

# c 轴垂直取向 FePt 薄膜的磁和磁光性能研究 \*

王淑华 查超麟 高 静 马 斌<sup>†</sup> 张宗芝 金庆原

(复旦大学先进光子学材料与器件国家重点实验室 光科学与工程系, 上海 200433)

(2006 年 6 月 21 日收到 2006 年 8 月 15 日收到修改稿)

采用直流磁控溅射的方法在氧化镁(100)单晶基板上生长了一系列 c 轴垂直取向的 FePt 薄膜, 通过改变沉积时的基板温度, 薄膜从 Fe , Pt 原子无序排列的面心立方结构逐渐变化到有序排列的  $L1_0$  相面心四方结构。在此基础上, 系统研究了 FePt 薄膜的化学有序度对磁和磁光性能的影响。随着有序度的增加, FePt 薄膜的磁晶各向异性性能, 以及沿垂直方向的矫顽力、剩磁比均增加。在基板温度高于 530 °C 时制备的薄膜中的磁晶各向异性性能超过 1 J/cm<sup>3</sup>。同时, 还观察到有序 FePt 合金薄膜的磁光克尔光谱(克尔转角的大小和极值所对应的跃迁光子能量)随化学有序度的显著变化。

关键词: FePt 薄膜, 化学有序度参数, 磁光克尔光谱

PACC : 7550, 7820

## 1. 引 言

$L1_0$  相 FePt 有序合金具有很高的磁晶各向异性性能 ( $K_u = 6\text{--}10 \text{ J}/\text{cm}^3$ ), 可以获得很小的热稳定晶粒尺寸, 是理想的超高密度磁记录介质材料, 因而受到国内外研究者的广泛关注<sup>[1-10]</sup>。磁控溅射是制备薄膜介质的最常用方法, 但室温下溅射制备的 FePt 薄膜是化学无序的面心立方结构, Fe 和 Pt 原子随机地占据面心立方晶格的格点, 具有较高的对称性, 磁晶各向异性性能很小, 表现为软磁特性, 因此不适合用作记录介质。而  $L1_0$  相 FePt 有序合金是面心四方结构, Fe , Pt 单原子层交替排列, 由于 Pt 原子大的自旋轨道耦合、Fe 和 Pt 原子之间强的杂化, 以及对称破缺, 因此有序合金具有很高的磁晶各向异性能<sup>[10]</sup>。根据 FePt 合金相图, 从化学无序的面心立方结构到有序的四方结构的变化需要在较高的温度下进行, 在薄膜制备的过程中, 通常采用在溅射时加热基板<sup>[7-10]</sup> 或者高温热处理溅射薄膜的方法来获得有序结构<sup>[1-6]</sup>, 而薄膜的磁晶各向异性性能等磁性能参数则随 FePt 化学有序度的增加而变化。由于化学无序相具有面心立方结构的消光特性, 因此研究者通常采用 X 射线衍射技术(XRD)来评价 FePt 薄膜从

化学无序(Fe , Pt 原子随机分布)到有序(Fe , Pt 原子分层排列)的转变<sup>[7-10]</sup>, 并定义了化学有序度参数 S 来表征 Fe , Pt 原子有序排列的程度。近期的研究表明, 磁光光谱对化学有序、无序结构很敏感<sup>[11]</sup>, Cebollada 等人使用分子束外延的方法在氧化镁单晶基板上分别外延生长了无序和有序的 FePt 薄膜样品, 发现它们具有截然不同的磁光克尔(Kerr)光谱, 实验结果和理论符合得很好<sup>[7]</sup>。

本文利用磁控溅射的方法, 在不同的基板温度下制备了一系列具有不同化学有序度的 c 轴垂直取向的 FePt 薄膜, 并系统研究了这些溅射薄膜的结构、磁和磁光性能随有序度的变化。

## 2. 实 验

采用直流磁控溅射的方法制备 FePt 薄膜。薄膜沉积在(100)取向的单晶氧化镁基板上, 在沉积过程中对基板加热, 温度  $T_s$  可从 100 °C 变化到 600 °C, 之后不再进行热处理。薄膜的溅射速率不高于 0.1 nm/s, 厚度设定为 30 nm, 在此厚度以下, 磁光光谱易受干涉效应的影响, 不能反映出薄膜的本征特性。

采取 XRD 进行薄膜的结构表征。FePt 无序相满足面心立方结构的消光特性, 没有晶面指数  $h , k , l$

\* 国家自然科学基金(批准号 50490290, 10374019)和上海市科委浦江计划(批准号 05PJ14016)资助的课题。

† 通讯作者 E-mail : magnmb@fudan.edu.cn

之和为奇数的衍射峰;而一旦形成  $L1_0$  结构,除了  $h, k, l$  之和为偶数的基本峰(002)峰外,还会出现和为奇数的超晶格峰[(001)(003)峰].因此,可以通过比较(001)峰和(002)峰的积分强度来表征 FePt 薄膜从无序相到有序相的转变程度,这样一个量通常被称为化学有序度参数  $S$ <sup>[7-10,12]</sup>,可用下面的公式表示:

$$S^2 = \frac{(I_{(001)}/I_{(002)})_{\text{obs.}}}{(I_{(001)}/I_{(002)})_{\text{cal.}}}, \quad (1)$$

其中,  $I$  为衍射峰积分强度,下标 obs 和 cal 分别表示观测到的强度比值和根据理想结构计算得到的强度比值.对于等原子比的 FePt 薄膜,  $S = 0$  表示薄膜具有完全无序的原子排列;相反,  $S = 1$  表示薄膜完全由面心四方结构的  $L1_0$  相组成.此外,根据 XRD 衍射谱,还可以得到(001)方向的面间距和晶粒尺寸(通过谢乐公式).

薄膜的磁性能采用振动样品磁强计(VSM)来测量,所用振动样品磁强计(LakeShore 7400)的最大磁场为 1.6 T.复数磁光光谱是由一台极向克尔光谱仪测量的,光子能量范围在 1.5—4.5 eV 之间,测量时外加 800 kA/m 的磁场.薄膜的成分采用 X 射线荧光谱(XRF)来测量,我们制备的薄膜的成分接近等原子比.

### 3. 实验结果与讨论

图 1 给出了在不同基板温度  $T_s$  下制备的 FePt 薄膜的 XRD 谱图.从中可以看到,薄膜具有很好的晶体结构, $c$  轴完全垂直于膜面,表明在单晶氧化镁基板上生长出了高质量的 FePt 合金薄膜.当基板温度很低( $T_s = 100$  °C),接近室温溅射时,仅有(002)基本峰存在,没有看到晶面指数之和为奇数的超晶格峰出现,表明制备的薄膜中 Fe, Pt 原子的排列是完全无序的,  $S = 0$ .当基板温度升高到 200 °C 后,(001)和(003)峰开始出现,表明薄膜中 Fe, Pt 原子开始有序排列;但较低的有序度参数( $S = 0.19$ )表明薄膜仍以原子无序排列的结构为主.随着基板温度升高(001)峰越来越明显,当温度超过 400 °C 时,薄膜具有较高的有序度( $S \geq 0.5$ ),有序的 Fe, Pt 原子排列占据主导地位.同时,随着基板温度的升高,还可以观察到(002)衍射峰逐渐向高角方向移动,表明  $c$  轴方向的晶格常数随温度升高逐渐减小.

图 2 是根据 XRD 谱图得到的 FePt 薄膜的结构

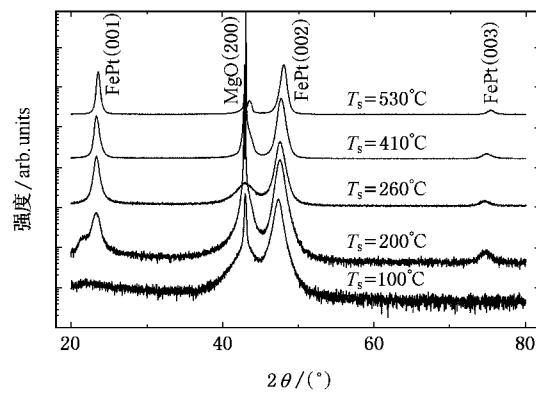


图 1 在不同基板温度  $T_s$  下制备的 FePt 薄膜的 XRD 谱图

特性.随着基板温度的升高,FePt 薄膜的化学有序度逐渐增加,当温度超过 500 °C 时,有序度参数超过 0.7.从图中还可以看出,化学有序度与温度变化成线性关系.因此,在后面的研究中,我们仍然以温度作为自变量来研究有序度变化对薄膜磁和磁光性能的影响.同时, $c$  轴方向的晶格常数随基板温度的增加逐渐减小,从  $T_s = 100$  °C 时的 0.385 nm 变到 600 °C 时的 0.376 nm.一般地,当 FePt 薄膜从无序的面心立方结构转变到有序的四方结构时, $c$  轴方向将会压缩.随着 FePt 薄膜有序度的增加, $c$  轴方向的面间距逐渐趋于块体值(0.371 nm).对比图 2(a)(c)可以看出,晶格常数随基板温度变化的趋势与有序度的变化趋势一致.伴随着基板温度的升高,晶粒尺寸逐渐增加.从图中可以看到,在 300 °C 至 410 °C 之间薄膜的晶粒尺寸基本不变,因此,将 FePt 薄膜的有序化温度控制在 400 °C 左右对获得小的晶粒尺寸是有利的.

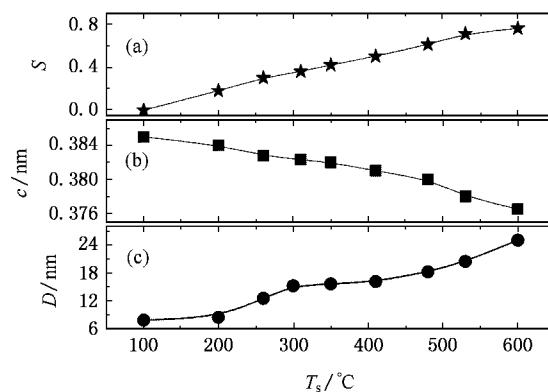


图 2 在不同基板温度  $T_s$  下制备的 FePt 薄膜的结构特性 (a) 化学有序度参数  $S$  (b) (001) 方向的晶格常数  $c$  (c) 晶粒尺寸  $D$

图3给出了在不同基板温度下制备的FePt薄膜的磁滞回线。在低的基板温度下(100℃和200℃),FePt薄膜表现出软磁特性,表明在该条件下制备的薄膜中Fe,Pt原子是无序排列的。在200℃下制备的样品,沿膜面法线方向和平行方向的磁滞回线已显示出不同,这是和FePt有序结构相出现相关的。当基板温度增加到260℃后,蜂腰形的磁滞回线显示薄膜内部有较多的易轴垂直于薄膜表面的硬磁相形成,这和XRD谱图的结果是一致的。同时,由于软磁相的存在,回线的剩磁比低于0.5,并且矫顽力很小。随着基板温度的继续增加,可以很明显地看出易轴垂直于膜面的有序相增加,薄膜具有好的垂直磁各向异性。回线的剩磁比( $M_R/M_S$ )逐渐增加,矫顽力 $H_C$ 也有较大幅度的提高,如图4(a)(b)所示。从图2可知,在410℃制备的FePt薄膜虽然没有完全有序化,但磁滞回线的剩磁比很高(0.93),表明薄膜中 $L_{1_0}$ 结构FePt有序合金相占据主要地位,并决定了薄膜的磁性能。

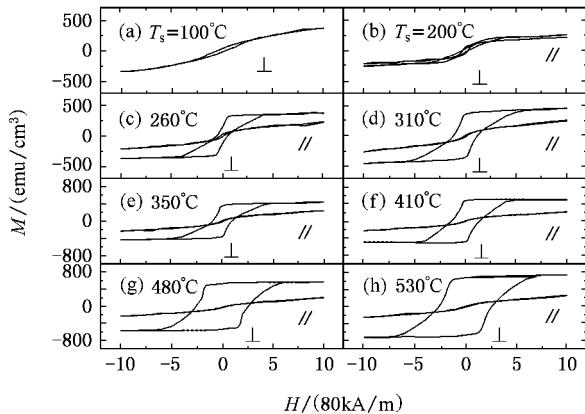


图3 在不同基板温度 $T_s$ 下制备的FePt薄膜沿垂直和平行膜面方向的磁滞回线。基板温度分别为(a)100℃(b)200℃(c)260℃(d)310℃(e)350℃(f)410℃(g)500℃(h)530℃(其中,⊥表示沿膜面法线方向测量,//表示沿平行于膜面方向测量)

由于FePt有序合金薄膜具有很高的磁晶各向异性能,饱和磁化所需要的外场非常高,因此,难以用转矩法直接测量其磁晶各向异性常数。通过计算沿垂直和平行于膜面方向的磁化曲线之间所包围的面积<sup>[8]</sup>,可以得到单轴磁晶各向异性能常数。对于我们的样品,易轴方向的矫顽力远小于难轴方向的饱和场,而且难轴可近似看作一条直线,因此,一种简便的方法是将易轴和平行于膜面方向的磁滞回线延长,取它们的交点作为磁各向异性场<sup>[13]</sup>,然后可近似得到

薄膜的磁晶各向异性常数。如图4(c)所示,当基板温度较低时,FePt薄膜的磁晶各向异性常数较小,随着基板温度的增加,磁晶各向异性常数随之增加;当基板温度为530℃时,FePt薄膜的磁晶各向异性常数超过 $10^6\text{ J/m}^3$ 。相比Fe,Pt原子无序排列的薄膜增加了一个数量级。尽管FePt有序合金薄膜具有很高的磁晶各向异性能,但我们制备的薄膜的矫顽力较小,470℃生长的薄膜具有最大的矫顽力 $H_C=228\text{ kA/m}$ ,远小于理论和实验值<sup>[5,8]</sup>。因此,我们进一步研究了薄膜的反磁化过程。

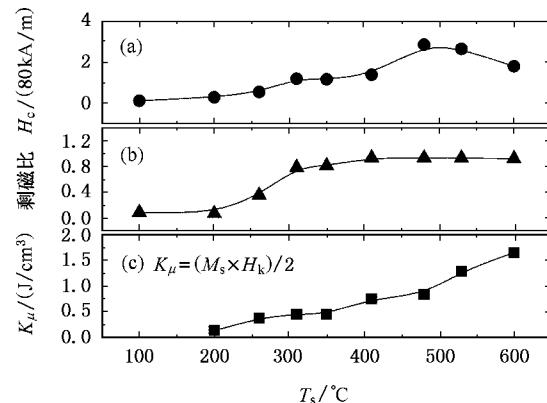


图4 在不同基板温度 $T_s$ 下制备的FePt薄膜的磁性能 (a)矫顽力 $H_C$ (b)剩磁比( $M_R/M_S$ )(c)磁晶各向异性常数 $K_\mu$

图5给出了FePt有序合金薄膜(600℃生长)的磁性能随外磁场方向的变化,图5(a)–(h)和图5(i)分别表示了磁滞回线和矫顽力、磁化强度随外磁场与法线夹角 $\theta$ 的变化。从图中所示的矫顽力随外加磁场角度的变化趋势来看,薄膜的反磁化过程似乎既包含畴壁移动方式,又包括以反磁化核的形成为特征的磁矩转动方式<sup>[4]</sup>。但是,从图5(a)–(h)可以看到,磁化强度随角度增加迅速降低,显示在高角下薄膜没有磁化到饱和——受限于振动样品磁强计的最大测量磁场,因此,这时得到的矫顽力并不是薄膜真实的矫顽力,不能用来解释其反磁化过程。通过结构和磁性能分析,我们认为薄膜的反磁化过程是以畴壁移动的方式进行的。随着外加磁场角度的增加,沿磁场方向的磁滞回线被拉长了,回线闭合时的外加磁场显著增加,这表明随外磁场角度的增加,沿不同方向取向的磁化强度矢量更难以转变到同一方向。如果考虑回线闭合所需要的外加磁场随角度变化的关系,如图5(i)空心圆环所示,可以发现其变化趋势与畴壁移动时矫顽力的变化趋势非常一致,而曲线闭合时的磁场实际上反映了不可逆磁化的临界

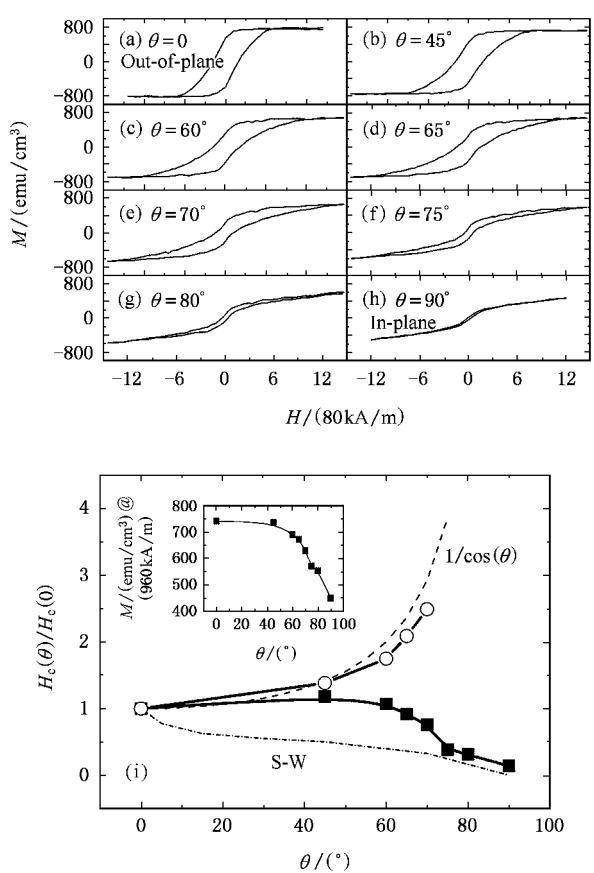


图 5 FePt 有序合金薄膜的随外磁场角度  $\theta$  变化的磁性能: (a)–(h) 薄膜的磁滞回线随外磁场角度的变化, 外加磁场垂直于薄膜表面(Out-of-plane)时,  $\theta = 0^\circ$ , 随着外加磁场逐渐偏离法线方向, 角度逐渐增大, 外加磁场沿膜面( In-plane )时,  $\theta = 90^\circ$ . (i) 薄膜矫顽力  $H_c$ ( 实心方块 ) 和回线闭合磁场( 空心圆环 ) 随外加磁场角度的变化( 其中, 上、下虚线分别表示畴壁移动(  $1/\cos(\theta)$  ) 和磁矩转动( S-W ) 两种反磁化方式下矫顽力随外磁场与法线夹角的变化。图中的插图是磁化强度随外加磁场角度的变化, 由于 VSM ( LakeShore ) 测量磁场的限制, 统一取外加磁场为 960 kA/m 处的磁化强度值 )

场。一般地, 溅射 FePt 薄膜具有水平生长的特性, 柱状晶的长度和高度的比值在 3—10 之间<sup>[8,9]</sup>, 随膜厚的增加而增大。如图 2 所示, 根据谢乐公式计算得到薄膜法线方向的晶粒尺寸在 25 nm 左右, 那么水平方向的晶粒尺寸应在 75 nm 以上。由于  $L_{1_0}$  相 FePt 有序合金的畴壁宽度仅 4 nm<sup>[5]</sup>, 这种大晶粒是倾向于形成多畴结构的<sup>[9]</sup>, 因此, 畴壁移动的反磁化方式是可以理解的。为了验证这一点, 我们在氧化镁单晶基板上生长了 6 nm 的 FePt 有序合金薄膜, 以及 50 nm 的多晶 FePt 有序合金薄膜, 分别通过减少薄膜厚度和破坏织构生长来获得小的晶粒, 结果发现薄膜的矫顽力增大 4 倍左右。

图 6 给出了在不同基板温度下制备的  $c$  轴取向 FePt 薄膜的磁光克尔光谱。通过比较克尔偏转角  $\theta_K$  的大小、极大值对应的跃迁光子能量  $E$ , 溅射薄膜的磁光光谱大致可以分为三类, 基本上反映了 FePt 无序、有序, 以及有序无序共存三种 Fe, Pt 原子排列的特征。对于原子排列完全无序的结构( $T_s = 100^\circ\text{C}$ ), 可以看到薄膜的克尔偏转角最小, 在可见光范围内尤其明显。随着有序排列的形成, 薄膜克尔偏转角逐渐增加, 先是可见光范围( $T_s \geq 200^\circ\text{C}$ ), 然后是紫外光范围( $T_s \geq 260^\circ\text{C}$ )。同时, 克尔偏转角极大值对应的跃迁光子能量也随化学有序度的增加而改变。

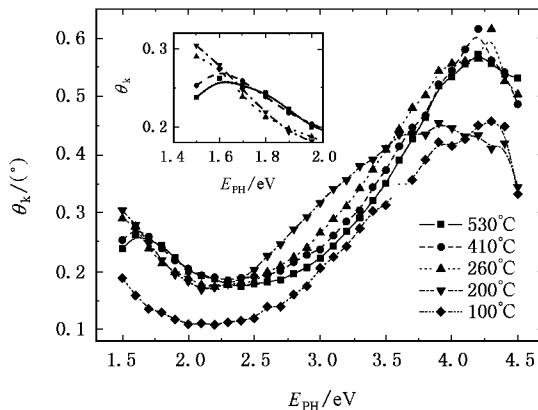


图 6 在不同基板温度  $T_s$  下制备的 FePt 薄膜的磁光光谱( 克尔偏转角  $\theta_K$  随光子能量  $E_{\text{PH}}$  的变化, 插图是和 Fe 原子的电子跃迁相关的光谱峰 )

高能一侧的  $\theta_K$  极大值的位置主要取决于与 Pt 相关的电子跃迁。对于在较低基板温度下沉积的 FePt 薄膜( $200^\circ\text{C}$ ), 在紫外光范围, 光谱峰较宽, 显示是由多个峰叠加而成的。而随着基板温度的升高( $T_s \geq 260^\circ\text{C}$ ), 薄膜的光谱峰变窄, 并趋于一致。结合前面的结构和磁性能结果, 低温下峰的展宽应该来源于薄膜中 FePt 有序相的出现, 小的克尔偏转角反映出在薄膜仍以原子排列无序的面心立方相为主<sup>[7]</sup>。值得注意的是, 对于在  $530^\circ\text{C}$  下沉积的 FePt 有序合金薄膜, 克尔偏转角极大值位于 4.2 eV 处, 不同于分子束外延技术(4.7 eV)和多层膜热处理方式(4.6 eV)生长的 FePt 薄膜。考虑到光的多重反射和干涉将导致光谱峰的偏移<sup>[14]</sup>, 我们变化厚度制备了一系列薄膜, 结果表明当薄膜厚度从 10 nm 变化到 30 nm 时, 极大值的位置将随厚度的增加向高能方向移动, 但当厚度继续增加, 从 30 nm 增加到 100 nm 的过程中, 没有观测到明显的峰的移动。因此, 4.2

eV处的克尔偏转角极大值是共溅射FePt有序合金薄膜激发的。

低能部分的 $\theta_k$ 极大值是和Fe原子的电子跃迁相关的。对于在较低基板温度下沉积的FePt薄膜( $T_s \leq 260$  °C),在可见光范围内没有出现极大值,但基板温度升到高410 °C以上时,出现了克尔偏转角的极大值。需要指出的是260 °C下制备的FePt薄膜( $S = 0.3$ )和高有序度合金薄膜具有相近的色散关系——克尔偏转角的大小以及紫外光范围的极大值,但在可见光范围没有发现极大值。在Fe,Pt原子无序排列的面心立方结构中,Fe原子的最近邻平均由6个Fe原子和6个Pt原子组成,而在有序排列的四方结构中,Fe原子的最近邻由4个Fe原子和8个Pt原子构成。这种原子位置构型的差别改变了Fe-Pt原子之间的电子杂化,使得与Fe相关的克尔偏转角极大值出现在不同的位置。对于无序排列的结构,极大值出现在1.3 eV处,而对于有序排列,极大值出现在2.0 eV处。因此,对于在较低基板温度下制备的FePt薄膜,克尔偏转角极大值出现在仪器的测量

范围之外。而对于有序排列的结构,相比较于分子束外延样品,极大值向低能量方向有0.4 eV的移动。在溅射薄膜中得到的、分别与Fe,Pt相关的克尔偏转角极大值的间距(2.6 eV)和分子束外延样品的间距(2.7 eV)一致,这显示溅射薄膜的磁光光谱向低能方向有一整体移动。

## 4. 结 论

采用在溅射过程中加热基板的方法,我们在MgO单晶基板上制备了一系列c轴垂直取向的FePt薄膜。随着基板温度的增加,薄膜的化学有序度参数增加,薄膜逐渐完成了由Fe,Pt原子无序排列的面心立方结构到有序排列的L1<sub>0</sub>相结构的转变,并伴随有c轴方向面间距的压缩以及晶粒尺寸的长大。在此基础上,我们系统研究了FePt薄膜的磁和磁光性能随有序度参数的变化。实验发现,溅射FePt薄膜的磁光克尔光谱随薄膜的化学有序度有明显的变化。

- [1] Zhu Y, Cai J W 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 393 (in Chinese) [竺云,蔡建旺 2005 物理学报 **54** 393]
- [2] Zhang L J, Cai J W, Meng F B, Li Y X 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 450 (in Chinese) [张丽娇,蔡建旺,孟凡斌,李养贤 2006 物理学报 **55** 450]
- [3] Li B H, Huang F, 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]
- [4] Feng C, Li B H, Teng J, Yang T, Yu G H 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 4898 (in Chinese) [冯 春,李宝河,滕 蛟,杨 涛,于光华 2005 物理学报 **54** 4898]
- [5] Li B H, Feng C, Yang T, Zhai Z H, Teng J, Yu G H, Zhu F W 2006 *Acta Phys. Sin.* **55** 2567 (in Chinese) [李宝河,冯 春,杨 涛,翟中海,滕 蛟,于广华,朱逢吾 2006 物理学报 **55** 2567]
- [6] Wang H, Yang F J, Xue S X, Cao X, Wang J A, Gu H S, Zhao Z Q 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 1415 (in Chinese) [王 浩,杨辅军,薛双喜,曹 歆,王君安,顾豪爽,赵子强 2005 物理学报 **54** 1415]
- [7] Suzuki T, Honda N, Ouchi K 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 4301
- [8] Weller D, Moser A, Folks L, Best M E, Lee W, Toney M F, Schwickert M, Thiele J U, Doerner M F 2001 *IEEE Trans. on Magn.* **36** 10
- [9] Lai C H, Yang C H, Chiang C C Tseng T K 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 4430
- [10] Cebollada A, Weller D, Sticht J, Harp G R, Farrow R F C, Marks R F, Savoy R, Scott J C 1994 *Phys. Rev. B* **50** 3419
- [11] Shima T, Takanashi K, Takahashi Y K, Hono K 2002 *Appl. Phys. Lett.* **81** 1050
- [12] Shima T, Takahashi K, Takahashi Y K, Hono K 2004 *Appl. Phys. Lett.* **85** 2571
- [13] Li G Q, Takahashi H, Ito H, Satio H, Ishio S, Shima T, Takahashi K 2003 *J. Appl. Phys.* **94** 5672
- [14] Okamoto S, Kikuchi N, Kitakami O, Miyazaki T, Shimada Y, Fukamichi 2002 *Phys. Rev. B* **66** 24413
- [15] Harp G R, Weller D, Rabedeau T A, Farrow R F C, Toney M F 1993 *Phys. Rev. Lett.* **71** 2493
- [16] Warren B E 1990 *X-Ray Diffraction* (New York: Dover) p208
- [17] Jin S, Zhu W, Dover R B, Tiefel T H, Korenivski V, Chen L H 1997 *Appl. Phys. Lett.* **70** 3161
- [18] Zhang Z G, Kang K, Suzuki T 2003 *J. Appl. Phys.* **93** 7163
- [19] Chen L, McGahan W A, Shan Z S, Sellmyer D J, Woollam J A 1990 *J. Appl. Phys.* **67** 7547

# Magnetic and magneto-optical properties of perpendicularly *c*-axis orientated FePt thin films<sup>\*</sup>

Wang Shu-Hua Zha Chao-Lin Gao Jing Ma Bin<sup>†</sup> Zhang Zong-Zhi Jin Qing-Yuan

( State Key Laboratory for Advanced Photonic Materials and Devices , Department of Optical Science and Engineering , Shanghai 200433 , China )

( Received 21 June 2006 ; revised manuscript received 15 August 2006 )

## Abstract

A series of FePt thin films with perpendicular *c*-axis orientation were deposited on single crystal MgO (001) substrates by DC magnetron sputtering. With the increase of substrate temperature during deposition, FCC disordered structure transforms to FCT ordered structure (*L1*<sub>0</sub> phase) gradually, and the chemical ordering parameter increases simultaneously. Furthermore, the magneto-crystalline anisotropy, coercivity and squareness ratio of the hysteresis loops along perpendicular direction increase also. The magneto-optical Kerr spectra were found to be changing notably with the chemical ordering of FePt films.

**Keywords** : FePt thin films , chemical ordering parameter , Kerr spectra

**PACC** : 7550 , 7820

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China ( Grant Nos. 60490290 , 10374019 ) and the Science and Technology Committee of Shanghai ( Grant No. 05PJ14016 ).

† E-mail : magnmb@fudan.edu.cn