

# 磁控溅射方法制备垂直取向 FePt/BN 颗粒膜\*

李宝河<sup>1,2)</sup> 冯春<sup>1)</sup> 杨涛<sup>1)</sup> 翟中海<sup>1,3)</sup> 滕蛟<sup>1)</sup> 于广华<sup>1)</sup> 朱逢吾<sup>1)</sup>

1) (北京科技大学材料物理系, 北京 100083)

2) (北京工商大学数理部, 北京 100037)

3) (沈阳建筑大学理学院, 沈阳 110168)

(2005 年 10 月 25 日收到, 2005 年 11 月 22 日收到修改稿)

用磁控溅射在热单晶 MgO(100)基片上制备了[FePt/BN]多层膜,经真空热处理后,得到具有垂直取向 L1<sub>0</sub>-FePt/BN 颗粒膜. X 射线衍射结果和磁性测量的结果表明 [FePt(2nm)/BN(0.5nm)]<sub>10</sub> 和 [FePt(1nm)/BN(0.25nm)]<sub>20</sub> 多层膜经 700℃ 热处理 1h 后,均具有较好的(001)取向. [FePt(1nm)/BN(0.25nm)]<sub>20</sub> 垂直矫顽力达到 522kA/m,剩磁比达到 0.99,开关场分布 S\* 达到 0.94,FePt 晶粒平均尺寸约 15—20nm,适合用于将来超高密度的垂直磁记录介质.

关键词:磁控溅射,垂直磁记录,L1<sub>0</sub>-FePt/BN 纳米颗粒膜

PACC:7550S,7570F

## 1. 引言

有序的 L1<sub>0</sub>-FePt 合金薄膜具有非常高的磁晶各向异性(7 × 10<sup>6</sup> J/cm<sup>3</sup>),在超高密度磁记录情况下仍具有非常好的热稳定性<sup>[1-3]</sup>.垂直磁记录方式可以比目前普遍采用的纵向磁记录方式记录密度提高一个数量级,但垂直磁记录介质需要具备垂直膜面的磁易轴取向,因此研究有序的 L1<sub>0</sub>-FePt 合金薄膜的垂直取向成为近年来一个热点<sup>[4]</sup>.利用非磁性的金属或氧化物为母体 Ag<sup>[5]</sup>,Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub><sup>[6]</sup>,BN<sup>[7]</sup>,C<sup>[8]</sup>等,形成 FePt 颗粒膜,可以降低或消除颗粒间的磁耦合作用.其中,Daniil 等人报道了在 Si 基片上生长的 FePt/BN 多层膜,经 600℃ 或 700℃ 退火,获得 FePt-BN 颗粒膜,电镜研究结果表明,FePt 颗粒在 5—10nm,且颗粒大小非常均匀,所以 BN 是一种形成 FePt 颗粒膜的优秀的基体材料<sup>[7]</sup>.但是 Daniil 等人制备的 FePt-BN 颗粒膜不具备垂直取向,不能适用于垂直磁记录介质的需要.

利用多层膜的界面各向异性可以诱导垂直各向异性的产生,如在玻璃基片上非外延生长 FePt/B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 多层膜<sup>[9,10]</sup>.另外利用磁控溅射 CrRu<sup>[11]</sup>或 MgO<sup>[12,13]</sup>为底层也可实现 FePt(001)结构.我们研究了在热

MgO 单晶基片上生长的 FePt/Ag 纳米复合膜,获得了很好的垂直取向<sup>[14,15]</sup>.利用相似的方法,我们制备了 FePt/BN 纳米复合薄膜.

本文研究利用磁控溅射,采用两步加热处理,即在 250℃,MgO(001)单晶基片上首先沉积 FePt/BN 多层膜,后经高温真空热处理,获得了高矫顽力、垂直取向纳米复合薄膜.氮化物为基体的 FePt 纳米复合膜的垂直取向尚未见报道.

## 2. 实验方法

采用磁控溅射方法制备 (FePt/BN)<sub>n</sub> 多层膜.采用直流共溅射方法,通过改变 Fe 靶(99.95%)和 Pt 靶(99.95%)共溅射时各自的功率,来调节 Fe、Pt 共溅射的成分,实现 Fe<sub>52</sub>Pt<sub>48</sub>的相对成分. Fe 靶和 Pt 靶采用直流共溅射,BN 靶(99.95%)采用射频溅射,在 MgO(100)单晶基片上交替沉积 FePt 和 BN 层,制备了 (FePt/BN)<sub>n</sub> 多层膜.溅射时基片保持 250℃,溅射前本底真空优于 4 × 10<sup>-5</sup> Pa,溅射时 Ar 工作气压为 0.4Pa. Fe 靶和 Pt 靶共溅射时薄膜总的沉积速率为 0.16nm/s,BN 的沉积速率为 0.070nm/s.溅射时基片以 18r/min 的速率旋转.

直接溅射的 [FePt/BN]<sub>n</sub> 多层膜经过 600℃ 或

\* 国家自然科学基金(批准号 50571007)和北京市教育委员会科技发展计划项目(批准号 KM200610011005)资助的课题.

700℃真空热处理 1h,热处理时真空优于  $5 \times 10^{-5}$  Pa.

利用 X 射线衍射(XRD)分析样品的晶体结构(Cu  $K\alpha$ ),用等离子体感应原子发射光谱(ICP-AES)分析样品成分.利用交变梯度场磁强计(AGM)测量样品的磁性.薄膜沉积速率由台阶仪测厚度来确定.

### 3. 结果与讨论

图 1 是基片保持 250℃,溅射沉积的  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(d\text{nm})]_0$  ( $d=1,3,5$ )多层膜,经 600℃热处理 1h 后的 XRD 谱.可以看出,所有样品的 XRD 谱都只出现了 FePt 的(001)(002)衍射峰,但峰比较宽化,说明 FePt 晶粒非常细小.未发现 FePt 的(111)峰和(110)峰,表现出较强的(001)织构.图 1 中的小插图分别为各样品的小角 XRD 谱,结果表明虽然经过 600℃真空热处理 1h,但样品仍存在多层膜的结构周期性,说明 BN 的层状结构仍存在.因此在 FePt 薄膜在(001)方向的相干长度应该很小.小角衍射峰上的数字表示衍射级次( $k$ 值),由于测量设备的限制,我们只能测量衍射角  $2\theta$  大于  $2^\circ$  的衍射谱线,因此对于  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(3\text{nm})]_0$  和  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(5\text{nm})]_0$  观察不到 1 级小角衍射峰.由小角衍射峰计算多层膜的周期,均和设计值比较接近.由大角 XRD 谱的(001)和(002)衍射峰的半高宽计算晶粒平均尺寸为 2.9—3.7nm.这说明了在垂直膜面方向晶粒的生长受到界面的抑制.

在最大外加磁场 1432kA/m 下,利用 AGM 测量了样品垂直膜面方向的磁滞( $M-H$ )回线.图 2 给出了在 MgO(100)250℃恒温基片上溅射的  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(d\text{nm})]_0$  ( $d=1,3,5$ )多层膜经 600℃热处理 1h 后的磁滞回线( $M-H$ 回线).可以看出,所有样品磁滞很小,矫顽力很低.这主要是因为晶粒太小的缘故. $\text{Li}_0\text{-FePt}$  的超顺磁临界尺寸为 2.8nm<sup>[1]</sup>.由图 1 样品的 XRD 谱计算的晶粒平均尺寸为 2.9—3.7nm,接近  $\text{Li}_0\text{-FePt}$  的超顺磁临界尺寸.

为了进一步使 FePt 和 BN 互扩散更加充分,将直接溅射的 FePt/BN 多层膜在 700℃热处理 1h,  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(d\text{nm})]_0$  ( $d=0.5,1,3$ )多层膜的 XRD 谱如图 3 所示.  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(0.5\text{nm})]_0$  多层膜和  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(1\text{nm})]_0$  多层膜经 700℃热处理 1h 后,衍射峰只有  $\text{Li}_0\text{-FePt}$  的(001)(002)(200), (003)峰和 MgO 的(200)峰,未发现 FePt 的(111)峰,

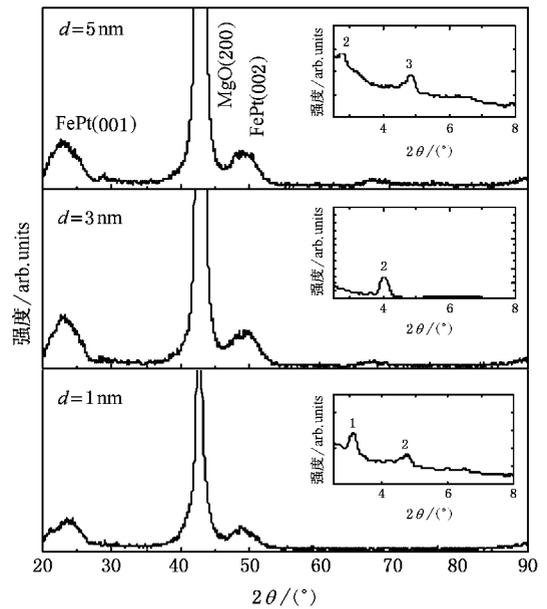


图 1  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(d\text{nm})]_0$  ( $d=1,3,5$ )多层膜,经 600℃热处理 1h 后的 XRD 谱

而且(200)峰与(002)峰相比非常弱,表现出很强的(001)垂直取向.随着 BN 的加厚,出现了 FePt 的(111)峰.

图 3 中的小插图分别为各样品的小角 XRD 谱,由图可见,小角峰全部消失,表明经过 700℃真空热处理 1h 后,多层膜结构消失,形成了 FePt 颗粒埋在 BN 母体中的颗粒膜.利用谢乐公式,根据大角衍射峰(001)和(002)的半高宽计算晶粒平均尺寸约为 15—20nm.

图 4 为  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(d\text{nm})]_0$  ( $d=0.5,1,5$ )多层膜,经 700℃热处理 1h 后的磁滞回线.测量时外场垂直于膜面.由于受到 AGM 所能加的最大外场( $1.4 \times 10^6$  A/m)的限制,部分样品的磁化并没有达到饱和.可以看出,随着 BN 厚度的增加,磁易轴垂直膜面取向的性能变差,BN 厚度为 0.5nm 和 1nm 时,具有很好的垂直磁各向异性,且垂直磁滞回线的矩形度很好,具有很好的开关场特性.对于  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(0.5\text{nm})]_0$  多层膜经 700℃热处理 1h 后,样品的具体磁性参数为:垂直矫顽力达到 595kA/m,剩磁比达到 0.93,矫顽力矩形比(开关场分布) $S^* = 0.87$ .

增加单位体积薄膜内的界面数可以通过改变多层膜中磁性层的厚度实现,在相同的条件下,制备了  $[\text{FePt}(1\text{nm})/\text{BN}(d\text{nm})]_0$  ( $d=0.25,0.5,1$ )多层膜,后经 700℃热处理 1h.样品的 XRD 谱如图 5 所示.

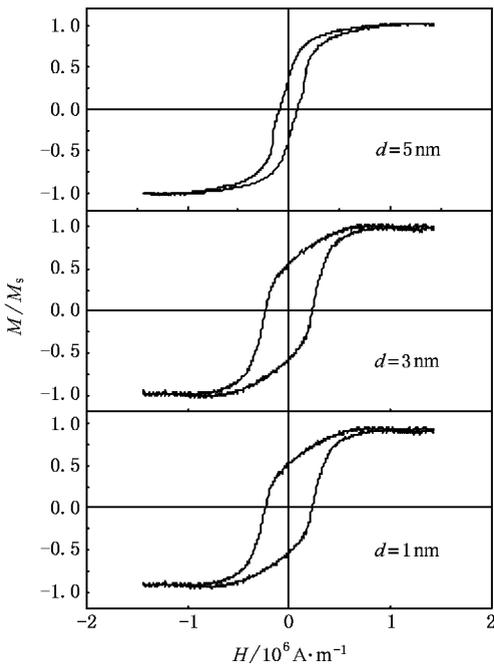


图 2 [FePt(2nm)/BN(d nm)]<sub>10</sub> (d = 1, 3, 5) 多层膜, 经 600°C 热处理 1h 后的磁滞回线

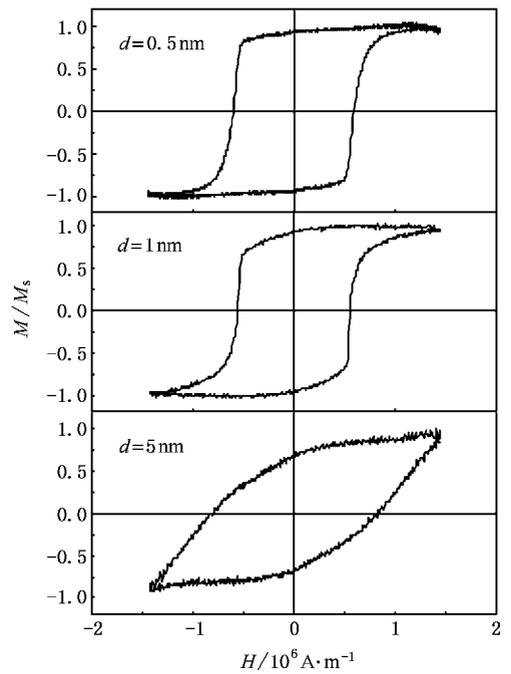


图 4 [FePt(2nm)/BN(d nm)]<sub>10</sub> (d = 0.5, 1, 5) 多层膜, 经 700°C 热处理 1h 后的磁滞回线 (测量时外磁场垂直于膜面)

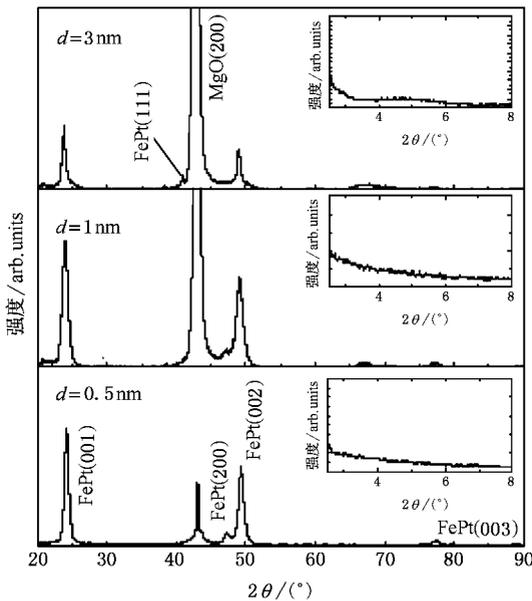


图 3 [FePt(2nm)/BN(d nm)]<sub>10</sub> (d = 0.5, 1, 3, 5) 多层膜, 经 700°C 热处理 1h 后的 XRD 谱

理 1h 后, 由 XRD 可以发现出现了 FePt(111) 峰, 未显示较好的(001)取向. 随着 BN 厚度的增加, FePt 的(001)和(002)衍射峰逐渐宽化, 说明 FePt 的晶粒随 BN 厚度增加而减小. 这些结果与图 3 类似.

[FePt(1nm)/BN(0.25nm)]<sub>10</sub> 多层膜和 [FePt(1nm)/BN(0.5nm)]<sub>10</sub> 多层膜经 700°C 热处理 1h 后, 出现了很强的 FePt 的(001)和(002)峰, FePt(200)峰相对很弱, 而且未出现 FePt(111)峰. 样品基本表现为(001)结构. [FePt(1nm)/BN(1nm)]<sub>10</sub> 多层膜经 700°C 热处

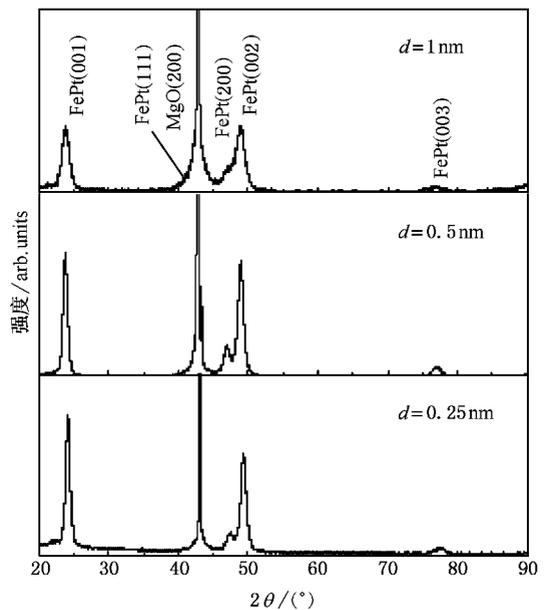


图 5 [FePt(1nm)/BN(d nm)]<sub>10</sub> (d = 0.25, 0.5, 1) 多层膜, 经 700°C 热处理 1h 后的 XRD 谱

图 6 为  $[\text{FePt}(1\text{nm})/\text{BN}(d\text{nm})]_0$  ( $d=0.25, 0.5, 1$ ) 多层膜经  $700^\circ\text{C}$  热处理 1h 后的磁滞回线. 对于  $d=0.25\text{nm}$  情况, 垂直膜面的磁滞回线具有很好的矩形度和很好的开关场特性, 根据  $[\text{FePt}(1\text{nm})/\text{BN}(0.25\text{nm})]_0$  薄膜的垂直磁滞回线计算, 垂直矫顽力达到  $522\text{kA/m}$ , 剩磁比达到 0.99, 矫顽力矩形比  $S^*=0.94$ .

比较图 4 和图 6, 可以发现 FePt/BN 多层膜中 FePt 和 BN 厚度比接近的样品具有完全类似的磁滞回线. 例如 FePt 和 BN 厚度比为 2 或 4 的样品都具有很好的垂直磁各向异性, 垂直膜面的磁滞回线具有很好的矩形度且剩磁比接近 1. 而 FePt/BN 多层膜中 FePt 和 BN 厚度比大于 1 时, 垂直膜面磁滞回线

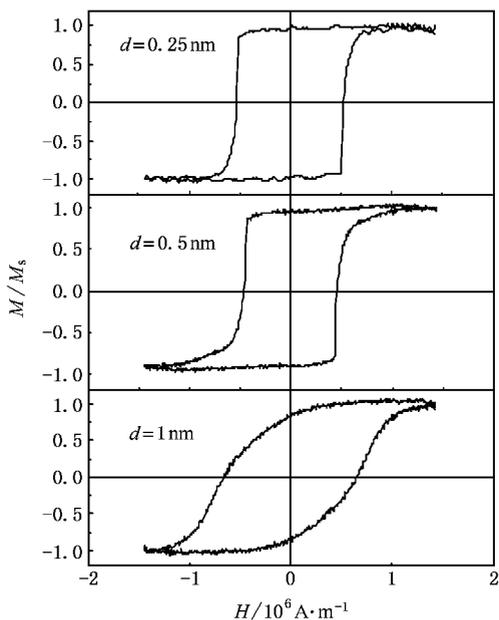


图 6  $[\text{FePt}(1\text{nm})/\text{BN}(d\text{nm})]_0$  ( $d=0.25, 0.5, 1, 2, 3$ ) 多层膜, 经  $700^\circ\text{C}$  热处理 1h 后的磁滞回线 (测量时外磁场垂直于膜面)

很倾斜, 矫顽力矩形比很低, 样品磁化易轴既不在面内也不在垂直膜面方向.  $[\text{FePt}(1\text{nm})/\text{BN}(0.25\text{nm})]_0$  多层膜经  $700^\circ\text{C}$  热处理 1h 后比  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(0.5\text{nm})]_0$  多层膜经相同条件热处理, 具有更好的矩形度和矫顽力矩形比.

FePt/BN 多层膜经高温真空退火, 可以获得较好的  $L1_0$ -FePt(001) 取向外延生长, 主要是由于两方面的因素: 一方面, FePt 薄层 ( $< 5\text{nm}$ ) 厚度时, 在热  $\text{MgO}(00)$  单晶基片上溅射可以实现外延生长; 另一方面, 利用 FePt/BN 多层膜的界面效应, 促进 FePt 薄膜垂直取向生长. 这与我们以前报道的 FePt/Ag 复合薄膜垂直取向生长的原因是类似的<sup>[5]</sup>. 但由于 BN 为非金属化合物, 且具有复杂的晶体结构, 而 Ag 为金属, 且与  $L1_0$ -FePt 具有类似的晶体结构, 当 BN 浓度较大时, 反而阻碍了 FePt 在热  $\text{MgO}(00)$  单晶基片上的外延生长, 因此 BN 厚度较大时, FePt/BN 没有获得很好的垂直取向. 这与 FePt/Ag 复合薄膜的结果不同  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{Ag}(11\text{nm})]$  仍具有很好的垂直各向异性<sup>[5]</sup>.

## 4. 结 论

利用磁控溅射在热  $\text{MgO}$  基片 ( $250^\circ\text{C}$ ) 上制备的  $[\text{FePt}/\text{BN}]$  多层膜, X 射线衍射和磁性测量的结果表明  $[\text{FePt}(2\text{nm})/\text{BN}(0.5\text{nm})]_0$  和  $[\text{FePt}(1\text{nm})/\text{BN}(0.25\text{nm})]_0$  多层膜经  $700^\circ\text{C}$  热处理 1h 后, 均具有较好的 (001) 取向. 典型的结果是:  $[\text{FePt}(1\text{nm})/\text{BN}(0.25\text{nm})]_0$  垂直矫顽力达到  $522\text{kA/m}$ , 剩磁比达到 0.99, 开关场分布  $S^*$  达到 0.94, 适合于未来高密度垂直磁记录介质的需要.

[1] Weller D, Moser A, Folks L, Best M E, Lee W, Toney M F, Schwickert M, Thiele J U, Doerner M F 2000 *IEEE Tran. Magn.* **36** 10  
 [2] Li B H, Hwang P, Yang T, Zhai Z H, Zhu F W 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1836 (in Chinese) [李宝河、黄 阔、杨 涛、翟中海、朱逢吾 2005 物理学报 **54** 1836]  
 [3] Li B H, Hwang P, Yang T, Feng C, Teng J, Zhu F W 2005 *Acta Metal. Sin.* **41** 659 (in Chinese) [李宝河、黄 阔、杨 涛、冯 春、滕 蛟、朱逢吾 2005 金属学报 **41** 659]

[4] Shima T, Takanashi K, Takahashi Y K, Hono K 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 1050  
 [5] Li B H, Hwang P, Yang T, Feng C, Zhai Z H, Zhu F W 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 3867 (in Chinese) [李宝河、黄 阔、杨 涛、冯 春、翟中海、朱逢吾 2005 物理学报 **54** 3867]  
 [6] Ping D H, Ohnuma M, Hono K, Watanabe M, Iwasa T, Masumoto T 2001 *J. Appl. Phys.* **90** 4708  
 [7] Daniil M, Farber P A, Okumura H, Hadjipanayis G C, Weller D 2002 *J. Magn. Magn. Mater.* **246** 297

- [ 8 ] Christodoulides J A , Huang Y , Zhang Y , Hadjipanayis G C , Panagiotopoulos I , Niarchos D 2000 *J. Appl. Phys.* **87** 6938
- [ 9 ] Luo C P , Liou S H , Gao L , Liu Y , Sellmyer D J 2000 *Appl. Phys. Lett.* **77** 2225
- [ 10 ] Yan M L , Zeng H , Powers N , Sellmyer DJ 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 8471
- [ 11 ] Xu Y F , Chen J S , Wang J P 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 3325
- [ 12 ] Kang K , Zhang Z G , Papisoi C , Suzuki T 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 404
- [ 13 ] Jeong S , Mchenry M E , Laughlin D E 2001 *IEEE Tran. Magn.* **37** 1309
- [ 14 ] Yang T , Kang K , Suzuki T 2002 *J. Phys. D : Appl. Phys.* **35** 2897
- [ 15 ] Yang T , Ahmad E , Suzuki T 2002 *J. Appl. Phys.* **91** 6860

## The preparation of FePt/BN particle films with perpendicular texture by magnetron sputtering \*

Li Bao-He<sup>1,2)</sup> Feng Chun<sup>1)</sup> Yang Tao<sup>1)</sup> Zhai Zhong-Hai<sup>1,3)</sup> Teng Jiao<sup>1)</sup> Yu Guang-Hua<sup>1)</sup> Zhu Feng-Wu<sup>1)</sup>

1  $\text{\AA}$  Department of Material Physics and Chemistry , Beijing University of Science and Technology , Beijing 100083 , China )

2  $\text{\AA}$  Department of Mathematics and Physics , Beijing Technology and Business University , Beijing 100037 , China )

3  $\text{\AA}$  College of Science , Shenyang Jianzhu University , Shenyang 110168 , China )

( Received 25 October 2005 ; revised manuscript received 22 November 2005 )

### Abstract

[ FePt/BN ]<sub>n</sub> multilayers were prepared on MgO ( 100 ) single crystal substrates at 250°C with magnetron sputtering. The perpendicular texture of L1<sub>0</sub>-FePt/BN particle films was formed after vacuum annealing. The results of X-ray diffraction and magnetic tests show that the [ FePt( 2nm )/BN( 0.5nm ) ]<sub>0</sub> and [ FePt( 1nm )/BN( 0.25nm ) ]<sub>0</sub> multilayers have excellent ( 001 ) texture when the films were sputtered on substrates at 250°C after annealed at 700°C for 1h. The mean size of L1<sub>0</sub>-FePt particles is roughly 15—20nm and its perpendicular coercive force reaches 522 kA/m. Moreover , the  $M_r/M_s$  and switching filed distribution  $S^*$  reach 0.99 and 0.94 , respectively. This particle film is a candidate for future perpendicular magnetic recording media with ultrahigh density.

**Keywords** : magnetron sputtering , perpendicular magnetic recording , L1<sub>0</sub>-FePt/BN nanoparticle films

**PACC** : 7550S , 7570F

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant No. 50571007 ) , and the Development Foundation of Science and Technology of Education Committee of Beijing , China ( Grant No. KM200610011005 ) .