

# FePt 薄膜中磁相互作用\*

展晓元 张 跃† 齐俊杰 顾有松 郑小兰

(北京科技大学材料物理与化学系, 北京 100083)

(2006 年 3 月 9 日收到, 2006 年 7 月 20 日收到修改稿)

采用磁控溅射方法在自然氧化的单晶 Si(100)衬底上制备了纳米结构的 Fe<sub>53</sub>Pt<sub>47</sub>薄膜, 并研究热处理后薄膜中的磁相互作用、晶粒尺寸与热处理温度的关系. 经 400℃ 热处理后, FePt 薄膜中有明显的面心四方相形成, 薄膜表现出硬磁性, 晶粒尺度在 20 nm. 薄膜内部存在软硬磁交换耦合作用, 随着热处理温度升高, 硬磁相含量增加. 同时由于 FePt 薄膜的晶粒长大, 部分软硬磁晶粒之间的交换耦合作用失效. 600℃ 热处理后, FePt 的面心立方相已经完全转变为面心四方相, 薄膜矫顽力由硬磁相之间的静磁作用贡献.

关键词: 磁性薄膜, 纳米晶, 磁性能, 热处理

PACC: 7550S, 7550V, 7560G

## 1. 引 言

磁交换耦合作用是指磁性材料中的软/硬磁相在纳米度域的磁相互作用<sup>[1]</sup>. 磁交换耦合作用使磁性材料具有大的磁能积, 利用先进的制粉、溅射等技术可以获得磁交换耦合磁性材料, 使其在永磁材料方面有着广泛的应用.

而对于磁记录介质材料来说, 随着电子信息产业的高速发展, 对高密度、大容量的磁记录器件的需求越来越强烈. 超高密度磁记录器件介质材料的研究成为当前材料科学与工程研究的一个重要的前沿课题. 提高记录密度的技术难题在于进一步降低记录介质的晶粒尺寸和提高信息读取的可靠性. 现在普遍认为薄膜内部晶粒之间的交换耦合作用是噪声的主要来源<sup>[2,3]</sup>, 不利于记录信息读取的准确性.

在众多磁记录介质材料当中, L1<sub>0</sub>(CuAu-I 型)有序结构的 FePt 合金薄膜具有很高的单轴磁晶各向异性 ( $K_u \approx 10^7$  J/m<sup>3</sup>, 比现在普遍应用的 Co 系合金磁记录材料高一个数量级), 高矫顽力 ( $H_c \approx 4780$  kA/m) 和高的磁能积 ( $(BH)_{\max} \approx 4.05 \times 10^5$  T·A/m)<sup>[4]</sup>, 使它在高密度磁记录介质材料方面有着广阔的应用前景. 块状 FePt 合金在室温下是有序化的 FCT 结构<sup>[5]</sup>, 通常溅射态的 FePt 合金薄膜是无序的

fcc 结构 ( $\gamma$ -FePt 相), 需要退火处理促使其转变为有序的 L1<sub>0</sub> 结构 ( $\gamma_2$ -FePt 相). 退火会导致 FePt 薄膜晶粒的长大, 而磁交换耦合作用的尺度范围与薄膜晶粒尺寸有直接关系<sup>[6]</sup>. 研究 FePt 薄膜材料热处理过程中晶粒尺寸变化与磁交换耦合作用尺度之间的关系对于 FePt 合金材料在高密度磁记录方面的应用至关重要. 材料中的磁相互作用长度在纳米尺度<sup>[7]</sup>, 但对磁性材料宏观磁学性能有很大的影响. 在磁记录介质材料中要避免软硬磁交换耦合作用, 很多科研工作者对磁性材料中软硬磁交换耦合作用进行了模拟<sup>[8,9]</sup>. 我们在此实验中借助高分辨电镜研究了 FePt 磁性薄膜材料中结构变化和薄膜中磁相互作用尺度之间的关系. 这样的工作在文献中报道很少.

## 2. 实验方法

FePt 薄膜采用磁控溅射制备, 薄膜厚度 100 nm, 基片为自然氧化的 (100) 取向的单晶硅. 成膜前在丙酮、去离子水和酒精中清洗, 成膜时基片保持水冷. Fe 和 Pt 靶材纯度优于 99.99%, Pt 靶采用直流 (DC) 溅射, Fe 靶采用射频 (RF) 溅射, 调节两个靶的功率使制备薄膜成分满足实验方案要求. 磁控溅射仪本底真空度和成膜真空度分别为  $2.5 \times 10^{-4}$  Pa 和 0.6 Pa. 样品热处理所用真空炉, 真空度为  $2.5 \times 10^{-4}$  Pa;

\* 国家杰出青年基金 (批准号 50325209), 国际合作与交流重大项目 (批准号 50620120439) 资助的课题.

† E-mail: Yuezhang@ustb.edu.cn

样品结构 12 kW Rigaku D/Max 型 X 射线衍射仪 (CuK $\alpha_1$ ) 测定; 薄膜表面形貌、晶粒大小用 JEOL-2010 透射电镜(TEM)进行观察; 样品磁性用 LDJ-9600 型振动样品磁强计(VSM)检测。

### 3. 结果与讨论

#### 3.1. FePt 薄膜样品的形貌与结构表征

在 L1<sub>0</sub>-FePt 有序合金薄膜中, 通过调整 Fe 与 Pt 的原子比和不同的热处理温度可以获得不同的硬磁性, 不同的研究者得到不同的结果, 但 Fe 含量都在 50at%—56at% 之间, 但普遍认为富 Fe 的薄膜硬磁性能最佳<sup>[10]</sup>. 本实验中在水冷的单晶硅片上制备了 Fe<sub>53</sub>Pt<sub>47</sub> 的单层薄膜, 在 400℃—600℃ 下热处理 1 h, 并研究 FePt 薄膜有序化转变和晶粒尺寸长大过程中的磁相互作用。

图 1(a) 为溅射态 Fe<sub>53</sub>Pt<sub>47</sub> 薄膜的 HRTEM 照片, 从照片上可以看出溅射态的薄膜为 FePt 面心立方

相( $\gamma$ -FePt)和非晶相的复合体, FePt 面心立方相的晶粒比较细小, 晶粒尺寸在 2 nm 左右, 细小的 FePt 面心立方相的晶粒分散在非晶的(Fe, Pt)相当中; 当薄膜样品经过 400℃ 的热处理, FePt 薄膜的晶体结构由面心立方相向面心四方相( $\gamma_2$ -FePt)转变, 图 1(a) 中箭头所示不完整的面心立方相晶体结构在热处理过程中向面心四方相晶体结构转变, 在晶体结构转变的过程中, 晶格位向相近的晶粒在结构转变时位向一致化, 晶体结构位向差较大的晶粒在结构转变的过程中吃掉周围非晶的(Fe, Pt)相, FePt 薄膜热处理后的晶粒总体上长大, 400℃ 的热处理的晶粒尺寸为 20 nm. FePt 薄膜合金相的原子比为 Fe:Pt = 1:1, 在热处理过程中, 面心立方相向面心四方相的转变的同时, 多余的 Fe 原子在一个区域内富集, 同时部分软磁的面心立方相没有完全转变为硬磁的面心四方相转变(见图 1(b)). 随着热处理温度进一步提高到, FePt 薄膜的面心四方相的晶粒进一步长大, 600℃ 热处理后 FePt 薄膜的面心四方相的晶粒尺寸在 60 nm(见图 1(c)).

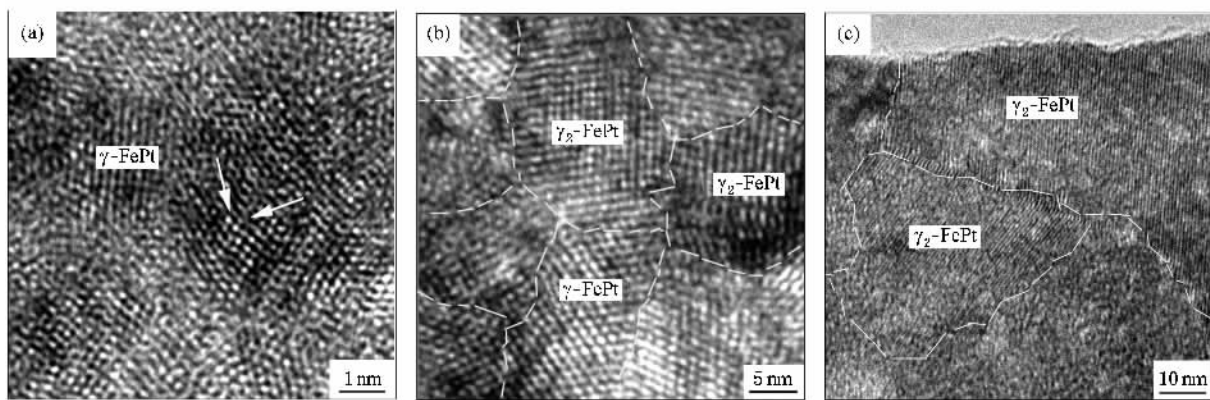


图 1 Fe<sub>53</sub>Pt<sub>47</sub> 薄膜 HRTEM 照片 (a) 溅射态 (b) 400℃ 热处理 (c) 600℃ 热处理

#### 3.2. FePt 薄膜样品中的磁相互作用

Q'Grady 和 Kelly 等人<sup>[11, 12]</sup> 从分析磁性材料的退磁曲线出发, 研究材料内的晶粒相互作用. 根据材料磁化和退磁方式的不同, 可以得出两种剩余磁化曲线: 一种是等温剩余磁化曲线(IRM) $M_r(H)$ , 另一种是直流退磁剩磁曲线(DCD) $M_d(H)$ , 样品正向饱和磁化后的剩余磁化强度记作  $M_r(\infty)$ . 样品在反方向饱和磁化的剩余磁化强度  $M_d(0)$ , 两种剩磁曲线与磁体内晶粒相互作用的性质存在以下关系。

1) 对于由非相互作用的单畴粒子组成的磁体,

$M_d(H)$  与  $M_r(H)$  满足 Wohlfarth 关系, 即

$$M_d(H) = M_r(\infty) - 2M_r(H). \quad (1)$$

若以  $M_r(\infty)$  为标准把两种剩磁归一化,  $m_r(H) = M_r(H)/M_r(\infty)$ ,  $m_d(H) = M_d(H)/M_r(\infty)$ , 则(1)式可以改写为  $m_d(H) = m_r(\infty) - 2m_r(H)$ , 即  $m_d(H)$  与  $m_r(H)$  满足线性关系。

2) 如果晶粒之间存在相互作用, 则  $m_d(H)$  与  $m_r(H)$  偏离上述线性关系, 用  $\delta M(H)$  表示这种偏离,

$$\delta M(H) = m_d(H) - [1 - 2m_r(H)]. \quad (2)$$

根据(2)式描绘的曲线称 Henkel 曲线. 若  $\delta M > 0$  表示晶粒相互作用支持磁化状态, 晶粒间的交换

耦合相互作用为主;若  $\delta M < 0$ , 表示晶粒相互作用促进退磁化, 晶粒间的长程静磁相互作用为主, 若  $\delta M = 0$ , 表示晶粒间无相互作用<sup>[13]</sup>.

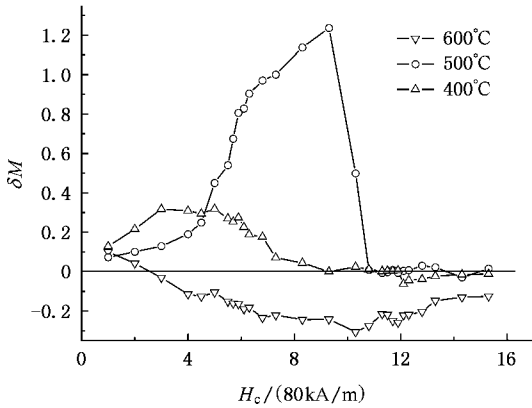


图2 热处理后的  $\text{Fe}_{53}\text{Pt}_{47}$  薄膜的 Henkel 曲线

图2为在不同温度热处理后 FePt 薄膜样品室温条件下测得的 Henkel 曲线. 从图中可以看出, 400°C 热处理后的薄膜样品中存在软硬磁交换耦合作用, 随着热处理温度升高到 500°C, 薄膜内部的软

硬磁交换耦合作用增强, 600°C 薄膜样品的  $\delta M < 0$ , 样品表现出较大的静磁作用, 薄膜样品在热处理过程中软磁相基本完全转变为硬磁相.

### 3.3. FePt 薄膜样品的磁性

从图3中可以看出, 溅射态 FePt 薄膜在室温条件下矫顽力较小, 其磁性主要由软磁的 FePt 面心立方相贡献. 随着热处理温度的提高, 薄膜内部的非晶相开始晶化, 同时面心立方相向面心四方相转变, 矫顽力增强. 400°C 热处理后, FePt 薄膜中硬磁相含量增加, 薄膜表现出硬磁性, 由于还存在软磁的面心立方相  $\gamma\text{-FePt}$ , 所以在室温条件下, 软硬磁相之间存在交换耦合作用. 软硬磁交换耦合作用削弱了硬磁相的矫顽力, 同时使软硬磁相在一个区域磁化方向协同一致, 此时磁滞回线比较平滑. 随着热处理温度进一步提高到 500°C, 硬磁相含量显著增加, 薄膜表现为强的硬磁性, 由于 FePt 薄膜晶粒长大, 部分晶粒间的软硬磁交换耦合作用失效, 在室温条件下磁滞回线上表现出膝点. 600°C 热处理后薄膜晶粒继续长大, 薄膜样品中面心立方相已经完全转变为面心四

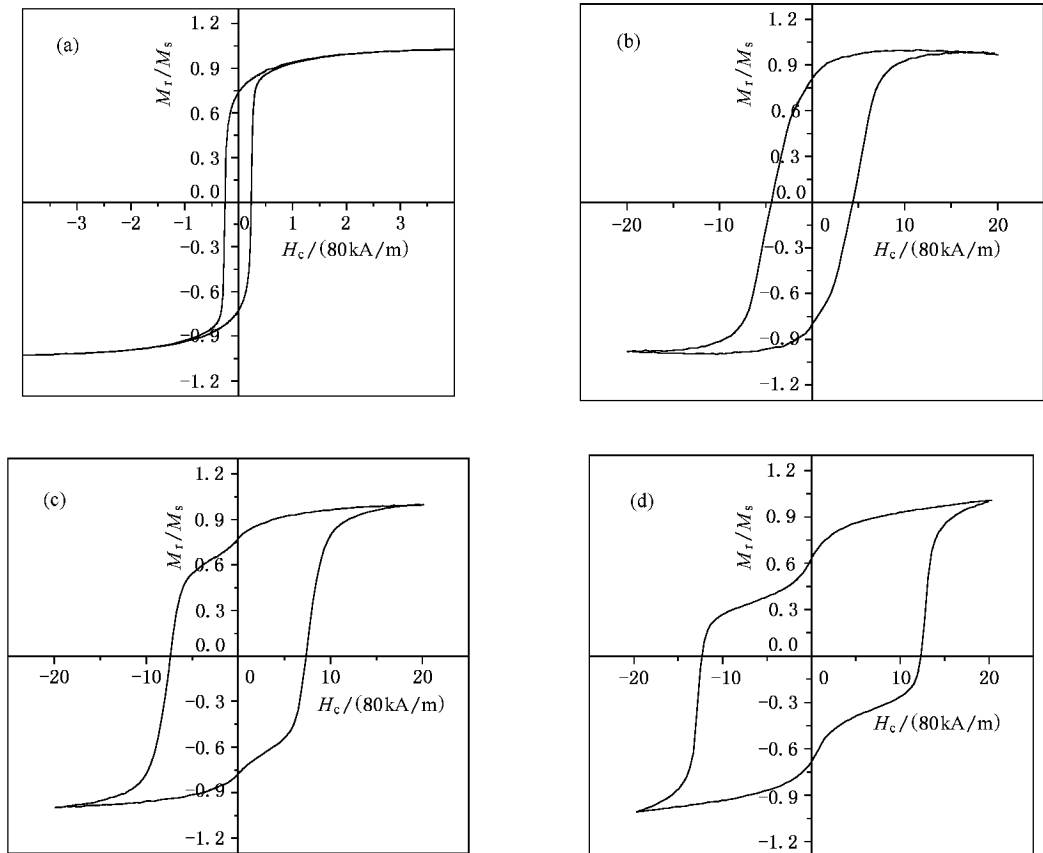


图3 热处理后的  $\text{Fe}_{53}\text{Pt}_{47}$  薄膜的磁滞回线 (a) 溅射态 (b) 400°C (c) 500°C (d) 600°C

方相,由于 FePt 硬磁相合金的 Fe/Pt = 1:1,而实验中薄膜样品中有多于原子配比的 Fe 原子存在,所以样品中存在很少的富 Fe 的  $\gamma_1$  相 Fe<sub>3</sub>Pt,在室温条件下测得的磁滞回线上表现出两相分离而产生的膝点,软磁的  $\gamma_1$ -Fe<sub>3</sub>Pt 相和硬磁的  $\gamma_2$ -FePt 相没有产生交换耦合作用,薄膜内部只存在静磁作用,FePt 薄膜的矫顽力由硬磁的面心四方相  $\gamma_2$ -FePt 贡献,此时矫顽力有最大值.

## 4. 结 论

FePt 薄膜样品在热处理过程中产生相变,由软

磁的面心立方相向硬磁的面心四方相转变的过程中晶粒长大.400℃热处理后薄膜样品的晶粒尺寸约为 20 nm,薄膜内的软硬磁相存在良好的交换耦合作用,软硬磁交换耦合作用削弱了硬磁相的矫顽力,薄膜样品的矫顽力较小为 356.8 kA/m;随着热处理温度升高晶粒长大,硬磁相含量增大,薄膜样品的交换耦合作用部分失效,含量增大的硬磁相对薄膜样品矫顽力的贡献显著,此时 FePt 薄膜矫顽力增加到 592.8 kA/m.600℃热处理后,薄膜样品的晶粒长大到 60 nm,此时薄膜样品中只存在硬磁的  $\gamma_2$ -FePt 相和微量的  $\gamma_1$ -Fe<sub>3</sub>Pt 相,薄膜矫顽力由硬磁相之间的静磁作用贡献,矫顽力为 984 kA/m.

- [ 1 ] Kneller E F , Hawig R 1991 *IEEE trans . Magn .* **27** 3588
- [ 2 ] Zhu J G , Neal Bertram H 1991 *J. Appl. Phys.* **9** 6084
- [ 3 ] Whang S H , Feng Q , Gao Y O 1998 *Acta Mater.* **46** 6485
- [ 4 ] Farrow R F F , Weller D , Marks R F 1998 *J. Appl. Phys.* **84** 934
- [ 5 ] Held G A , Grinstein 2001 *Appl. Phys. Lett.* **79** 1501
- [ 6 ] Zeng H , Li J , Liu J P , Wang Z L , Sun S H 2002 *Letters to Nature* **420** 395
- [ 7 ] Piao K , Li D J , Wei D 2006 *J. M. M. M.* **303** 39
- [ 8 ] Shao Y Z , Lin G M , Lan T , Zhong W R 2002 *Acta Phys. Sin.* **51** 2362 [ in Chinese ] [ 邵元智、林光明、蓝 图、钟伟荣 2002 物理学报 **51** 2362 ]
- [ 9 ] Rong C B , Shen B G , Zhang H W , Zhang S Y , Chen R J , He S L 2004 *Acta Phys. Sin.* **53** 334 [ in Chinese ] [ 荣传兵、沈保根、张宏伟、张绍英、陈仁杰、贺淑莉 2004 物理学报 **53** 334 ]
- [ 10 ] 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 ]
- [ 11 ] Kelly P E , O 'Grady K , Mayo P I , Chantrell R W 1989 *IEEE Trans . Magn .* **25** 3881
- [ 12 ] Zhao Z L , Ding J , Inaba K , Chen J S , Wang J P 2003 *Appl. Phys. Lett.* **83** 2196
- [ 13 ] Wang Y Z , Zhang M C , Qiao Y , Wang J , Wang Y J , Shen B G , Hu B P 2000 *Acta Phys. Sin.* **49** 1600 [ in Chinese ] [ 王亦忠、张茂才、乔 晶、王荫君、沈保根、胡伯平 2000 物理学报 **49** 1600 ]

# The magnetic interactions in FePt nanocomposite film<sup>\*</sup>

Zhan Xiao-Yuan Zhang Yue<sup>†</sup> Qi Jun-Jie Gu You-Song Zheng Xiao-Lan

( Department of Materials Physics and Chemistry , University of Science and Technology Beijing Beijing 100083 ,China )

( Received 9 March 2006 ; revised manuscript received 20 July 2006 )

## Abstract

Fe<sub>53</sub>Pt<sub>47</sub> nanocomposite films have been deposited on naturally oxidized Si(100) substrates by magnetron sputtering. The relationship between the grain size, the magnetic interaction and the annealing temperature have been studied. The FePt films exhibit magnetically hard property with average grain size of about 20 nm after annealing at 400°C, and exchange spring behavior was found in the sample because it is composed of magnetically soft  $\gamma$ -FePt phase and hard  $\gamma_2$ -FePt phase. As the annealing temperature increases, the content of the  $\gamma_2$ -FePt phase increases, at the same time, the grain size gets large, and the exchange spring behavior in some particles was decoupled. The static magnetic interaction only occur between the FePt particles in the film annealed at 600°C.

**Keywords** : magnetic films , nanocrystalline , magnetic properties , annealing

**PACC** : 7550S , 7550V , 7560G

<sup>\*</sup> Project supported by the National Science Fund for Distinguished Young Scholars( Grant No.50325209 )and the Major Project of International Cooperation and Exchange( Grant No.50620120439 ).

<sup>†</sup> E-mail :Yuezhang@ustb.edu.cn