

[FePt/Ag]₁₀多层膜的结构和磁学性能

许小红 王芳 武海顺

(山西师范大学化学与材料科学学院, 临汾 041004. E-mail: xuxh@dns.sxtu.edu.cn)

摘要 采用磁控溅射在玻璃基片上制备了[FePt/Ag]₁₀纳米多层膜. 经 550 °C, 30 min真空退火后, [FePt/Ag]₁₀多层膜的矫顽力显著增大. [FePt/Ag]₁₀多层膜的磁学性能受Ag体积百分含量的影响, 多层膜中含 25%的Ag可以得到最大矫顽力. 剩磁曲线分析表明, 在Ag含量相等的[FePt/Ag]₁₀多层膜中, 较薄的磁性层有利于减小晶粒间交换耦合作用. X射线衍射结果表明, Ag层厚度为 5 nm时, FePt (001)峰强度明显增大. 通过磁黏滞系数法可以得到 10^{-24} m³的磁反转体积, 说明所设计的[FePt/Ag]₁₀多层膜可以满足超高密度磁记录对介质的要求.

关键词 [FePt/Ag]₁₀多层膜 矫顽力 剩磁曲线 磁反转体积

近十年来, FePt有序合金薄膜引起人们的广泛关注, 其原因是由于具有L₁₀结构的FePt合金具有非常高的磁晶各向异性能(K_u 约 10^{6-7} J/m³)^[1,2], 是超高密度磁记录介质的首选材料. L₁₀结构的FePt是一种有序的面心四方相, c轴比a轴短, 沿c轴方向Fe原子和Pt原子交替排列. 冷基片溅射态的FePt合金薄膜是无序的fcc结构, 要获得有序的L₁₀相, 就需要在溅射过程中采用基片加温或采用真空后退火方法来实现, 而高温热处理又会导致晶粒的长大. 为得到小而均匀的晶粒, 人们在制备方法上进行了探索, 如化学合成FePt纳米颗粒^[3-5], 制备含不同非磁性层元素和化合物的多层膜^[6,7]和共溅射薄膜^[8-12]. Suzuki^[13], 杨涛^[14]等人对FePt/Ag多层膜进行了报道, 主要研究Ag层厚度对垂直取向的影响. 目前Ag中间层的加入及其厚度(或体积百分含量)对[FePt/Ag]₁₀多层膜取向生长、晶粒间交换耦合作用以及磁反转体积的影响仍不十分清楚.

为了进一步研究Ag层对[FePt/Ag]₁₀多层膜的影响, 我们设计并制备了不同厚度的FePt层和Ag层的[FePt/Ag]₁₀多层膜, 详细研究不同百分含量的Ag和不同厚度FePt层对多层膜磁学性能、结构、晶粒间交换耦合作用以及磁反转体积的影响. 这对[FePt/Ag]₁₀多层膜在超高密度磁记录介质中的应用具有重要指导意义.

1 实验

采用DC和RF磁控溅射在玻璃基片上成功制备了[FePt/Ag]₁₀纳米多层膜. 实验中采用Ag靶和FePt复合靶, 本底真空优于 5×10^{-5} Pa, 溅射时Ar的工作气压为 0.8 Pa. 溅射制备的样品在 2×10^{-4} Pa, 550 °C

进行 30 min的退火. 薄膜厚度采用美国Ambios Tech的XP-2 台阶仪测得; 在 ± 1440 kA/m场强下采用美国LakeShore的 7407 型振动样品磁强计(VSM)对退火前后样品进行了磁性测量; 采用德国Bruker D8 X-ray衍射仪对样品结构进行了表征.

2 结果与讨论

2.1 Ag含量对薄膜磁学性能和晶粒间交换耦合作用的影响

溅射态的[FePt/Ag]₁₀纳米多层膜均为fcc结构, 表现为软磁特性, 矫顽力(H_c)只有 8 kA/m左右. 经 550 °C真空退火后, 矫顽力显著增大. 图 1 和图 2 分别是 550 °C退火后[FePt 2 nm/Ag y nm]₁₀和[FePt 3 nm/Ag y nm]₁₀多层膜的矫顽力随Ag层厚度的变化曲线. 通过图 1 和图 2 发现, 随Ag层厚度的增加, 面内矫顽力 (H_c)、垂直矫顽力(H_c)都是先增大后减小, 并在[FePt 2 nm/Ag 0.75 nm]₁₀与[FePt 3 nm/Ag 1.0 nm]₁₀处分别得到最大矫顽力, 其对应Ag的体积百分含量分别为 27%和 25%, 其 H_c 和 H_c 都在 640 kA/m以上, 说明多层膜中Ag的百分含量对磁学性能有很大影响. 在图 1 中, 当FePt磁性层为 2 nm, Ag层小于 1.0 nm时, 面内矫顽力大于垂直矫顽力; 当Ag层厚度继续增大到 1.25 nm时, 垂直矫顽力却明显大于面内矫顽力; Ag厚度达到 5 nm时, 可获得 320 kA/m的垂直矫顽力, 而面内矫顽力还不足 104 kA/m, 说明较厚的Ag层有利于FePt薄膜垂直取向生长. Suzuki^[13]等人通过脉冲激光法制备的相同结构的多层膜只能使垂直矫顽力达到 232 kA/m. 如图 2 所示, 当FePt磁性层厚度增大为 3 nm时, 垂直矫顽力均小于面内矫顽力. 对比图 1 与图 2 我们可以发现,

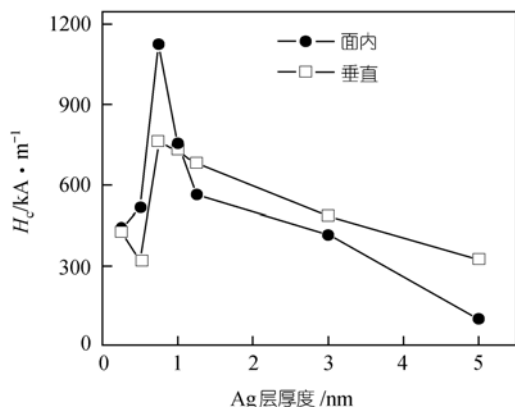


图 1 $[\text{FePt } 2 \text{ nm/Ag } y \text{ nm}]_{10}$ 的 H_c 与 Ag 层厚度的关系

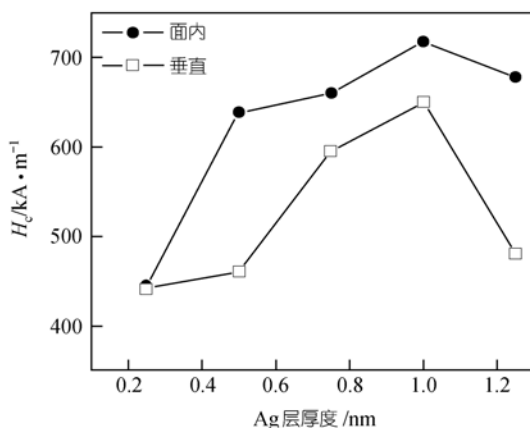


图 2 $[\text{FePt } 3 \text{ nm/Ag } y \text{ nm}]_{10}$ 的 H_c 与 Ag 层厚度的关系

较薄的 FePt 磁性层和较厚的 Ag 非磁性层形成的多层膜更利于垂直取向的形成。

由于 $[\text{FePt } 2 \text{ nm/Ag } 0.75 \text{ nm}]_{10}$ 与 $[\text{FePt } 3 \text{ nm/Ag } 1.0 \text{ nm}]_{10}$ 的矫顽力最大, 而 $[\text{FePt } 3 \text{ nm/Ag } 0.75 \text{ nm}]_{10}$ 多层膜分别与上述两个膜的 Ag 层或 FePt 层厚度相等, 因而我们对这三个多层膜的磁滞回线进行了对比分析。图 3 是 $[\text{FePt/Ag}]_{10}$ 多层膜的磁滞回线。从图 3 可以看出, 固定 Ag 层厚度, FePt 厚度不同时, 磁滞回线的形状发生很大变化, 而固定 FePt 厚度, 变化 Ag 层厚度时, 磁滞回线没有发生形状上的变化。由于磁滞回线可以反映材料的磁化机理, 所以 FePt 磁性层厚度是影响磁化机理的关键。

决定记录介质噪声的一个重要参数就是晶粒间的交换耦合作用程度, 通常采用 Kelly-Henkel 曲线 (又称 δM 曲线) 来反映^[12]。

$$\delta M = M_d(H) - [1 - 2M_r(H)], \quad (1)$$

式中, $M_d(H)$ 是直流退磁剩磁曲线 (DCD), $M_r(H)$ 是等温剩磁曲线 (IRM), 图 4 是与图 3 相对应的 $[\text{FePt/Ag}]_{10}$

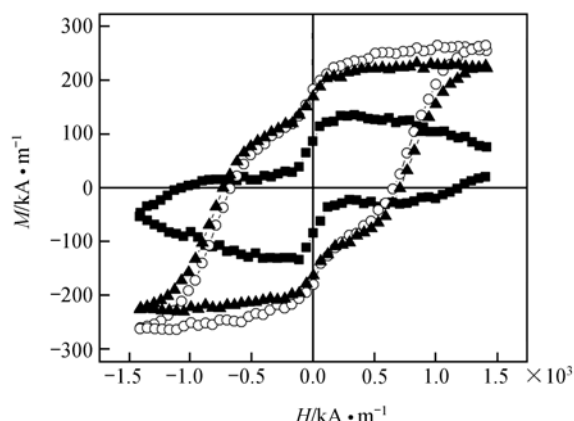


图 3 $[\text{FePt/Ag}]_{10}$ 多层膜的磁滞回线

—■—, $[\text{FePt } 2 \text{ nm/Ag } 0.75 \text{ nm}]_{10}$, —○—, $[\text{FePt } 3 \text{ nm/Ag } 0.75 \text{ nm}]_{10}$,
—▲—, $[\text{FePt } 3 \text{ nm/Ag } 1.0 \text{ nm}]_{10}$

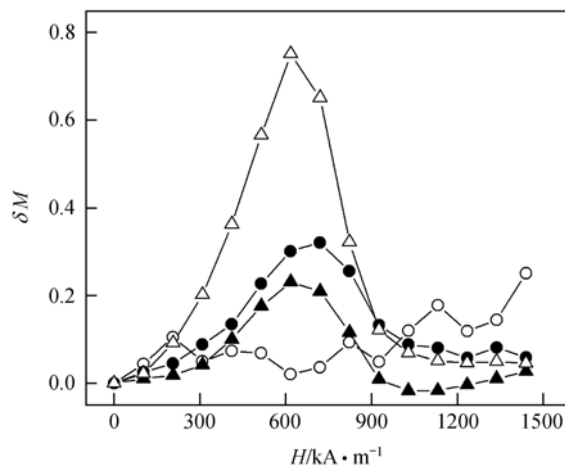


图 4 $[\text{FePt/Ag}]_{10}$ 多层膜的 δM 曲线

—○—, $[\text{FePt } 2 \text{ nm/Ag } 0.75 \text{ nm}]_{10}$, —▲—, $[\text{FePt } 3 \text{ nm/Ag } 0.75 \text{ nm}]_{10}$,
—●—, $[\text{FePt } 3 \text{ nm/Ag } 1.0 \text{ nm}]_{10}$, ———, FePt 50 nm

多层膜和纯 FePt 薄膜的 δM 曲线。与 50 nm 纯 FePt 薄膜相比, $[\text{FePt/Ag}]_{10}$ 多层膜可明显降低晶粒间的交换耦合作用。从图中还能发现, 在 FePt 厚度为 3 nm, Ag 为 1.0 nm 或 0.75 nm 的多层膜中, 晶粒间仍存在一定的交换耦合作用。

图 4 中, $[\text{FePt } 2 \text{ nm/Ag } 0.75 \text{ nm}]_{10}$ 多层膜的 δM 曲线不够规则, 为了进一步准确分析该薄膜的晶粒间交换耦合作用, 我们将采用 Wolhfarth 关系来分析。对于非相互作用的单畴粒子组成的磁体, $m_d(H)$ 与 $m_r(H)$ 满足 Wolhfarth 关系^[15,16]。

$$m_d(H) = m_r(\infty) - 2m_r(H). \quad (2)$$

若以 $m_r(\infty)$ 为标准归一化, $M_r(H) = m_r(H)/m_r(\infty)$, $M_d(H) = m_d(H)/m_r(\infty)$, 则 (2) 式可改写为 $M_d(H) = 1 - 2M_r(H)$, 即 $M_d(H)$ 与 $M_r(H)$ 满足斜率为 -2 的线性关系。若晶粒之

间存在相互作用, 则 $m_d(H)$ 与 $m_r(H)$ 偏离线性关系. 可以通过比较 $m_r(H)$ 与 $m_d(H)$ 偏离Wohlfarth线性关系的程度来比较晶粒间的耦合作用的大小^[16]. 当 $m_r(H)$ 与 $m_d(H)$ 曲线(Wohlfarth剩磁分析曲线)向上偏离时说明晶粒间存在交换耦合作用, 向下偏离则存在偶极相互作用. 图 5 和图 6 分别为[FePt 2 nm/Ag 0.75 nm]₁₀和[FePt 3 nm/Ag 0.75 nm]₁₀的Wohlfarth剩磁分析曲线. 在[FePt 2 nm/Ag 0.75 nm]₁₀多层膜中, $m_r(H)$ 与 $m_d(H)$ 基本满足线性关系, 表明该薄膜晶粒间几乎不存在交换耦合作用. 这可能是由于非磁性的Ag相多数分布在FePt晶粒的晶界处, 从而有效降低了磁性晶粒间的交换耦合作用. 而[FePt 3 nm/Ag 0.75 nm]₁₀多层膜中, 曲线稍微向上偏离线性关系, 说明[FePt 3

nm/Ag 0.75 nm]₁₀的晶粒间仍存在一定的交换耦合作用, 这与图 4 中的 δM 曲线得到的结果是一致的.

2.2 磁反转体积的研究

磁反转体积又称磁激活体积, 是在磁反转过程中使磁化连续反转的最小体积, 大的反转体积会带来大的读出信号, 不利于提高记录密度. 我们通过黏滞系数法^[6,17]计算了[FePt/Ag]₁₀多层膜的磁反转体积(V_a):

$$V_a = k_B T \chi_{irr} / M_S S, \tag{3}$$

式中, k_B , T , M_S , S , χ_{irr} 分别为玻兹曼常数、绝对温度、饱和磁化强度、磁黏滞系数和不可逆磁化系数. 其中, 不可逆磁化系数 $\chi_{irr} = dM_{dcd}(H)/dH$, 可以通过DCD的微分曲线得到, 即 $dM_{dcd}(H)/dH$ 曲线的峰值为 χ_{irr} 的值. 磁黏滞系数 S 可以在一定磁场下直接得磁化强度随时间衰减的 $M(t) \sim t$ 关系, 根据 $S = -dM/d\ln t$ 求得 $M(t) \sim \ln(t)$ 直线的斜率, 即为磁黏滞系数 S 的值^[18]. 通过式(3)来计算[FePt/Ag]₁₀多层膜的磁反转体积, 结果如表 1 所示. 若记录介质的热稳定因子 $K_u V_a / k_B T > 60$, 表明介质的热稳定性良好, 不会出现超顺磁现象. 式中 K_u 为各向异性性能, 其值为 4×10^6 J/m³^[16]. 计算所得的 $K_u V_a / k_B T$ 值列于表 1, 通过表 1 可以看出, 薄膜的 $K_u V_a / k_B T$ 值远远大于 60, 说明该多层膜具有高的热稳定性, 符合高密度磁记录介质的要求. 假设磁反转体积形状为球形, 则其半径仅约为 10 nm 左右.

2.3 Ag 含量对薄膜结构的影响

图 7 是[FePt 2 nm/Ag y nm]₁₀ ($y = 0.25, 0.75, 1.0, 3.0, 5.0$ nm)薄膜的XRD图. 从图 7 我们可以看出, 在Ag层厚度为 0.25 nm 时, 只能在 2θ 为 41.36°观察到FePt(111)的衍射峰. 当Ag厚度增加到 0.75 nm 时, 可明显观察到Ag(111)峰, 且随着Ag厚度继续增大, Ag(111)峰的强度越来越大. Ag厚度为 5 nm 时, 我们能明显观察到Ag(200)衍射峰. 由于Ag(200)面与FePt(001)和(002)面有很小的晶格失配, 因而可以诱导FePt以(001)和(002)面的择优取向生长, 从而在XRD图中观察到较强FePt(001)和(002)超晶格衍射峰. 说明较厚的Ag层可以促使FePt易磁化轴的垂直取向. 在Ag层厚度增大的过程中, 我们还发现FePt(111)峰的位置发生了偏移, 2θ 从 0.25 nm 的 41.36°偏移到 5 nm

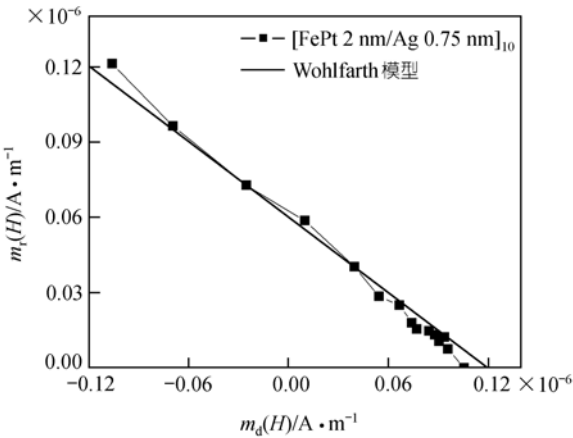


图 5 [FePt 2 nm/Ag 0.75 nm]₁₀的Wohlfarth剩磁分析曲线

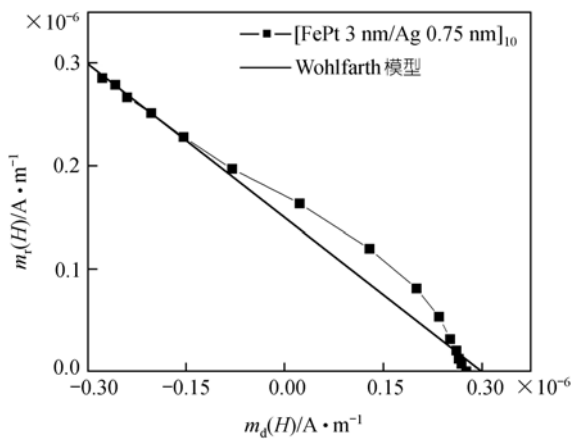


图 6 [FePt 3 nm/Ag 0.75 nm]₁₀的Wohlfarth剩磁分析曲线

表 1 [FePt/Ag]₁₀纳米多层膜的磁反转体积

样品	$\chi_{irr} / (A \cdot m^2)^2 \cdot J^{-1}$	$M_S / A \cdot m^{-1}$	$S / mA \cdot m^2$	V_a / m^3	R_a / nm	$K_u V_a / k_B T$
[FePt 2 nm/Ag 0.75 nm] ₁₀	3.14×10^{-7}	134.31×10^3	1.44×10^{-6}	6.67×10^{-24}	11.67	6485
[FePt 3 nm/Ag 0.75 nm] ₁₀	9.34×10^{-7}	264.14×10^3	3.36×10^{-6}	4.33×10^{-24}	10.11	4209
[FePt 3 nm/Ag 1.0 nm] ₁₀	8.11×10^{-7}	231.04×10^3	4.43×10^{-6}	3.26×10^{-24}	9.20	3169

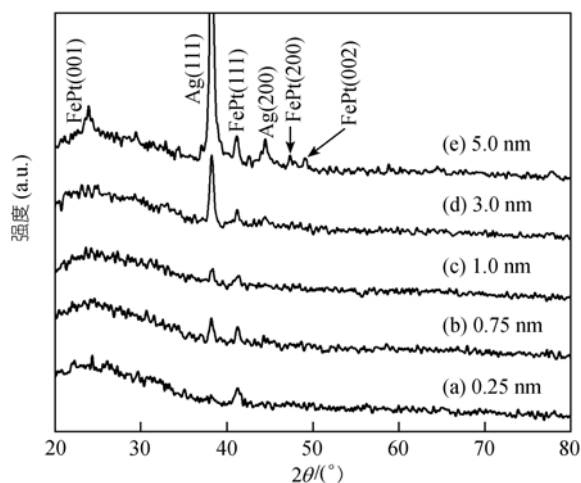


图 7 $[\text{FePt } 2 \text{ nm}/\text{Ag } y \text{ nm}]_{10}$ 的 XRD 图

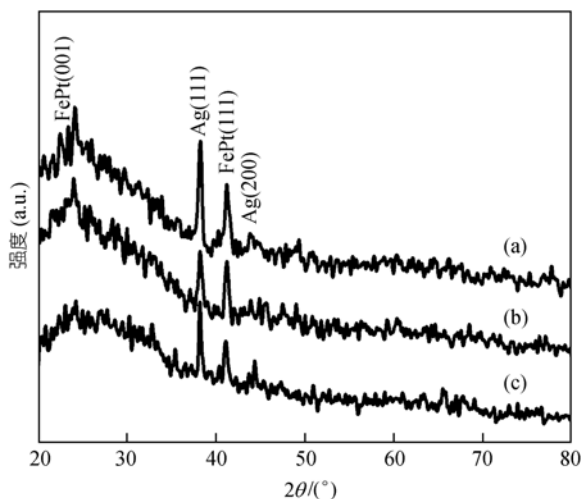


图 8 $[\text{FePt}/\text{Ag}]_{10}$ 的 XRD 图

的 41.10° ，衍射峰偏移说明 FePt 晶胞在不断增大，其原因可能是随着多层膜中 Ag 含量增加，使得 Ag 原子扩散到 FePt 晶胞中所致。

图 8 中(a), (b), (c)分别为 $[\text{FePt } 3 \text{ nm}/\text{Ag } 1.0 \text{ nm}]_{10}$, $[\text{FePt } 3 \text{ nm}/\text{Ag } 0.75 \text{ nm}]_{10}$, $[\text{FePt } 2 \text{ nm}/\text{Ag } 0.75 \text{ nm}]_{10}$ 多层膜的 XRD 图。从图中可以看出，除了 fcc-FePt 的 (111) 峰以外，均出现 FePt(001) 超晶格衍射峰和 Ag(111), Ag(200) 峰，说明退火后 FePt 已从无序的 fcc 相部分转变为有序的 L_{10} 相。

3 结论

(1) $[\text{FePt}/\text{Ag}]_{10}$ 多层膜中，Ag 含量为 25% 时，可以得到最大矫顽力。通过剩磁曲线分析可知， $[\text{FePt } 2 \text{ nm}/\text{Ag } 0.75 \text{ nm}]_{10}$ 多层膜几乎不存在晶粒间交换耦合作用。

(2) 通过磁黏滞系数法测得薄膜的磁反转体积

为 10^{-24} m^3 , $K_u V_a / k_B T$ 值远远大于 60，满足未来高密度磁存储对介质的要求。

(3) XRD 结果表明：Ag 层为 5 nm 时，FePt 以 (001) 择优取向生长，易磁化轴垂直于膜面，其垂直矫顽力达 320 kA/m，而面内矫顽力不足 104 kA/m。FePt(111) 峰的偏移可能是由于 Ag 扩散到 FePt 晶胞所致。

致谢 本工作为国家自然科学基金(批准号：20341005)和山西省自然科学基金(批准号：20041032)资助项目。

参 考 文 献

- Weller D, Moser A, Folks L, et al. High K_u materials approach to 100 Gbits/in². IEEE Trans Magn, 2000, 36(1): 10~15[DOI]
- Thiele J U, Folks L, Toney M F, et al. Perpendicular magnetic anisotropy and magnetic domain structure in sputtered epitaxial FePt(001) L_{10} films. J Appl Phys, 1998, 84(10): 5686~5692[DOI]
- Sun S, Fullerton E E, Weller D, et al. Compositionally controlled FePt nanoparticle materials. IEEE Trans Magn, 2001, 37(4): 1239~1243[DOI]
- Zeng H, Li J, Wang Z L, et al. Interparticle interactions in annealed FePt nanoparticle assemblies. IEEE Trans Magn, 2002, 38(5): 2598~2600[DOI]
- Wang S, Kang S S, Nikles D E, et al. Magnetic properties of self-organized L_{10} FePtAg nanoparticle arrays. J Magn Magn Mater, 2003, 266: 49~56[DOI]
- Sellmyer D J, Luo C P, Yan M L, et al. High-anisotropy nanocomposite films for magnetic recording. IEEE Trans Magn, 2001, 37(4): 1286~1291[DOI]
- Christodoulides J A, Farber P, Daniil M, et al. Magnetic, structural and microstructural properties of FePt/M ($M = \text{C}; \text{BN}$) granular films. IEEE Trans Magn, 2001, 37(4): 1292~1294[DOI]
- Chen S C, Kuo P C, Sun A C, et al. Granular FePt-Ag thin films with uniform FePt particle size for high-density magnetic recording. Materials Science and Engineering, 2002, B88: 91~97
- Kuo C M, Kuo P C, Hsu W C, et al. Effects of W and Ti on the grain size and coercivity of $\text{Fe}_{50}\text{Pt}_{50}$ thin films. J Magn Magn Mater, 2000, 209: 100~102[DOI]
- Chen S K, Yuan F T, Chang W C, et al. Magnetic properties of FePt and $\text{Fe}_{50}\text{Pt}_{50-x}\text{Nb}_x$ ($x = 0.00, 0.83, 1.31, 2.05$) thin films. J Magn Magn Mater, 2002, 239: 471~474[DOI]
- Platt C L, Wierman K W, Howard J K, et al. A comparison of FePt thin films with HfO_2 or MnO additive. J Magn Magn Mater, 2003, 260: 487~491[DOI]
- Li N, Lairson B M, Kwon O H. Magnetic characterization of intermetallic compound FePt and FePtX ($X = \text{B}, \text{Ni}$) thin films. J Magn Magn Mater, 1999, 205: 1~6[DOI]
- Kang K, Yang T, Suzuki T. Structural and magnetic properties of FePt-Ag composite film with perpendicular magnetic anisotropy. IEEE Trans Magn, 2002, 38(5): 2039~2041[DOI]
- 杨涛, 于广华, 黄阔, 等. 真空退火 FePt/Ag 纳米多层膜的结构和磁性. 科学通报, 2002, 47(23): 1778~1780[摘要] [PDF]
- Mayo P L, O'Grady K, Kelly P E, et al. A magnetic evaluation of interaction and noise characteristics of CoNiCr thin films. J Appl Phys, 1991, 69(8): 4733~4735[DOI]
- Chen S K, Tsai J L, Chin T S. Nanocomposite $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}/\text{Co}$ permanent mechanical alloying. J Appl Phys, 1996, 79(8): 5964~5966[DOI]
- Shimatsu T, Lodder J C, Sugita Y, et al. Thermal fluctuation of magnetization in nanocrystalline FePt thin films with high coercivity. IEEE Trans Magn, 1999, 35(5): 2697~2699[DOI]
- Witte A M, O'Grady K, Coverdale G N, et al. Activation volumes of reversal in ultrafine particles and recording media. J Magn Magn Mater, 1990, 88: 183~193[DOI]

(2004-03-30 收稿, 2004-07-26 收修改稿)