magnetic properties and the coercive force is only about 64A/m. After annealing at an optimum temperature of 230°C for 1.5h , the maximum GMI ratios of single layered films are 37.5% in transverse field at the frequency of 13MHz , and the maximum GMI ratios of multilayered films is 277% at the frequency of 8.6MHz. The frequency dependence of the magneto-impedance indicates that the GMI effect in multilayered films can be very large even at relatively low frequencies.

Keywords : Fe-based alloy , multilayered films , giant magneto-impedance effect

PACC : 7550B , 7570 , 7220M

^{*} Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 10234010) and the Project 973 (Grant No. 2001CB610603).

[†] E-mail : xsq@sdu.edu.cn