

Эффекты наноструктурирования в магнитомягких пленках и пленочных элементах с магнитным импедансом

© В.О. Васьковский,¹ П.А. Савин,¹ С.О. Волчков,¹ В.Н. Лепаловский,¹ Д.А. Букреев,² А.А. Бучкевич¹

¹ Уральский федеральный университет,
620002 Екатеринбург, Россия

² Восточно-Сибирская государственная академия образования,
664011 Иркутск, Россия
e-mail: vladimir.lepalovskiy@usu.ru

(Поступило в Редакцию 28 февраля 2012 г.)

Исследованы закономерности процессов перемагничивания и магнитный импеданс (МИ) пленок и пленочных элементов на основе сплавов Fe₁₉Ni₈₁ и Fe_{72.5}Cu_{1.1}Nb_{1.9}Mo_{1.5}Si_{14.2}B_{8.7} с варьируемыми толщиной, температурой термообработки и количеством тонких прослоек Cu. Установлены зависимости коэрцитивной силы и величины МИ от указанных параметров. При этом показано, что слоистое структурирование является эффективным способом улучшения функциональных характеристик элементов с МИ. В элементах, содержащих нанокристаллические слои Fe₁₉Ni₈₁, это связано с перестройкой магнитной структуры, а в элементах, включающих аморфные слои Fe_{72.5}Cu_{1.1}Nb_{1.9}Mo_{1.5}Si_{14.2}B_{8.7}, возможно, обусловлено уменьшением эффективного удельного электросопротивления.

Введение

Среди физических эффектов, являющихся основой современной магнитной сенсорики, важное место занимает магнитный импеданс (МИ) [1–4]. Он состоит в изменении полного сопротивления ферромагнитного проводника Z переменному току высокой частоты под действием внешнего магнитного поля H . Магнитный импеданс зависит от параметров тока возбуждения, свойств материала, геометрии проводника и становится большим при сильном скин-эффекте, когда характерный размер образца сопоставим с глубиной скин-слоя. В этой связи наиболее благоприятные условия МИ реализуются в магнитомягких лентах [5], проволоках [6] или пленках [7]. Причем последние обладают определенным технологическим преимуществом при построении интегрированных магнитных сенсоров.

Наиболее известным магнитомягким материалом, сохраняющим свои свойства в пленочном состоянии, является классический пермаллой. Однако в относительно толстых пленках этого сплава, потенциально более приемлемых для МИ-сенсоров, может реализовываться так называемое „закритическое“ магнитное состояние [8], которое характеризуется низкой магнитной проницаемостью и соответственно слабым магнитным импедансом. Другим распространенным магнитомягким материалом является аморфный сплав типа „FINEMET“. Он активно используется при получении быстрозакаленных лент с высоким МИ [1]. Пленкам этого сплава также может быть свойственно „закритическое“ состояние [9].

Образование специфической магнитной структуры, обозначаемой как „закритическое“ состояние, происходит вследствие определенного компромисса между анизотропией формы, задающей ориентацию намагниченности в плоскости пленки, и перпендикулярной магнитной анизотропией, которая соответствует ориентации намаг-

ниченности вдоль нормали к плоскости пленки. Перпендикулярная анизотропия часто связана с так называемой столбчатой микроструктурой, возникающей при формировании металлических пленок. Таким образом, блокирование „закритического“ состояния можно связать с разрушением столбчатой микроструктуры, которое представляется вероятным на пути структурирования основной пленки тонкими слоями другого материала. В литературе [9–12] имеются сведения о слоистом структурировании как способе увеличения МИ магнитомягких пленочных элементов. Однако они не носят систематического характера. Настоящая работа посвящена сопоставительному исследованию магнитных свойств пленок пермаллоя (PM) и сплава типа FINEMET (FM) в условиях их структурирования прослойками Cu, а также магнитного импеданса пленочных элементов, сформированных на основе указанных пленок.

Образцы и методика эксперимента

Пленочные образцы были получены методом ионного высокочастотного распыления на стеклянных подложках Corning в присутствии однородного магнитного поля H_t напряженностью 100 Ое. Мишенями служили диски сплавов Fe₁₉Ni₈₁, Fe_{72.5}Cu_{1.1}Nb_{1.9}Mo_{1.5}Si_{14.2}B_{8.7} и Cu. Давление рабочего газа Ar в процессе распыления составляло $2 \cdot 10^{-1}$ Па. Толщина однородных пленок изменялась в пределах 10–1000 нм. Образцы толщиной 500 нм дополнительно были подвергнуты ступенчатому вакуумному отжигу при температурах до 500°C. Выдержка при каждой температуре составляла 1 h. Структурированные пленки представляли собой слоистые системы, в которых магнитные слои одинаковой толщины чередовались с прослойками Cu толщиной 3 нм. При этом общая толщина магнитных слоев была фикси-

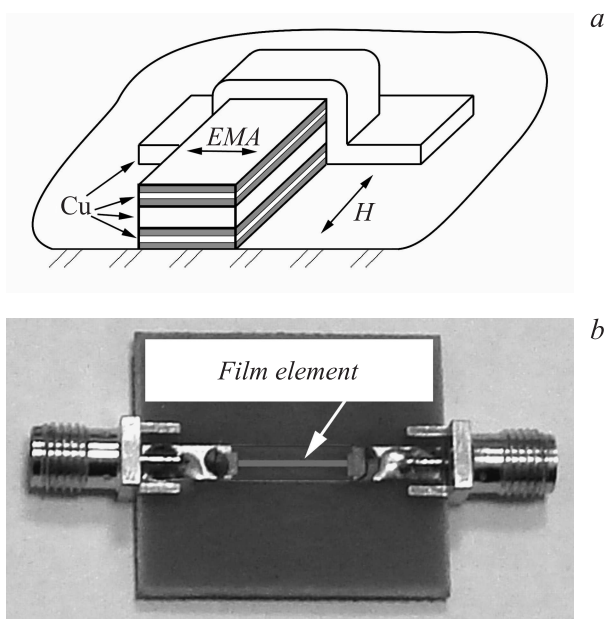


Рис. 1. Схематическое изображение части пленочного элемента (а) и фотография измерительной ячейки (b).

рованной (500 nm), а количество прослоек N варьировалось. Для измерения магнитных свойств пленок использовались вибрационный магнитометр, магнитооптическая установка и сканирующий магнитосиловой микроскоп.

Для получения пленочных элементов, на которых исследовался магнитный импеданс, использовалась аналогичная технология. Однако для придания элементам определенной формы осаждение материала осуществлялось через маску с прямоугольным отверстием (10×0.5 mm). При этом поле H_t было ориентировано вдоль короткой стороны прямоугольников. Вдоль нормали к поверхности элементы имели структуру трехслойного сэндвича, в котором внешние слои толщиной по 500 nm были изготовлены из магнитного материала, а средний слой такой же толщины — из меди. Такая конфигурация считается наиболее подходящей для реализации высокого МИ [13,14]. Кроме того, магнитные слои, как и вышеописанные пленки, подвергались тонкому структурированию за счет введения прослоек Cu толщиной 3 nm. На заключительном этапе изготовления на концы элементов через специальную маску наносились медные контактные площадки размером 2×2 mm. Схематически структура пленочного элемента показана на рис. 1, а. Измерение полного электросопротивления осуществлялось на высокочастотном анализаторе импеданса Agilent E4991A в квазистатически изменяющемся магнитном поле, которое прикладывалось вдоль длинной стороны прямоугольников. При этом использовалась специальная измерительная ячейка, фотография которой представлена на рис. 1, b. Контактные площадки элементов подклеивались к контактам ячейки с помощью токопроводящего клея.

Результаты и обсуждение

Анализ магнитооптических кривых намагничивания однослойных образцов относительно малой толщины ($L < 200$ nm) показал, что пленки обоих составов имеют одноосную магнитную анизотропию, и ось легкого намагничивания (ОЛН) совпадает с осью приложения технологического поля H_t . Величина поля анизотропии в том и другом случаях составляет около 5 Oe. На рис. 2 представлены зависимости коэрцитивной силы H_c , значения которой определены из продольных (измеренных вдоль ОЛН) магнитооптических петель гистерезиса, от толщины L пленок РМ и FM. Как видно, при $L < 200$ nm обе зависимости имеют одинаковый характер. А именно с уменьшением толщины до 30 nm происходит рост H_c , который, вероятно, обусловлен увеличением роли рельефа поверхности в задержке смещения доменных границ, а также изменениями в структуре самих границ. В очень тонких пленках ($L \leq 10$ nm) обнаруживается тенденция к спаду коэрцитивной силы, что может быть следствием некоторой дефрагментации магнитных осадков и проявлением элементов суперпарамагнитного поведения намагниченности. Однако в связи с эффектом МИ более важной является область больших толщин, в которой, как следует из рис. 2, зависимости $H_c(L)$ для двух типов пленок кардинально различаются. В пленках РМ в области $L \sim 250$ nm происходит резкий (десятикратный) рост коэрцитивной силы до уровня ~ 10 Oe, который сохраняется и для более толстых пленок. В пленках FM, напротив, с ростом толщины продолжается монотонный спад H_c так, что при $L \geq 500$ nm величина H_c становится менее 0.2 Oe. Такое различие может быть связано со спецификой микроструктуры пленок, приводящей к разнице в их магнитной анизотропии.

На рис. 3, а, с для сравнения представлены магнетрические продольные петли гистерезиса пленок РМ и FM толщиной 500 nm. Видно, что петля РМ (рис. 3, а) имеет широкую центральную часть и узкие скошенные участки, предшествующие магнитному насыщению. Это

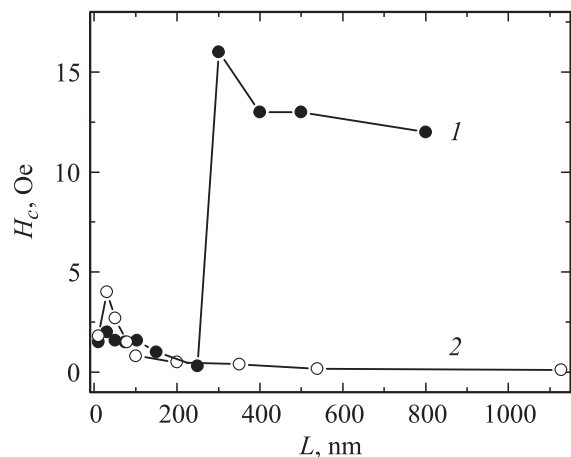


Рис. 2. Зависимости коэрцитивной силы от толщины пленок Fe₁₉Ni₈₁ (1) и Fe_{72.5}Cu_{1.1}Nb_{1.9}Mo_{1.5}Si_{14.2}B_{8.7} (2).

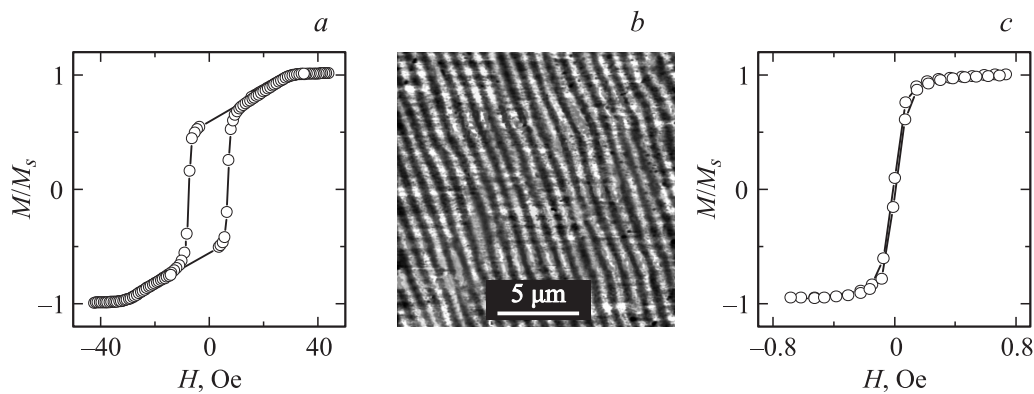


Рис. 3. Продольные магнитометрические петли гистерезиса и магнитный рельеф поверхности пленок Fe19Ni81 (*a, b*) и Fe72.5Cu1.1Nb1.9Mo1.5Si14.2B8.7 (*c*).

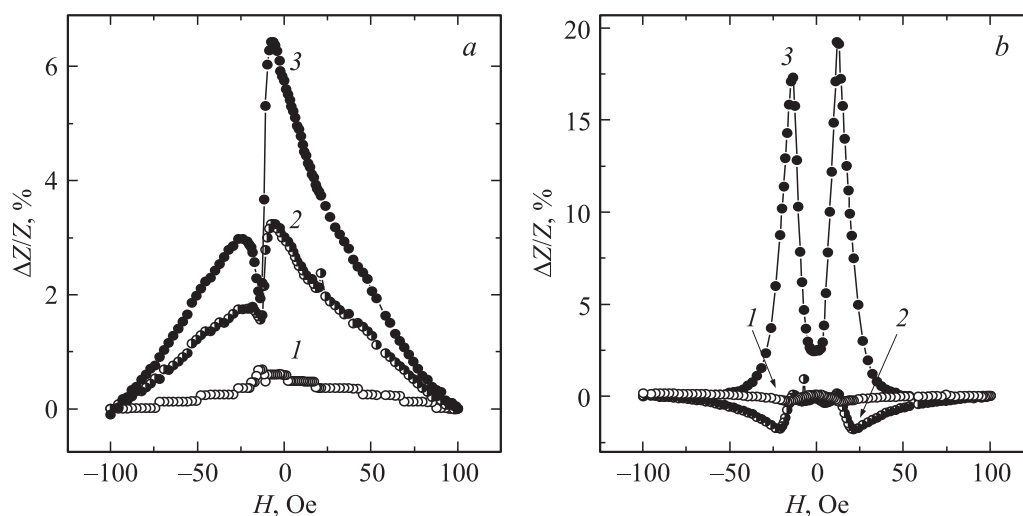


Рис. 4. Кривые магнитного импеданса для пленок Fe19Ni81 (*a*) и Fe72.5Cu1.1Nb1.9Mo1.5Si14.2B8.7 (*b*) при различных частотах зондирующего тока: 1 — 50, 2 — 175, 3 — 300 МГц.

типичный признак „закритического“ магнитного состояния, о котором шла речь выше. Определенную специфику имеет и картина поверхностного магнитного рельефа этой пленки, полученная с помощью магнитного силового микроскопа (рис. 3, *b*). На ней видна система светлых и темных полос, которая отражает наличие регулярной осцилляции нормальной компоненты намагниченности с периодом около $1 \mu\text{m}$. Эти осцилляции можно интерпретировать как страйп-домены, наличие которых также является атрибутом „закритического“ состояния.

Иначе выглядит петля FM (рис. 3, *c*). Она близка к прямоугольной и демонстрирует очень низкую коэрцитивную силу ~ 0.1 Ое. Правда, некоторые особенности ее формы (слабый наклон, плавное изменение намагниченности вблизи магнитного насыщения) могут говорить о небольшой дисперсии магнитной анизотропии. Но главное — нет признаков „закритического“ состояния, а значит, в пленках отсутствует перпендикулярная анизотропия и соответственно столбчатая микроструктура. Вероятной причиной этого является затруднен-

ное кристаллообразование, являющееся основной отличительной особенностью сплавов типа FINEMET. Согласно данным рентгеновского дифракционного анализа исследовавшиеся пленки FM также имели аморфную структуру, а пленки PM находились в мелкокристаллическом состоянии.

Для характеристики эффекта МИ нами использовалось стандартное отношение

$$\frac{\Delta Z}{Z} = \frac{Z(H) - Z(H_{\max})}{Z(H_{\max})} 100\%, \quad (1)$$

где H_{\max} — максимальное значение поля намагничивания, которое в нашем случае составляло 100 Ое. На рис. 4 для разных частот f зондирующего тока приведены зависимости величины $\Delta Z/Z$ от монотонно изменяющегося внешнего магнитного поля H (кривые МИ) для пленочных элементов с однородными магнитными слоями. Поле H прикладывалось вдоль длинной стороны элементов и изменялось от +100 до -100 Ое. Видно, что в области относительно малых частот f в элементе

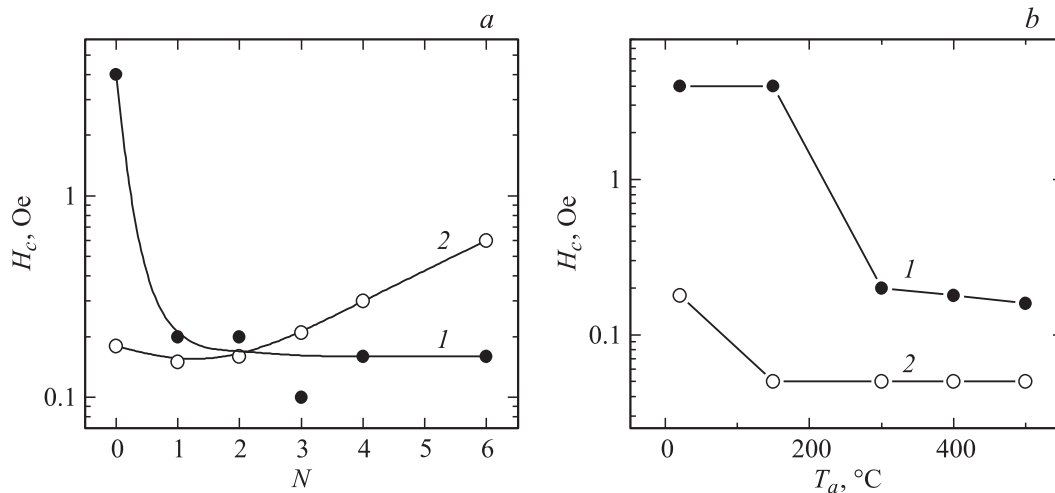


Рис. 5. Зависимости коэрцитивной силы пленок Fe19Ni81 (1) и Fe72.5Cu1.1Nb1.9Mo1.5Si14.2B8.7 (2) от количества прослоек Cu (a) и температуры отжига (b).

РМ (рис. 4, a) эффект МИ практически не выявляется. С повышением частоты он нарастает, но его уровень все равно остается крайне низким. Кроме того, имеет место сильная асимметрия петель МИ. Наиболее вероятной причиной этих особенностей является обсуждавшееся выше „закритическое“ состояние, в котором пребывают магнитные слои элемента. В элементах FM кривые МИ практически симметричны, но сам эффект МИ тоже невелик, по крайней мере при $f \leq 300$ МГц. Поскольку „закритическое“ состояние в пленках FM не обнаружено, в качестве причины низкого МИ можно назвать высокое удельное сопротивление внешних магнитных слоев, свойственное аморфному состоянию. Вероятно, зондирующий ток концентрируется в высокопроводящем центральном слое, и его поле не обеспечивает значительной динамической проницаемости в магнитных слоях.

Как указывалось выше, одним из способов предупреждения „закритического“ состояния в пленках РМ рассматривается слоистое структурирование. Можно предположить, что этот же прием, но по другой причине, будет эффективен и для МИ-элементов на основе пленок FM. В этом случае роль высокопроводящих прослоек может состоять в перераспределении токовых линий по сечению элементов. Влияние прослоек Cu на перемагничивание пленок РМ и FM в обобщенном виде иллюстрирует рис. 5, a. На нем показаны зависимости коэрцитивной силы, определенной из продольных петель гистерезиса, от количества прослоек N . Видно, что в пленках РМ (кривая 1) введение только одной прослойки приводит к резкому снижению H_c , и наращивание N не дает сколько-нибудь существенного изменения свойств. При этом петли гистерезиса приобретают прямоугольную форму, а страйп-домены исчезают. Все это указывает на отсутствие „закритического“ состояния в структурированных пленках с магнитными слоями толщиной не более 250 nm. На перемагничивании пленок

FM (кривая 2) структурирование сказывается в гораздо меньшей степени. Тем не менее H_c с увеличением N имеет определенную тенденцию к росту, которая может быть связана с эффективным уменьшением толщины магнитных слоев (см. рис. 2). Однако величина коэрцитивной силы остается на достаточно низком уровне.

Определенной альтернативой приему структурирования может рассматриваться термообработка — традиционный метод модификации микроструктуры металлов. В нашем исследовании был применен ступенчатый вакуумный отжиг пленок обоих типов. На рис. 5, b представлены зависимости коэрцитивной силы от температуры отжига T_a . Обращает на себя внимание резкое уменьшение H_c пленки РМ при $T_a = 200^\circ\text{C}$ (кривая 1). Соответствующий анализ показал, что оно отражает переход пленки из „закритического“ состояния в „тонкопленочное“ состояние, которое характеризуется расположением намагниченности в плоскости образца. Термообработка отразилась и на свойствах пленки FM (кривая 2), вызвав заметное понижение H_c уже на первом этапе отжига. И, если в случае пленок РМ разрушение „закритического“ состояния можно связывать с началом рекристаллизации, то для пленок FM понижение H_c , вероятно, свидетельствует о релаксации неоднородных упругих напряжений. То и другое улучшает свойства пленок как магнитомягких сред. Однако целесообразность термообработки трехслойных МИ-элементов остается под вопросом из-за возможной диффузии Cu из среднего слоя в прилегающие магнитные слои [15] и требует специального исследования. В настоящей работе мы лишь обозначили такую возможность, а основное внимание уделили эффектам структурирования МИ-элементов.

На рис. 6 показаны кривые МИ пленочных элементов, магнитные слои которых содержат по 4 немагнитных прослойки. Из сравнения с рис. 4 видно, что структурирование привело к существенным изменениям свойств

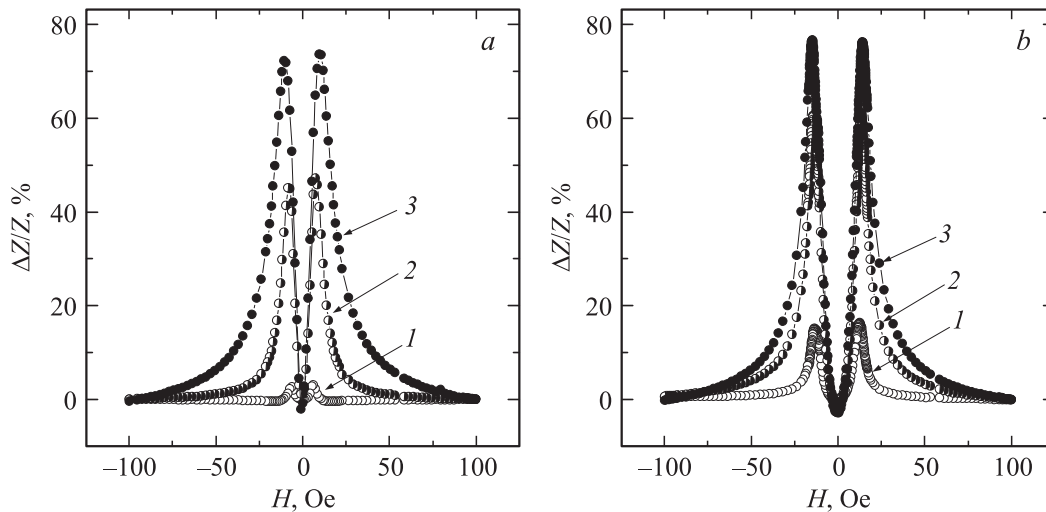


Рис. 6. Кривые магнитного импеданса для структурированных элементов ($N = 4$) на основе пленок Fe19Ni81 (а) и Fe72.5Cu1.1Nb1.9Mo1.5Si14.2B8.7 (b) при различных частотах зондирующего тока: 1 — 50, 2 — 175, 3 — 300 MHz.

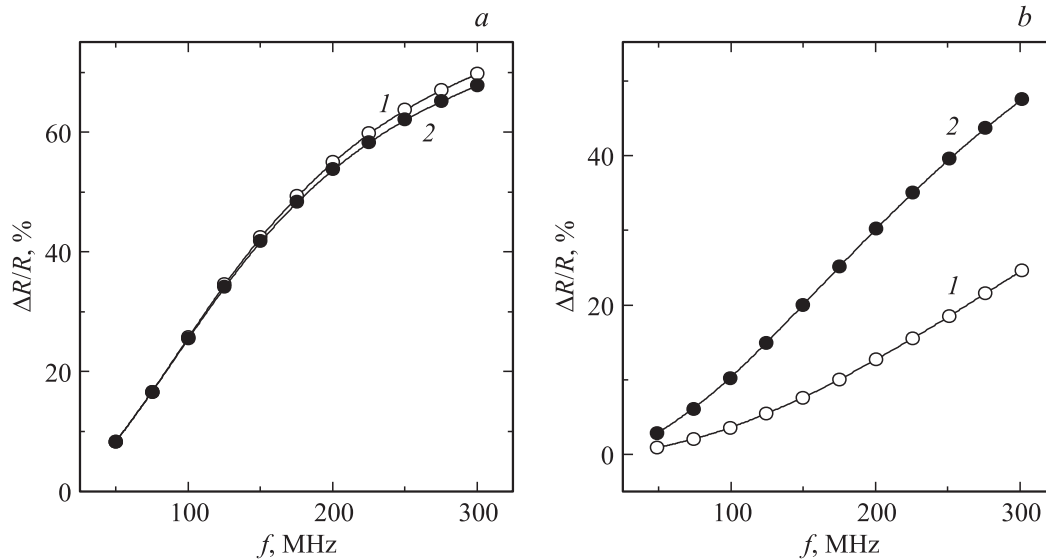


Рис. 7. Расчетные частотные зависимости величины $\Delta R/R$ пленочных элементов без структурирующих прослоек (1) и с одной структурирующей прослойкой (2) при разной проводимости магнитных слоев: а — $6.6 \cdot 10^6$, б — $5.4 \cdot 10^5$ ($\Omega \cdot \text{m}$)⁻¹.

как РМ-, так и FM-элементов, главное из которых состоит в многократном увеличении эффекта МИ на всех выбранных частотах. Причины этого фактически уже обсуждались выше и состоят по нашему мнению в устранении „закритического“ состояния в магнитных слоях РМ и более эффективном распределении зондирующего тока в слоях FM. Отметим также, что FM элементы отличаются сравнительно малой шириной пиков на кривых МИ. Это предопределяет их более высокую избирательную способность и чувствительность к магнитному полю.

Заключение о различии в механизмах влияния структурирования на импеданс элементов с разными магнитными слоями нашло определенное подтверждение при численном моделировании, выполненном нами с

использованием метода конечных элементов в пакете FEMM [16]. Решалась задача о зависимости активного сопротивления R трехслойного проводника от частоты зондирующего тока f в условиях варьирования относительной магнитной проницаемости μ , удельной проводимости σ и структурирования внешних слоев. Геометрические размеры основных слоев модельного проводника совпадали с соответствующими параметрами реальных пленочных элементов. Значения σ были выбраны равными $4.6 \cdot 10^7$, $6.6 \cdot 10^6$, $5.4 \cdot 10^5$ ($\Omega \cdot \text{m}$)⁻¹. Это отражало свойства Cu, сплавов РМ и FM соответственно. Изменение свойств проводника во внешнем магнитном поле учитывалось путем введения двух значений магнитной проницаемости $\mu_1 = 10$ и $\mu_2 = 500$.

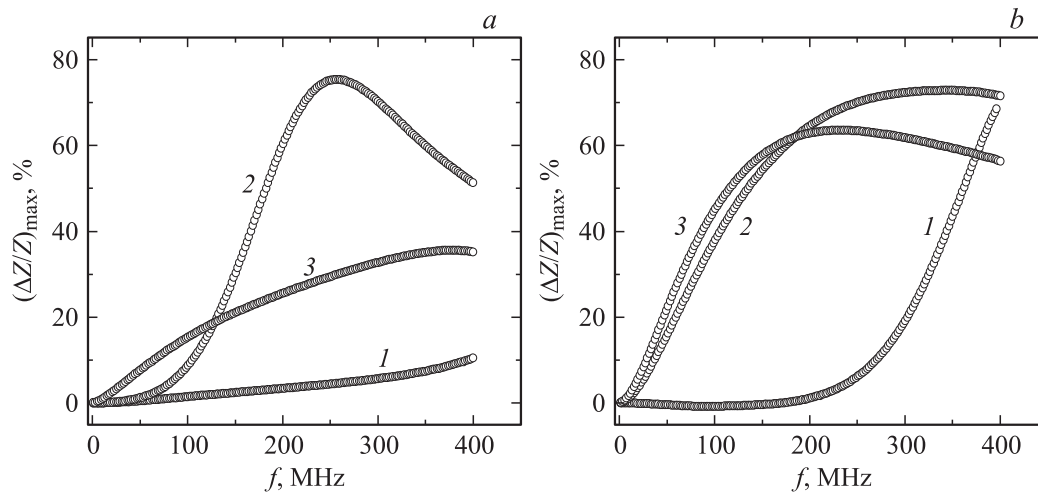


Рис. 8. Зависимости величины $(\Delta Z/Z)_{\max}$ от частоты зондирующего тока для элементов на основе пленок Fe₁₉Ni₈₁ (a) и Fe_{72.5}Cu_{1.1}Nb_{1.9}Mo_{1.5}Si_{14.2}B_{8.7} (b) при разном числе структурирующих прослоек N : 1 — 0, 2 — 4, 3 — 16.

На рис. 7 представлены результаты моделирования в форме частотных зависимостей величины $\Delta R/R$, которая определялась по формуле

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{R(\mu_2) - R(\mu_1)}{R(\mu_1)} 100\%. \quad (2)$$

Кривые 1 соответствуют однородным, а кривые 2 — структурированным внешним слоям элементов. Причем использовался наиболее простой формат структурирования: в середину магнитных слоев вводилось по одной высокопроводящей ($\sigma = 4.6 \cdot 10^7 (\Omega \cdot \text{m})^{-1}$) прослойке толщиной 30 нм. Как видно, структурирование практически не отражается на свойствах элементов с относительно высокой проводимостью магнитных слоев (аналог слоев РМ), но приводит к возрастанию величины $\Delta R/R$ для случая слоев с низкой σ (аналог слоев ФМ). Эксперимент показывает, что основной вклад в магнитный импеданс исследовавшихся пленочных элементов вносит изменение его активной составляющей. Это позволяет заключить, что выполненный модельный расчет качественно согласуется с экспериментальными данными для ФМ-элементов, а также показывает, что для РМ-элементов эффект структурирования состоит в изменении не электрических, а магнитных свойств.

Положительный эффект структурирования ставит вопрос об оптимальных параметрах тонкой структуры. Некоторые ответы на него можно получить из анализа рис. 8, на котором представлены зависимости значений максимумов кривых МИ от частоты f для двух типов элементов с неструктурированными магнитными слоями (кривые 1) и с числом прослоек 4 (кривые 2) или 16 (кривые 3). Во-первых, оба типа элементов показывают примерно одинаковый максимальный эффект МИ ($\sim 75\%$) в состоянии с $N = 4$. Во-вторых, увеличение числа прослоек уменьшает максимум эффекта МИ, но повышает его значения в области относительно малых частот. Причем в РМ-элементах эта закономерность

выражена значительно ярче. В-третьих, структурированные ФМ-элементы в области $f < 200$ МГц показывают значительно больший эффект МИ, чем элементы РМ.

Заключение

Представленные выше результаты показывают эффективность применения слоистого структурирования для улучшения функциональных свойств пленочных элементов, обладающих магнитным импедансом. Введение тонких немагнитных и высокопроводящих прослоек в магнитные слои блокирует образование в них столбчатой микроструктуры и как следствие перпендикулярной магнитной анизотропии, а также повышает их проводимость. Первое актуально для элементов на основе пермаллоя, второе — для элементов на основе аморфных сплавов типа FINEMET. Более тонкая регулировка свойств элементов с магнитным импедансом возможна при оптимизации толщинных параметров слоистых составляющих и сочетании структурирования с низкотемпературным отжигом.

Работа выполнена при поддержке Министерства образования и науки РФ (контракт № 16.552.11.7020).

Список литературы

- [1] *Knobel M., Vazquez M., Kraus L.* / Handbook of Magnetic Materials / Ed. by K.H.J. Buschow. 2003. Vol. 15. P. 497–563.
- [2] *Phan M.-H., Peng H.-X.* // Prog. Mater. Sci. 2008. Vol. 53. N 2. P. 323–420.
- [3] *Kurlyandskaya G.V.* / Encyclopedia of Sensors / Ed. by C.A. Grimes, E.C. Dickey. 2006. Vol. 4. P. 205–237.
- [4] *Kurlyandskaya G.V., Cerdeira M.A.* Encyclopedia of Nanoscience and Nanotechnology / Ed. by H.S. Nalwa. 2011. Vol. 15. P. 1–17.
- [5] *Amalou F., Gijis M.A.M.* // J. Appl. Phys. 2001. Vol. 90. N 7. P. 3466–3470.

- [6] Курляндская Г.В., Бебенин Н.Г., Васьковский В.О. // ФММ. 2011. Т. 111. Вып. 2. С. 136–158.
- [7] Антонов А.С., Гадецкий С.Н., Грановский А.Б., Дьячков А.Л., Парамонов В.П., Перов Н.С., Прокошин А.Ф., Усов Н.А., Лагарьков А.Н. // ФММ. 1997. Т. 83. Вып. 6. С. 61–71.
- [8] Sugita Y., Fujiwara H., Sato T. // Appl. Phys. Lett. 1967. Vol. 10. N 8. P. 229–231.
- [9] Correa M.A., Viegas A.D.C., da Silva R.B., de Andrade A.M.H., Sommer R.L. // Physica B. 2006. Vol. 384. N 1–2. P. 162–164.
- [10] Villar Alzola N., Kurlyandskaya G.V., Larrañaga A., Svalov A.V. // IEEE Trans. Magn. 2012. Vol. 48. N 4. P. 1605–1608.
- [11] Kurlyandskaya G.V., Svalov A.V., Fernández E., Garcia-Arribas A., Barandiaran J.M. // J. Appl. Phys. 2010. Vol. 107. N 9. P. 09C502 (1–3).
- [12] Volchkov S.O., Fernández E., Garcia-Arribas A., Barandiaran J.M., Lepalovskij V.N., Kurlyandskaya G.V. // IEEE Trans. Magn. 2011. Vol. 47. N 10. P. 3328–3331.
- [13] Panina L.V., Mohri K. // Sensor. Actuat. A-Phys. 2000. Vol. 81. N 1–3. P. 71–77.
- [14] Kurlyandskaya G.V., Munoz J.L., Barandiaran J.M., Garcia-Arribas A., Svalov A.V., Vas'kovskiy V.O. // J. Magn. Mater. 2002. Vol. 242–245. Pt. 1. P. 291–293.
- [15] Васьковский В.О., Лепаловский В.Н., Галицкий Г.А. // ФММ. 1996. Т. 82. Вып. 5. С. 83–89.
- [16] Garcia-Arribas A., Barandiaran J.M., de Cos D. // J. Magn. Mater. 2008. Vol. 320. N 14. P. e4–e7.