

利用 FePt/Au 多层膜结构制备垂直磁 记录 L₁₀-FePt 薄膜*

冯 春¹⁾ 詹 倩¹⁾ 李宝河²⁾ 滕 蛟¹⁾ 李明华¹⁾ 姜 勇¹⁾ 于广华^{1)†}

1) (北京科技大学材料物理与化学系, 北京 100083)

2) (北京工商大学数理部, 北京 100037)

(2008 年 7 月 24 日收到, 2008 年 8 月 6 日收到修改稿)

利用磁控溅射方法在 100℃ 的 MgO 单晶基片上制备了 [FePt/Au]₀ 多层膜, 并研究了采用 FePt/Au 多层膜结构对 FePt 薄膜的有序化温度、矫顽力 (H_c)、垂直磁各向异性、晶粒尺寸以及颗粒间磁交换耦合作用的影响. 磁性测试结果表明 FePt/Au 多层膜在退火后具有较高的 H_c 、良好的垂直磁各向异性、较小的晶粒尺寸且无磁交换耦合作用. 截面高分辨电镜分析表明 Au 可以缓解 MgO 和 FePt 之间较大的晶格错配, 从而促进薄膜的垂直磁各向异性; 同时, 采用 FePt/Au 多层膜结构增加了 FePt/Au 界面能、应力能以及 Au 原子在薄膜中的扩散作用, 促进了薄膜的有序化, 从而有效降低了有序化温度, 并且大幅度提高其 H_c . 此外, Au 原子部分扩散到 FePt 相的边界处, 起到抑制 FePt 晶粒生长、隔离 FePt 颗粒的作用, 从而显著降低了 FePt 晶粒的尺寸和颗粒间磁交换耦合作用.

关键词: L₁₀-FePt 薄膜, 有序化温度, 垂直磁各向异性, 磁交换耦合作用

PACC: 7550S, 7550V, 7560G

1. 引 言

超高密度垂直磁记录硬盘要求磁记录介质既具有较高的矫顽力 (H_c), 又具有良好的垂直磁各向异性, 同时磁性颗粒的尺寸小且无颗粒间磁耦合作用^[1]. L₁₀-FePt 合金薄膜具有非常高的磁晶各向异性 (7×10^6 J/m³), 是新一代磁记录介质的候选材料^[2]. 然而, 直接制备的 FePt 薄膜通常需要经过高温退火才能获得良好的 L₁₀ 相, 这导致薄膜具有较大的晶粒尺寸和较强的颗粒间磁耦合作用^[3]; 此外, 沉积在玻璃基片上的 FePt 薄膜的易磁化轴 (c 轴) 通常不垂直于膜面, 不符合垂直磁记录的要求. 所以必须使薄膜在低温下有序且具有较高的 H_c , 同时薄膜又具有良好的垂直磁各向异性、较小的晶粒尺寸且无颗粒间磁耦合作用. 围绕这些问题, 国际上进行了很多相关研究, 例如采用 Fe/Pt 多层膜结构增加界面能^[4,5], 利用适当的底层与 FePt 晶格的错配产生

应力能^[6,7], 在薄膜中掺杂表面能低的金属以促进 Fe/Pt 原子的有序化运动^[8,9], 这些措施均能有效地降低薄膜的有序化温度、提高其 H_c . 掺杂某些元素、利用与 FePt 晶格匹配的底层或缓冲层也可以引导 FePt 的垂直取向^[6,10-12], 但薄膜通常仍具有较强的颗粒间磁耦合作用. 另外, 利用化学自组装方法^[13] 或磁控溅射法将 FePt 颗粒埋入非磁性母体中^[14,15], 可以有效地减小 FePt 晶粒尺寸和颗粒间磁耦合作用, 但通常也导致薄膜有序化温度的升高以及取向分布不一致. 能否综合以上促进有序化、实现垂直取向以及颗粒膜方法中的有利因素, 制备出既能够低温有序且具有较高的 H_c , 又具有良好的垂直磁各向异性, 同时晶粒尺寸小且无颗粒间磁耦合作用的 L₁₀-FePt 薄膜, 这是十分值得研究的问题. 本文在 MgO(001) 单晶基片上交替沉积较薄的 FePt 层和表面能较低的 Au 层以形成 FePt/Au 多层膜, 通过 FePt/Au 多层膜结构对微结构进行调整, 制备出具有较高 H_c 和良好的垂直磁各向异性、晶粒尺寸小且无颗粒

* 国家自然科学基金(批准号 50671008) 教育部科学技术研究重大项目基金(批准号 :107116) 和国家重点基础研究发展计划(批准号 : 2007CB936202) 资助的课题.

† 通讯联系人, E-mail: ghyu@mater.ustb.edu.cn

间磁耦合作用的 $\text{Li}_0\text{-FePt}$ 薄膜.

2. 实 验

所有薄膜均在 DV-502 型磁控溅射仪中制备,本底真空度为 5×10^{-5} Pa. 在加热到 100°C 的 MgO (001)单晶基片上制备样品结构为 FePt (10 nm)和 $[\text{FePt}$ (1 nm) Au (1.5 nm)]₁₀ 的薄膜(以下简称为 FePt 薄膜和 FePt/Au 多层膜),直流共溅射 Fe , Pt 靶(纯度 99.99%)沉积 FePt 层,射频溅射 Au 靶(纯度 99.99%)沉积 Au 层. 溅射时工作气压(Ar 气)恒定在 0.45 Pa. Au 和 FePt 的沉积速率分别约为 0.10 nm/s 和 0.14 nm/s. 溅射完毕后的薄膜经真空度为 3×10^{-5} Pa 的真空退火处理,退火温度为 $450\text{--}600^\circ\text{C}$,退火时间为 30 min.

利用等离子体感应原子发射光谱(ICP-AES)测定薄膜中 FePt 的相对成分,均为 $\text{Fe}_{52}\text{Pt}_{48}$. 利用 MicroMag2900 型梯度磁强计(AGFM)测量样品的磁滞回线,外加磁场方向平行或垂直于膜面,最大磁场强度为 1432 kA/m. 此外,利用 AGFM 测量部分样品的 δM 曲线^[16],外加磁场垂直于膜面. 采用 X 射线衍射(XRD)分析样品的晶体学结构,利用高分辨透射电子显微镜(HRTEM)分析部分样品的晶格外延生长和颗粒分布情况.

3. 结果与讨论

我们首先研究了在 MgO 单晶基片上,采用 FePt/Au 多层膜结构对薄膜的有序化温度和磁性能的影响. 图 1 是 FePt 和 FePt/Au 多层膜的垂直膜面矫顽力($H_{\text{C}\perp}$)随退火温度(T)的变化关系. 从图中可知, FePt 薄膜只有经过 600°C 退火后,其 $H_{\text{C}\perp}$ 才能大幅度升高到 294.5 kA/m,即纯 FePt 薄膜的有序化温度为 600°C . 而 FePt/Au 多层膜在 450°C 退火时,其 $H_{\text{C}\perp}$ 就可以达到近 160 kA/m,呈现明显的硬磁性,所以采用 FePt/Au 多层膜结构,可以将薄膜的有序化温度降低到 450°C ,比纯 FePt 薄膜的有序化温度低 150°C . 此外,在同等退火条件下, FePt/Au 多层膜的 $H_{\text{C}\perp}$ 均明显高于 FePt 薄膜的 $H_{\text{C}\perp}$,说明采用 FePt/Au 多层膜结构不仅可以有效地降低 FePt 薄膜的有序化温度,同时还可以大幅度提高薄膜的 H_{C} .

图 2(a)–(d)分别是 500°C 和 600°C 退火时 FePt 薄膜和 FePt/Au 多层膜的磁滞回线. 500°C 退火时,

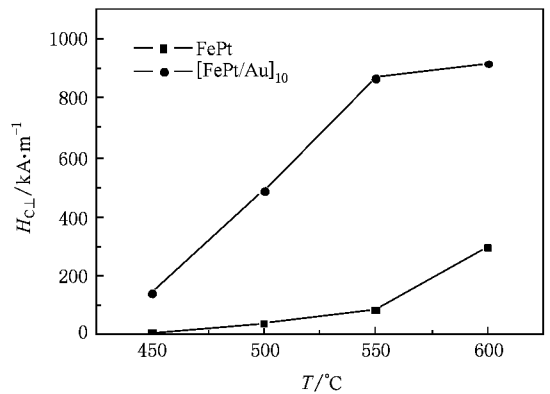


图 1 FePt 和 FePt/Au 多层膜的垂直膜面矫顽力 $H_{\text{C}\perp}$ 随退火温度 T 的变化关系

FePt/Au 多层膜的垂直方向曲线的 H_{C} 达到 485.6 kA/m,剩磁比为 1,开关场分布 S^* 为 0.73,说明薄膜具有良好的垂直磁各向异性和较高的 H_{C} . 而此时 FePt 薄膜还呈现软磁性,而且薄膜的磁易轴方向也不明显. 600°C 退火后, FePt 薄膜沿平行和垂直方向的曲线均易达到饱和,沿垂直膜面方向的曲线具有较高的磁化强度,表明薄膜的易磁化方向虽然沿垂直膜面方向,但薄膜内各晶粒的易磁化轴的取向有一定程度的偏差. 而 FePt/Au 多层膜的垂直方向曲线的方形度和剩磁比都接近 1,平行方向的曲线也表现出明显的磁化难轴特性,说明采用 FePt/Au 多层膜结构后,薄膜的垂直磁各向异性得到明显改善.

图 3(a)是 FePt/Au 多层膜在不同温度退火后的 XRD 图(插图是小角衍射部分). 450°C 退火时, XRD 图中出现很强的小角衍射峰和 FePt/Au 多层膜的卫星峰,其多层膜周期厚度为 2.4 nm,说明此时多层膜结构并没有消失. 由于 FePt 薄膜厚度越薄,其有序化越困难^[17],所以此时薄膜的有序化并不充分,导致 H_{C} 相对较低. 随着 T 升高, FePt/Au 多层膜的小角衍射峰和卫星峰消失,并且出现了较强的 FePt (001)和(002)衍射峰,说明多层膜结构消失,薄膜向具有(001)取向的 $\text{Li}_0\text{-FePt}$ 相转化. 此外, FePt (200)和(002)峰逐渐分开,并分别向小角度和大角度方向偏移,说明 FePt 晶格的 a 轴增大、 c 轴收缩,即薄膜的有序化程度升高. 我们可以用有序化参数 S 来定量描述薄膜的有序化程度^[4]. 图 3(b)是 FePt 薄膜和 FePt/Au 多层膜的 S 随 T 的变化关系. 两种薄膜的 S 均随着 T 的升高而增加,说明薄膜的有序化程度随退火温度的升高而增加;然而, FePt/Au 多层膜的 S 均比同温度退火后的 FePt 薄膜的 S 值高,说明采用

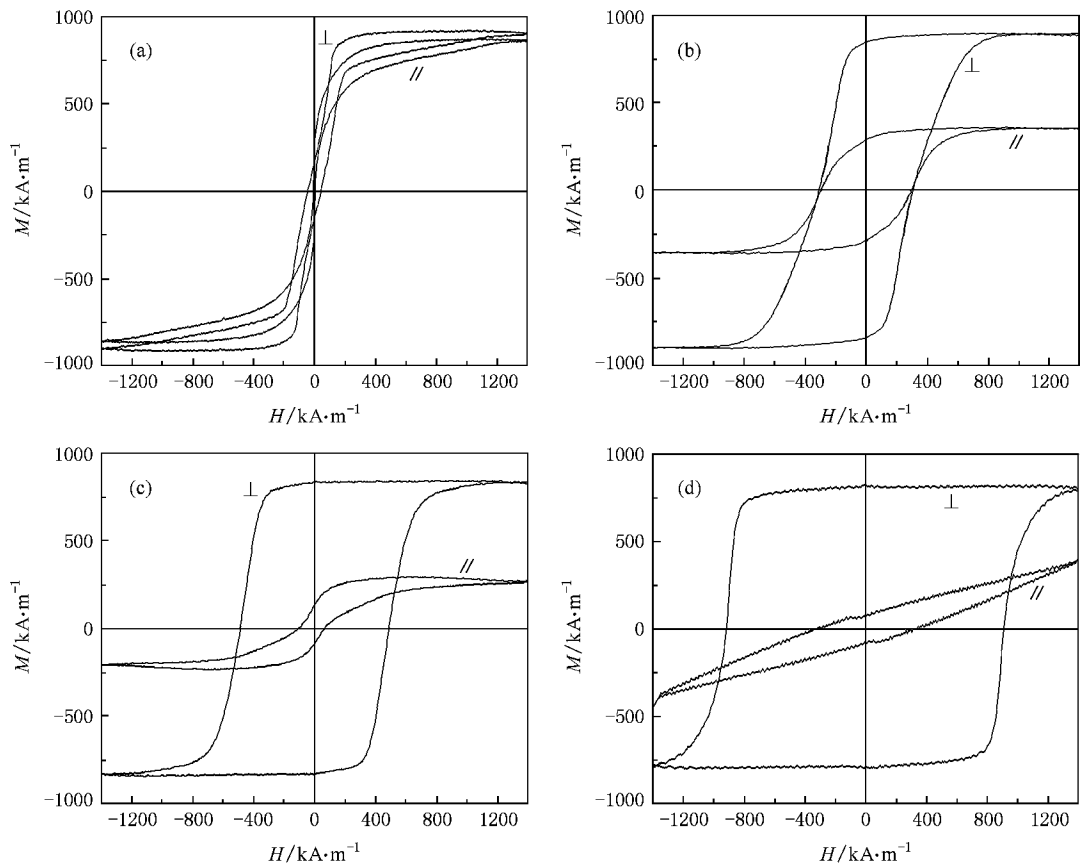


图 2 FePt 薄膜的磁滞回线 (a) 500°C 退火 (b) 600°C 退火, FePt/Au 多层膜的磁滞回线 (c) 500°C 退火 (d) 600°C 退火

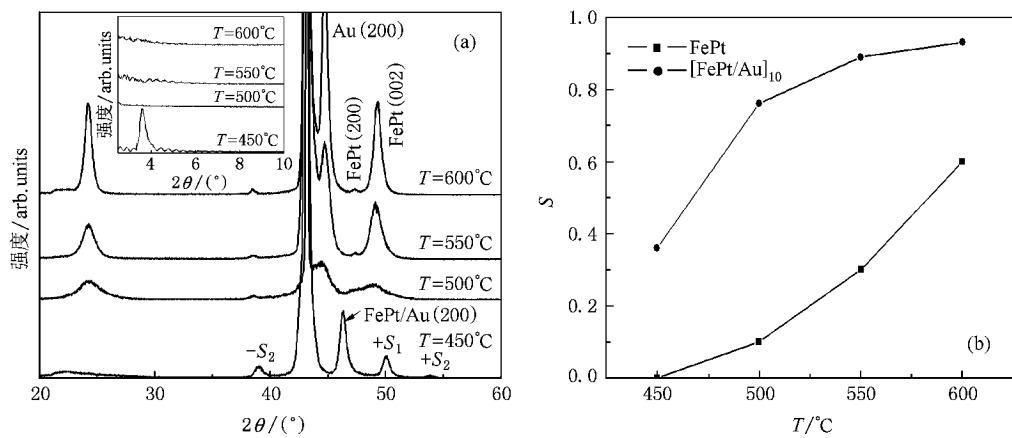


图 3 (a) FePt/Au 多层膜在不同温度退火后的 XRD 图 (插图是小角衍射部分) (b) FePt 薄膜和 FePt/Au 多层膜的 S 随 T 的变化关系

FePt/Au 多层膜结构可以促进 FePt 薄膜的有序化。

图 4 (a) 是利用谢乐公式^[18] 计算出的 FePt 平均晶粒尺寸的变化。可以发现, 两种薄膜的晶粒尺寸均随着 T 的升高而增加, 说明退火温度的升高会促进 FePt 晶粒的生长。但 FePt/Au 多层膜的 FePt 晶粒尺寸明显小于 FePt 薄膜, 说明采用 FePt/Au 多层膜结

构可以有效地抑制 FePt 晶粒的生长, 减小 FePt 晶粒尺寸。此外, 我们测量了两种薄膜的 δM 曲线, 如图 4 (b) 所示。600°C 退火后, FePt 薄膜的 δM 曲线出现一个正值峰, 说明 FePt 颗粒间存在较强的磁交换耦合作用。500°C 和 600°C 退火后的 FePt/Au 多层膜的 δM 曲线均出现一个负值峰, 即磁交换耦合作用较小, 这

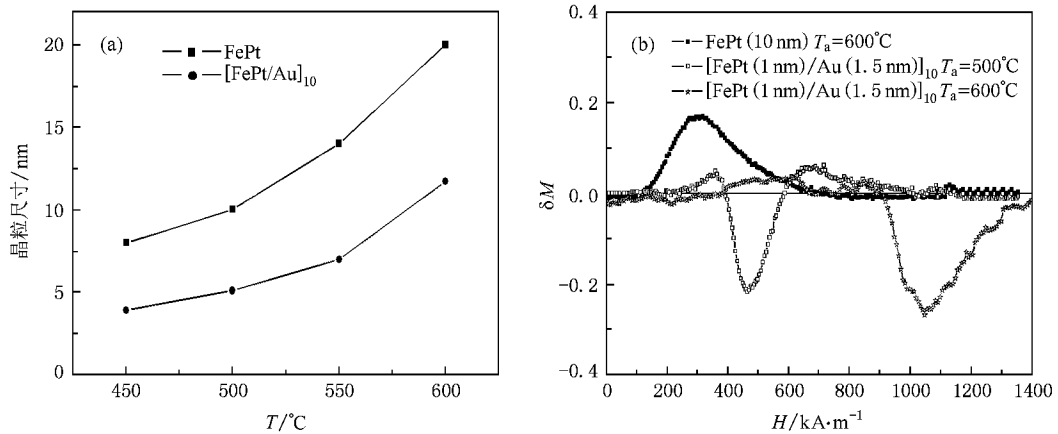


图 4 (a) FePt 平均晶粒尺寸随退火温度的变化 (b) 薄膜的 δM 曲线

说明采用 FePt/Au 多层膜结构也可以有效地降低 FePt 颗粒间的磁交换耦合作用。

上述磁性测量和 XRD 结果表明:采用 FePt/Au 多层膜结构能够改善薄膜的垂直磁各向异性,同时可以有效地降低 FePt 薄膜的有序化温度,并大幅度提高其 H_c 。此外,这种结构还能降低薄膜中 FePt 晶粒尺寸和 FePt 颗粒间磁交换耦合作用。为了进一步分析其中的原因,利用 HRTEM 研究了薄膜截面的微结构,图 5 是经 600°C 退火后两种薄膜的高分辨电子显微谱,入射电子束沿 MgO 基片的 $[100]$ 晶带轴方向。FePt 薄膜的选区电子衍射谱(图 5(a))表明,薄膜中存在 $001 \parallel 100 \text{ MgO} \parallel [001 \parallel 100] \text{ FePt}$ 的晶格外延关系。但是,从局部高分辨相(图 5(b))可以发现,除了上述的晶格外延关系外,局部区域还存在 $010 \parallel 010 \text{ MgO} \parallel [010 \parallel 010] \text{ FePt}$ 的晶格外延关系,使得薄膜内 FePt 晶粒的易磁化轴部分沿垂直膜面方向,部分沿平行膜面方向,即分布不一致,从而导致薄膜的垂直磁各向异性较差。而 FePt/Au 多层膜的选区电子衍射谱(图 5(c))和高分辨相(图 5(d))均表明:薄膜中形成了良好的 $[001 \parallel 100] \text{ MgO} \parallel [001 \parallel 100] \text{ FePt} \parallel [001 \parallel 100] \text{ Au}$ 的晶格外延关系,导致 FePt 的易磁化轴一致地沿垂直于膜面排列,即薄膜具有良好的垂直磁各向异性。这是由于 MgO 晶格($a = 0.4212 \text{ nm}$)与 FePt 晶格($a = 0.3852 \text{ nm}$)的错配度较大(约为 9.3%),导致在 MgO 基片上直接沉积较厚的 FePt 薄膜,难以形成一致的垂直外延生长。然而,Au 晶格的大小($a = 0.4078 \text{ nm}$)介于 MgO 和 FePt 晶格之间,与 FePt 晶格的错配度较小(约为 5.8%),所以 Au 可以缓解 MgO 和 FePt 之间较大的晶格错配,使得薄膜能够更好地实现垂直外

延生长,从而导致其垂直磁各向异性明显优于纯 FePt 薄膜。

从图 5(d)中还可以观察到 FePt 和 Au 的界面处存在一些缺陷和应力集中区,这说明采用 FePt/Au 多层膜结构,为体系增加了 FePt/Au 界面能;同时体系中存在由于 FePt 晶格和 Au 晶格的错配造成的应力能,这两者均为 FePt 薄膜的有序化提供了额外的驱动力^[4,6];同时,由于 Au 元素的表面能较低,在薄膜中易发生扩散,在其扩散过程中给薄膜产生了部分缺陷,有利于 FePt 原子的有序化运动,这两者共同作用导致了薄膜的有序化温度的降低以及有序度 S 的升高^[19],从而导致其矫顽力明显升高^[20]。

在本研究中,由于 FePt 和 Au 的晶格参数存在着差异,所以我们可以利用衍射斑点的傅里叶变换得到薄膜中 FePt 和 Au 相的分布情况。图 5(e)和(f)是分别对 FePt 和 Au 沿 $[001]$ 方向的衍射斑点进行一维傅里叶变换后得到的图像。由于 FePt 和 Au 晶格的错配较小以及光阑的尺寸效应,使得 FePt 和 Au 的衍射斑点不能很好地分开,从而导致 FePt 和 Au 相之间存在部分重叠区域,但是我们仍然可以得到相分布的信息。从图中可知,部分 Au 分布在具有 (001) 取向的 FePt 相的边界处,局部形成了 Au 隔离 FePt 相的结构。这说明部分 Au 原子在退火过程中会扩散到 FePt 相的边界处,一方面起到了抑制 FePt 晶粒长大、细化晶粒的作用^[19,21],减小了 FePt 晶粒尺寸;另一方面也起到了隔离 FePt 颗粒的作用,从而降低了磁交换耦合作用。

4. 结论

本工作研究了在 MgO 单晶基片上,采用 FePt/

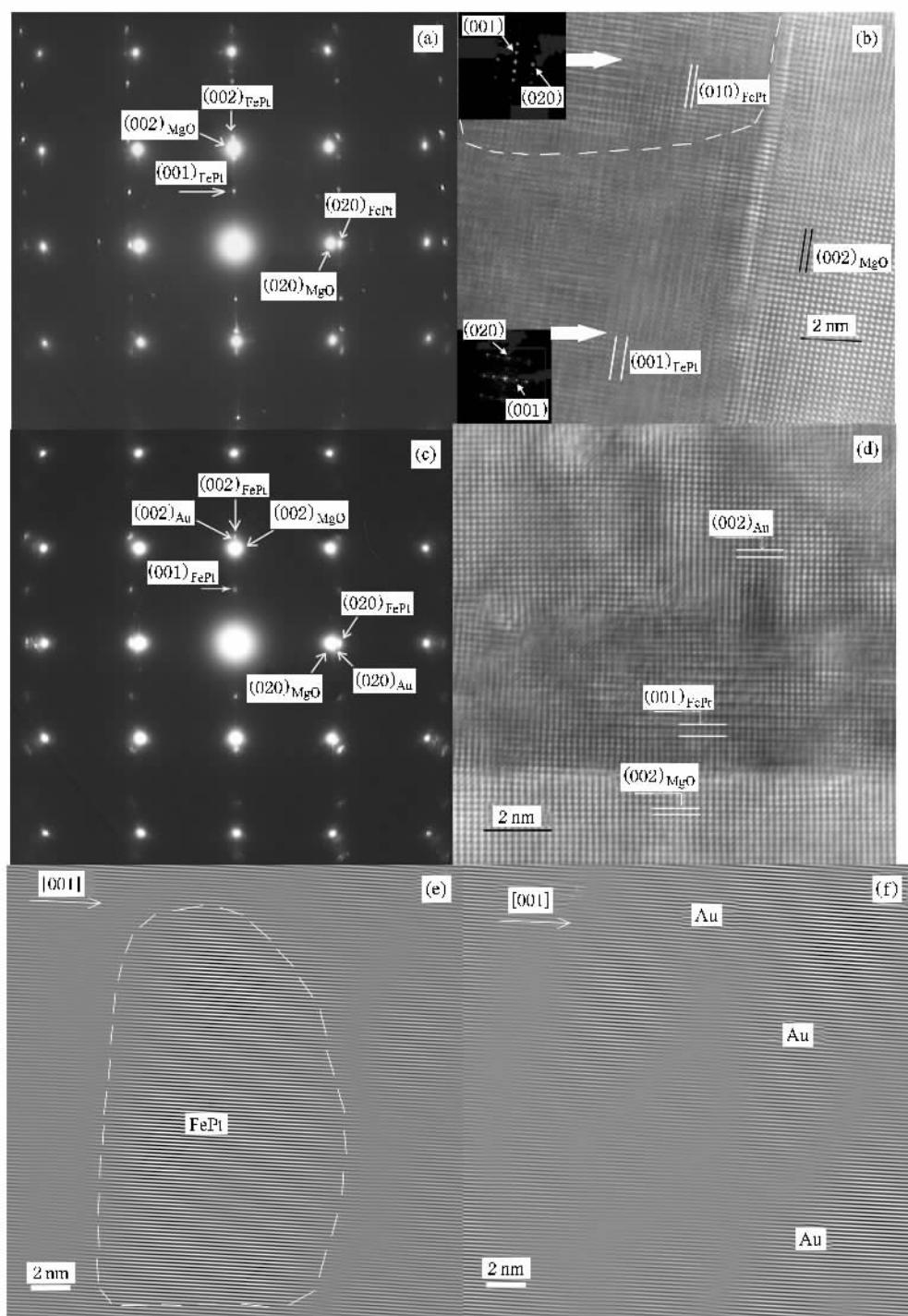


图5 经 600℃退火后两种薄膜的高分辨电子显微谱 (a) FePt 薄膜的选区电子衍射谱 (b) 局部高分辨相, 两幅插图分别表示箭头所指的两个区域的傅里叶变换图 (c) FePt/Au 多层膜的选区电子衍射谱 (d) 局部高分辨相 (e), (f) FePt 和 Au 沿 [001] 方向的衍射斑点的一维傅里叶变换图

Au 多层膜结构对薄膜的有序化温度、 H_C 、垂直磁各向异性、晶粒尺寸以及颗粒间磁耦合作用的影响。结果表明: Au 可以缓解 MgO 和 FePt 晶格之间较大的错配, 从而使薄膜的垂直磁各向异性得到改善; 同时, 这种结构增加了 FePt/Au 界面能、应力能以及 Au

原子的扩散作用, 促进薄膜的有序化, 使其有序化温度降低了 150℃, 并且大幅度提高了其 $H_{C\perp}$; 此外, 扩散到 FePt 相边界处的 Au 原子有利于降低 FePt 的晶粒尺寸和颗粒间磁交换耦合作用。

- [1] Wood R 2000 *IEEE Tran. Magn.* **36** 36
- [2] Sun S H , Murray C B , Weller D , Folks L , Moser A 2000 *Science* **287** 1989
- [3] Kuo C M , Kuo P C , Wu H C , Yao Y D , Lin C H 1999 *J. Appl. Phys.* **85** 4886
- [4] Endo Y , Kikuchi N , Kitakami O , Shimada Y 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 7065
- [5] Zhu Y , Cai J W 2005 *Acta Phys. Sin.* **54** 393 (in Chinese) [竺云、蔡健旺 2005 物理学报 **54** 393]
- [6] Xu Y F , Chen J S , Wang J P 2002 *Appl. Phys. Lett.* **80** 3325
- [7] Hsu Y N , Jeong S , Laughlin D E , Lambeth D N 2001 *J. Appl. Phys.* **89** 7068
- [8] Yan Q Y , Kim T Y , Purkayastha A , Ganesan P G , Shima M , Ramanath G 2005 *Adv. Mater.* **17** 2233
- [9] Feng C , Li B H , Han G , Teng J , Jiang Y , Liu Q L , Yu G H 2006 *Appl. Phys. Lett.* **88** 232109
- [10] Zhou Y Z , Chen J S , Chow G M , Wang J P 2004 *J. Appl. Phys.* **95** 7495
- [11] Kang K , Zhang Z G , Papisoi C , Suzuki T 2004 *Appl. Phys. Lett.* **84** 404
- [12] Zhang L J , Cai J W 2007 *Acta Phys. Sin.* **56** 7266 (in Chinese) [张丽娇、蔡健旺 2007 物理学报 **56** 7266]
- [13] Sun S H 2006 *Adv. Mater.* **18** 393
- [14] Luo C P , Sellmyer D J 1999 *Appl. Phys. Lett.* **75** 3162
- [15] Huang Y , Okumura H , Hadjipanayis G C , Weller D 2002 *J. Magn. Magn. Mater.* **242/245** 317
- [16] Kelly P E , Grady K O , Mayo P I , Chantrell R W 1989 *IEEE Trans. Magn.* **25** 3881
- [17] Lim B C , Chen J S , Wang J P 2004 *J. Magn. Magn. Mater.* **271** 431
- [18] Cullity B D , Stock S R 2001 *Elements of X-ray Diffraction* , 3rd ed. Prentice Hall
- [19] Feng C , Li B H , Liu Y , Teng J , Li M H , Jiang Y , Yu G H 2008 *J. Appl. Phys.* **103** 023916
- [20] Sellmyer D J , Luo C P , Yan M L , Liu Y 2001 *IEEE Tran. Magn.* **37** 1286
- [21] Hadjipanayis G C , Zhang M C , Gao C 1989 *Appl. Phys. Lett.* **54** 1812

Preparation of $L1_0$ -FePt film for perpendicular magnetic recording media by using FePt/Au multilayers^{*}

Feng Chun¹⁾ Zhan Qian¹⁾ Li Bao-He²⁾ Teng Jiao¹⁾ Li Ming-Hua¹⁾ Jiang Yong¹⁾ Yu Guang-Hua^{1)†}

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

2) (Department of Mathematics and Physics , Beijing Technology and Business University , Beijing 100037 , China)

(Received 24 July 2008 ; revised manuscript received 6 August 2008)

Abstract

FePt/Au multilayers were deposited on 100°C MgO(001) single crystal substrate by magnetron sputtering. The influence of the FePt/Au multilayer structure on the ordering temperature, coercivity (H_C), perpendicular magnetic anisotropy (PMA), FePt grain size and interparticle exchange coupling (IEC) of films were studied. Results show that the film possesses high H_C , excellent PMA, small grain size and weak interparticle exchange coupling after annealing. The results of HRTEM reveal that Au can relieve mismatch between MgO and FePt lattices, leading to excellent PMA. Moreover, the FePt/Au interface energy, the stress energy due to the mismatch between FePt and Au lattices and the diffusion of Au atoms promote the ordering of FePt film. This leads to the decrease of ordering temperature and considerable increase of H_C . Au atoms partly diffuse to the boundaries of FePt phase and function as grain finer and particle isolator, which decrease the FePt grain size and IEC.

Keywords : $L1_0$ -FePt film , ordering temperature , perpendicular magnetic anisotropy , interparticle exchange coupling

PACC : 7550S , 7550V , 7560G

^{*} Project supported by the National Science Foundation of China (Grant No. 50671008), the Foundation for Key Program of Ministry of Education , China (Grant No. 107116), The National Basic Research Program of China (Grant No. 2007CB936202).

[†] Corresponding author. E-mail : ghyu@mater.ustb.edu.cn