

FePt/FeRh 双层薄膜的结构和磁性

赵湖钧^①, 朱艳艳^①, 曾道富^①, 李鱼辉^①, 郑富^{②④}, 裴文利^{③④}, 江川元太^④, 吉村哲^④, 齐藤准^④, 李国庆^{①④*}

① 西南大学物理科学与技术学院, 重庆 400715;

② 宁夏大学物理电气信息学院, 银川 750021;

③ 东北大学材料各向异性与织构教育部重点实验室, 沈阳 110006;

④ School of Engineering and Resource Science, Akita University, Akita 010-0852, Japan

* 联系人, E-mail: gqli@swu.edu.cn

2014-10-27 收稿, 2014-12-15 接受, 2015-04-10 网络版发表

国家自然科学基金(51071132)资助

摘要 用磁控溅射法, 在加热到400℃的MgO(001)基片上, 得到25 nm厚的A1相FePt软磁薄膜, 经过热处理使之发生不同程度的A1→L1₀相转变, 在450℃继续生长50 nm厚的FeRh, 并在相同温度连续保温24 h, 使FeRh层转变为有序的B2相, 得到具有热致反铁磁-铁磁转变性质的FePt/FeRh双层复合磁性薄膜。结果表明, FePt层和FeRh层都有(001)取向; 在生长FeRh层之前, 如果FePt层没有或者未完全转变为硬磁的L1₀相, 可以使FeRh层的反铁磁-铁磁转变温度由100℃提高到200℃; 沿垂直于膜面的方向施加磁场, 双层薄膜的室温磁化曲线呈方形, 矫顽力可达到7.4 kOe; 升温使FeRh层转变为软铁磁性, 反磁化过程的磁化强度在2个特征磁场附近发生跳跃, 显示双层膜中形成了磁性弹簧, 矫顽力可下降一半以上。FeRh反铁磁-铁磁转变温度升高的原因在于有适量的Pt从FePt层析出并扩散进入FeRh层, 用于制作热辅助复合垂直磁存储介质, 有助于提高稳定性。

关键词

FeRh/FePt 双层薄膜
反铁磁-铁磁转变
热处理
矫顽力

将铁磁性(ferromagnetic, FM)物质和反铁磁性(antiferromagnetic, AFM)物质组成的接触体系置于静磁场中, 如果FM物质的居里温度高于AFM物质的奈尔温度, 则温度从奈尔温度以上下降到奈尔温度以下, 靠近AFM磁矩的FM磁矩与未被抵消的剩余AFM磁矩会发生交换耦合, 称为交换偏置(exchange bias)作用, 能够导致磁化曲线移位、磁转矩出现正弦分量以及高场下磁矩转动不可逆等现象^[1,2]。后来发现, 层间直接接触或隔着非磁性中间层, 在由硬磁性物质和软磁性物质构成的层状体系内, 也可以出现这种耦合作用^[3,4]。如果界面两侧的磁矩方向相同, 则称为交换弹性(exchange spring)作用, 在直接接触的硬磁层和软磁层间更普遍地出现, 可用来兼得硬磁

相的高矫顽力和软磁相的高饱和磁化强度, 提高永磁体的磁能积^[5]。两种作用在磁头、磁存储介质、隧道结、自旋阀、高性能膜式微小永磁体等领域都受到重视^[6~19]。交换偏置作用可以稳定铁磁颗粒的磁矩, 提高矫顽力^[20~24]。交换弹性作用则有助于推动硬磁颗粒的磁矩反转, 降低矫顽力^[25,26]。利用铁磁性材料制作磁存储介质, 要实现10 Tb/in²以上的面存储密度, 晶粒尺寸须小于3 nm, 普通磁性材料无法胜任^[27]。因此, 2008年起, 磁存储介质已经全面由面内磁化模式改用垂直磁化模式, 依靠开发单轴磁晶各向异性性能密度高的材料来降低保持热稳定性的极限尺寸(即超顺磁极限), 提高面存储密度。L1₀相FePt合金具有有序的面心四方(face centered tetragonal, fct)

引用格式: 赵湖钧, 朱艳艳, 曾道富, 等. FePt/FeRh 双层薄膜的结构和磁性. 科学通报, 2015, 60: 1180–1190

Zhao H J, Zhu Y Y, Zeng D F, et al. Structures and magnetic properties of FePt/FeRh bilayer films (in Chinese). Chin Sci Bull, 2015, 60: 1180–1190, doi: 10.1360/N972014-01131

结构,其单轴磁晶各向异性性能密度接近 $7 \times 10^7 \text{ erg/cc}$ ($1 \text{ erg/cc} = 10^{-1} \text{ J/m}^3$)^[28-31],受到广泛关注.粒径进入10 nm量级,室温矫顽力可达70 kOe ($1 \text{ Oe} = 10^3/4\pi \text{ A/m}$)^[32].小颗粒具有如此大的开关场,可以很好地解决热稳定性问题,却远远超过了写磁头能够提供的磁场强度(15~18 kOe).信噪比要求颗粒的尺寸尽可能小、热稳定性要求颗粒的开关场尽可能高,而可写性又要求颗粒的开关场不能太高,三者交织在一起,相互矛盾,形成制约磁存储技术进一步发展的“三角困境”.为了提高颗粒的开关场,除了提高磁晶各向异性性能,还可以引入交换偏置作用.而为了降低颗粒的开关场,除了引入交换弹性作用,又提出热辅助(heat assisted)和微波辅助(microwave assisted)两种重要技术^[33].基于交换弹性作用的交换耦合复合介质(exchange coupled composite media)也称为畴壁辅助介质(domain wall assisted media),硬磁性物质和软磁性物质的界面可以是磁性突变的也可以是渐变的^[34-36].磁场比硬磁区的开关场低得多,软磁区内就可形核产生畴壁.随着磁场增大,畴壁被逐渐压向界面.磁场大到使畴壁突破界面进入硬磁区,开关动作即告完成^[33].微波辅助技术利用磁矩绕各向异性易轴旋进的现象,对颗粒施加适当频率的交变磁场,与旋进发生共振,以此来降低开关场^[37-39].热辅助技术利用材料的矫顽力随温度的升高而下降(在温度达到居里温度后矫顽力消失)的性质,在写入的瞬时对磁性颗粒进行加热,从而降低开关场^[34,37,40].然而,单纯依靠这些手段中的某一种,还是不能彻底破解上述的“三角困境”.

有序的B2相FeRh合金具有体心四方(body centered tetragonal, bct)结构,在100 °C附近会发生AFM-FM一级相变^[41-43].将这种材料与L1₀-FePt结合,形成复合体,则可以利用热辅助技术,在写入数据时,用很细的激光束照射改写区域,使被照射处的FeRh发热,转变为软磁性,对FePt产生弹性作用,有利于在低磁场完成改写;而保存数据时,反铁磁性的FeRh对FePt起到偏置作用,FePt的磁矩受到钉扎,磁性更稳定^[44-46].这种想法将交换偏置、交换弹性和热辅助三种技术结合在一起,FeRh层起到双重作用,既可以增强FePt颗粒在室温的稳定性,允许颗粒尺寸更小,又能够依靠升温来降低FePt颗粒的开关场.

但是FeRh的AFM-FM转变温度与室温过于接近,不利于常温环境中的应用.有研究发现,掺入少量的

Pt, Co, Ir, Ni等元素,可以改变FeRh的AFM-FM转变温度^[43].其中,将Fe₅₀(Rh_{1-x}Pt_x)₅₀薄膜中掺入Pt的比例 x 控制在0~15%范围,其AFM-FM转变温度可由100 °C升高到250 °C^[47].然而,一直未见将转变温度提高后,再与FePt形成复合薄膜的报道.这可能与形成双层复合薄膜过程中的层间混合有关,因为使FePt和FeRh形成有序结构都需要经历700 °C以上的高温环节.我们的初步研究结果表明,在Fe₄₀Pt₆₀上生长FeRh,并在450 °C进行长时间的热处理,FeRh层出现有序化迹象而且没有发生层间混合;适当降低FePt层的A1→L1₀转变程度,FePt/FeRh双层薄膜的AFM-FM转变温度也可以达到200 °C,经过分析认为与Pt在热处理过程中的扩散有关^[48].不过,无论在室温测量还是在300 °C测量,矫顽力都很低,应该是FePt层的成分偏离1:1过远所致.本文将FePt层的原子比改为接近1:1,进一步分析FePt层A1→L1₀转变程度对FePt/FeRh双层薄膜的结构、AFM-FM转变性质及矫顽力的影响,探索将FePt/FeRh复合薄膜应用于热辅助磁存储介质的可行性.

1 实验

为了形成(001)织构,用MgO(001)单晶基片作为基底.A1-FePt具有面心立方(face centered cubic, fcc)结构,Fe和Pt两种原子随机分布在点阵上,晶格常数为 $a_{\text{FePt}} = 0.3841 \text{ nm}$.MgO也具有fcc结构,晶格常数为 $a_{\text{MgO}} = 0.4203 \text{ nm}$,与 a_{FePt} 比较接近,可作为种晶来取向生长FePt(001)晶体.FeRh合金的无序相具有体心立方(body centered cubic, bcc)结构,晶格常数为 $a_{\text{FeRh}} = 0.2735 \text{ nm}$,格子的面对角线为 $\sqrt{2} a_{\text{FeRh}} = 0.3868 \text{ nm}$,单胞基矢相对于FePt的单胞基矢旋转45°角,在FePt(001)晶体上也可以实现(001)取向生长.

成膜采用高真空磁控溅射镀膜方法.背景真空度优于 $2 \times 10^{-5} \text{ Pa}$,工作时Ar气气压为2.8 Pa.FePt层的成膜温度为400 °C.低于此温度,薄膜的(001)取向不良,说明晶格畸变和热运动会同时影响成膜质量.从能量角度考虑,这两个因素在后续的有序化进程中也应该起作用.Fe, Pt和Rh靶材的纯度均不低于99.9%.先在MgO(001)基片上生长25 nm厚的FePt,成膜后取出样品放入真空热处理炉,进行6 h的热处理,温度 T_a 控制在450~700 °C范围,用来改变A1→L1₀转变程度.将热处理前后的样品同时放回磁控溅射室,在450 °C生长50 nm厚的FeRh.最后,对得到的

FePt/FeRh双层薄膜在450℃继续保温24 h, 促使FeRh层转变为有序的B2相. 用扫描电子显微镜(scanning electron microscope, SEM)上装配的能量色散谱仪(energy dispersive spectrometer, EDS)测得薄膜的原子比成分分别为Fe₅₃Pt₄₇和Fe₄₈Rh₅₂. 用原子力显微镜(atomic force microscope, AFM)观察薄膜的表面形貌. 用X射线衍射谱仪(X-ray diffraction, XRD)分析样品的晶体结构, Cu-K α 射线源的波长为0.15406 nm. 用振动样品磁强计(vibrating sample magnetometer, VSM)测量热磁性质(M - T 曲线, 测量时沿垂直于膜面的方向施加10 kOe的恒定磁场)并在不同温度测量磁化曲线(M - H 曲线, 最大磁场为 ± 20 kOe). 计算磁化强度 M 时, 计入了FePt层和FeRh层的总体积, 单位换算关系为1 emu/cc=10³ A/m.

2 结果与讨论

2.1 FePt单层的性质

图1给出未生长FeRh层之前, FePt薄膜在不同温度进行6 h热处理前后的 θ - 2θ 模式XRD谱. 图中只标出了FePt衍射峰的指数, 其他峰均来自于MgO(001)基片. 在400℃沉积的FePt薄膜(未经热处理), 没有出现明显的(001)峰和(003)峰, 说明薄膜处于无序的A1相. 只有基础峰出现在 $2\theta=48^\circ$ 附近, 指数为(200), 角度相对于标准(200)峰的位置明显右移, 且半高宽较大, 是由于沿面内受到MgO种晶的拉伸作用, 晶格发生了畸变, 晶面间距出现分布, 且平均值减小所

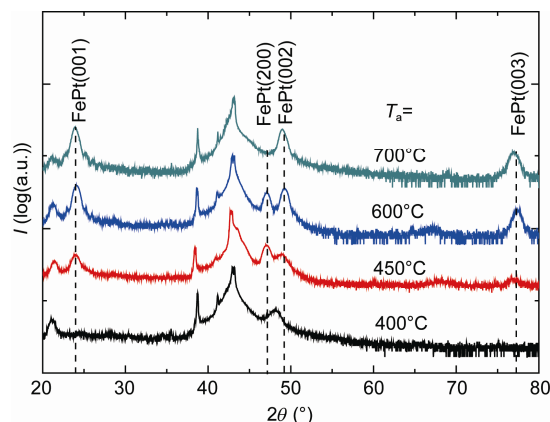


图1 (网络版彩图) FePt薄膜在不同温度进行热处理的XRD图谱. 图中只标出了FePt薄膜的织构峰, 其他峰来自于MgO基片

Figure 1 (Color online) XRD spectra for annealed FePt films. The indexed peaks are from the (001) textured FePt

致. 在450℃进行热处理后, 开始出现(001)峰和(003)峰, 但强度较弱. 同时基础峰发生分裂, 左侧为(200)峰, 来自于A1相, 右侧为(002)峰, 来自于L₁₀相. (001)峰和(003)峰称为超晶格峰, 只有Fe原子和Pt原子实现逐层有序排列, 破坏了fcc晶格的消光规律, 才会出现. 这表明已经有部分A1相转变为L₁₀相. 将T_a升高到600℃, 从(200)峰分离出来的(002)峰进一步增强, 同时(001)峰和(003)峰也更明显, 说明有更多的A1相转变为L₁₀相. 但(200)峰和(002)峰仍然共存, 薄膜依然是A1相和L₁₀相的混合物. T_a=700℃, 标识A1相的(200)峰消失, 只剩下来自于L₁₀相的(001)、(002)和(003)峰, 无其他杂峰出现, 说明薄膜已经基本上完成了A1→L₁₀转变. 这样, 通过控制热处理温度, 就可以获得A1→L₁₀转变程度不同的FePt薄膜.

图2为FePt薄膜在不同温度经过热处理前后的AFM图像. 可以看到, FePt在经过热处理之前(图2(a)), 薄膜呈颗粒状. 表层颗粒细碎, 表面最大高低差只有2 nm(图中未标出), 表明薄膜很平整且覆盖率为100%. T_a=450℃(图2(b)), 表层颗粒出现团聚, 形成大小不一的圆形岛, 表面最大高低差增大到5 nm, 说明在晶格应力和热振动的共同作用下, 薄膜内的原子开始发生跳跃, 在向自由能更低的有序排列过渡中, 邻近颗粒相互靠近并逐渐合并. 在600℃进行热处理后(图2(c)), 薄膜表面出现了一些大的长方形规则凹坑, 凹坑边缘多向上隆起, 表面最大高低差增大到19 nm, 明显是邻近颗粒合并开始导致表层收缩所致. 用SEM观察并收集EDS谱, 表明在坑内和坑外区域都同时存在Fe和Pt两种元素. 这说明凹坑处并没有露出基片, 薄膜的覆盖率仍然接近100%. 坑内和坑外都是片状颗粒, 呈条形, 尺寸比图2(b)的要大得多. T_a=700℃(图2(d)), FePt薄膜因晶体沿垂直于膜面的方向长高而分散成很大的岛状颗粒, 覆盖率只剩下不足1/4, 表面最大高低差达到150 nm. EDS谱表明分散的岛状颗粒之间已经不存在Fe, 但仍存在Pt. 这说明FePt在有序化过程中会伴随Pt原子的析出.

2.2 FePt/FeRh双层的结构和热磁曲线

在相转变程度不同的FePt层上生长50 nm厚的FeRh, 对得到的双层膜在450℃进行24 h的热处理, 测量双层膜的XRD谱和热磁曲线(M - T 曲线), 以此分析结构变化和AFM-FM转变性质. 用AFM对双层膜的表面进行观察(图片未给出), 得到的图像与图2相似,

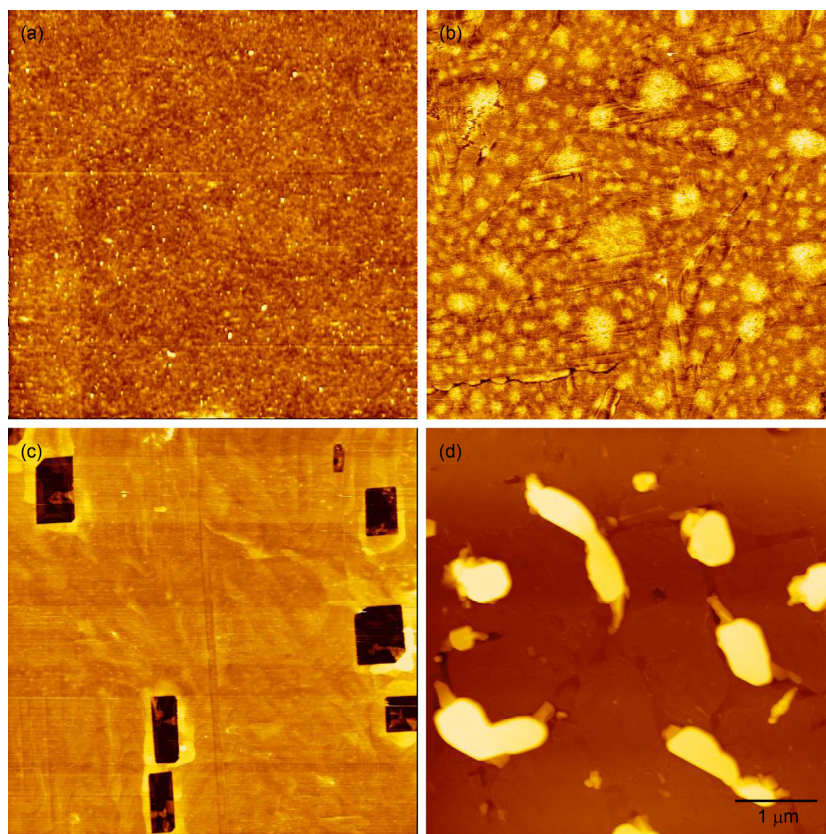


图2 (网络版彩图) FePt 薄膜在不同温度进行热处理的 AFM 图像. (a)~(d) 分别为 $T_a=400$ (未进行处理), 450, 600, 700 °C

Figure 2 (Color online) AFM images for annealed FePt films. (a)~(d) correspond to $T_a=400$ (as-deposited), 450, 600, and 700 °C, respectively

说明 FeRh 层对 FePt 层的表面形貌影响不大, 且 FeRh 层自身的覆盖率接近 100%. 未对 FePt 层进行热处理就生长 FeRh 层, 得到的 XRD 谱和 M - T 曲线见图 3. 为了方便, 把样品标记为 FePt(400 °C)/FeRh, 并在 XRD 谱(图 3(a))中重新给出了 FeRh 层成膜之前的衍射结果. 在 400 °C 成膜, 不经过热处理, 得到的 FePt 薄膜由 A1 单相构成, XRD 谱中不出现 (001) 和 (003) 超晶格峰. 但是 FePt(400 °C)/FeRh 样品实际上经历过 450 °C 的温度环境, 因此 FePt 层的衍射峰实际上与图 1 中在 450 °C 进行热处理后的结果相符. 图 3(a) 中的 FePt(400 °C)/FeRh 样品经历过比图 1 更长时间的热处理, 但是 FePt(001) 和 (003) 峰的强度并没有明显差异. 这说明对于 FePt 层来说, 在 450 °C 单纯延长保温时间不会继续提高其 A1 $\rightarrow$ L1₀ 转变程度. 这种情况下, 若 FePt 的有序化进程由晶格畸变应力和热运动共同决定, 则应该是部分 FePt 转变为 L1₀ 相后, 薄膜内应力有所缓解, 温度又不高, 有序化进程基本中断所致. 在 2θ 为 30° 和 62° 附近出现了来自于 FeRh 的 (001) 超晶

格峰和 (002) 基础峰, 但强度较弱, 可能是因为受 FePt 层有序度低的影响, FeRh 层内的畸变应力不够均匀. 但是出现 FeRh(001) 峰, 证明 FeRh 层已经有序化. FePt 和 FeRh 能够各自形成衍射峰, 说明层间没有发生混合, 两者间有明确的分界面. M - T 曲线(图 3(b))显示, 在温度升高到 180 °C 之前, M 主要由 FePt 层贡献, 基本保持不变. 之后 M 开始增加, 说明 FeRh 层开始发生 AFM $\rightarrow$ FM 转变. M 在 230 °C 达到最大, 然后转而下降, 是因为在 FeRh 层完成磁性转变后, 热扰动对软磁性 FeRh 中磁矩平行排列的破坏作用开始显现. 取升温过程中 M 的变化达到最大值一半时对应的温度为平均磁性转变温度 T_{tr} , 则 $T_{tr}=205$ °C. T_{tr} 由 100 °C 提高到 200 °C 以上, 应该是有 Pt 从 FePt 层扩散进入 FeRh 层, 对 FeRh 起到了掺杂作用所致. 降温曲线在 FeRh 层恢复反铁磁性的过渡阶段与升温曲线不重合, 出现比 FeRh 单层膜更明显的热滞, 是由于 FePt 和 FeRh 之间的硬磁/软磁弹性作用会阻碍 FeRh 内靠近界面处的磁矩出现反铁磁排列. 就是说, 从界面看, FeRh 层

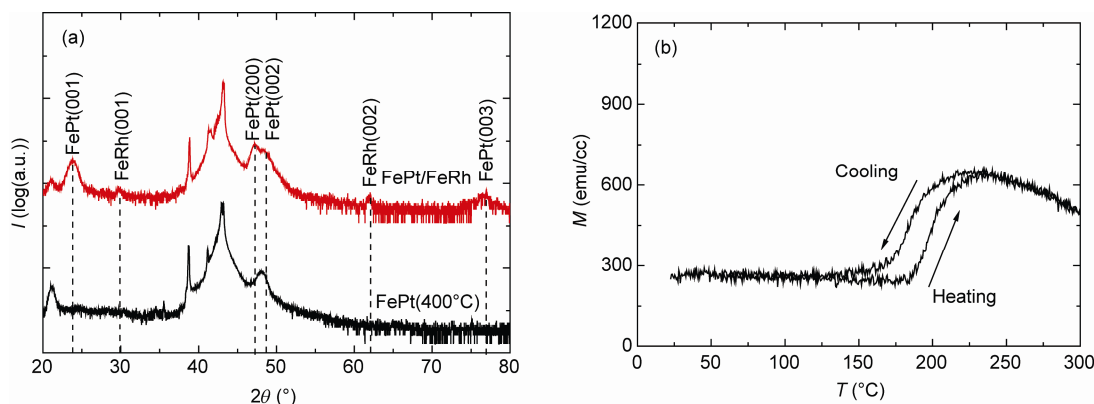


图3 (网络版彩图) FePt(400°C)/FeRh 双层薄膜的 XRD 谱(a)及 $M-T$ 曲线(b)
Figure 3 (Color online) XRD spectra (a) and $M-T$ curves (b) of FePt(400°C)/FeRh

在升温过程中是由近及远转变为铁磁性，而在降温过程中是由远及近转变为反铁磁性，转变的开始点分别在转变过程的温度底端和高端，两种情况开始发生的地点和温度都不同，因此附加上额外的热滞。

将FePt层在600°C进行热处理后，再生长FeRh层，得到FePt(600°C)/FeRh样品，其XRD谱和 $M-T$ 曲线见图4。图4(a)显示，在FePt层上生长FeRh层后，FePt的(200)基础峰消失，说明与图3情况相比，FeRh层的成膜和有序化过程对FePt层的结构有更明显的影响。根据图3(a)，我们已经知道，在450°C，即使保温时间很长，也只有部分FePt转变为有序相。而图4(a)中，剩余的A1相FePt却在FeRh层成膜后全部转变为 L_{10} 相。讨论图2(d)时已经提到，FePt层完成有序化后，在分散的岛状FePt颗粒之间还存在Pt，但没有Fe。理论分析也提示FePt的晶格对称发生改变会伴随Pt元素的析出^[49-51]。所以对于图4中FePt的有序化进程，除

了畸变应力和热运动，还应考虑Pt含量的变化。FePt层的成分为 $\text{Fe}_{53}\text{Pt}_{47}$ ，如果温度较低，只有不太多的FePt转变为 L_{10} 相，则析出的Pt会进入A1相，使得成分比例向1:1靠近，有序化温度升高，有序化进程被终止。这是图3的情形。但是在600°C进行热处理后，有序化推进的程度更大，剩余的A1相进入富Pt状态，有序化温度会转而降低，只是因为剩余的A1相减少，晶格畸变变弱，造成应力不足，有序化进程才被中止。FeRh层成膜后，会对FePt施加上额外的畸变应力，又满足了有序化继续进行的条件。于是图4(a)中FePt(600°C)/FeRh样品的FePt(200)峰消失。图4(a)中FeRh的(001)峰和(002)峰要比图3(a)的情况尖锐些，说明更多的FePt转变为 L_{10} 相有利于消减FeRh层晶格畸变的不均匀。再看 $M-T$ 曲线(图4(b))， M 开始增加的温度为170°C，在225°C达到最大值， $T_c=198^\circ\text{C}$ ，与图3(b)相比没有明显不同。热滞的程度也没有明显差

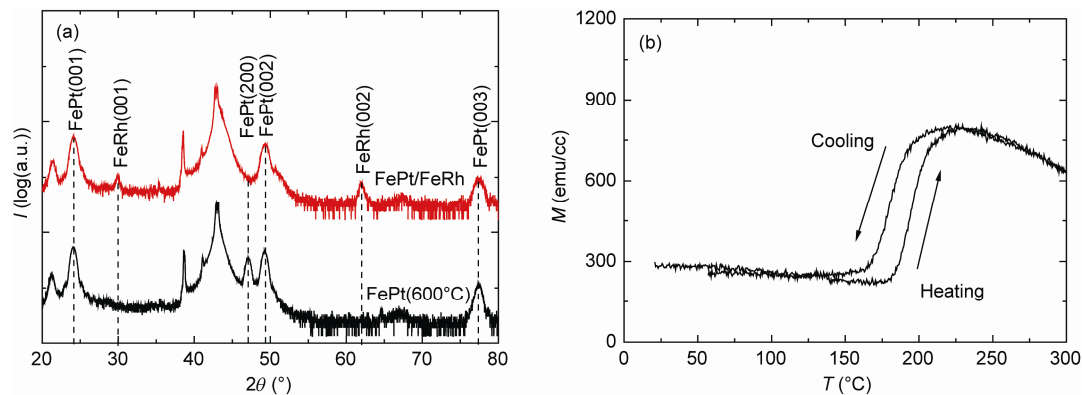


图4 (网络版彩图) FePt(600°C)/FeRh 双层薄膜的 XRD 谱(a)及 $M-T$ 曲线(b)
Figure 4 (Color online) XRD spectra (a) and $M-T$ curves (b) of FePt(600°C)/FeRh

异,但是最大磁化强度增大了.因为在低温段(AFM-FM磁性转变发生之前), M 与图3(b)相比没有明显变化,所以最大磁化强度的变化应该全部来自于FeRh层.其可能的原因有两个:FeRh层内晶格畸变的大小及均匀程度发生了变化,使得Fe原子磁矩和Rh原子磁矩之间的交换作用强度不一样;Pt扩散进入FeRh层内的浓度变高,使得FeRh层内的总磁矩增加.如果是由后者引起,那么Pt带着磁矩发生层间转移,应该同时会造成FePt层的总磁矩减少.然而FePt层贡献的磁化强度并没有明显变化.因此,我们倾向于前者引起.

将FePt层的热处理温度升高到700℃,得到FePt(700℃)/FeRh样品,其XRD谱和 M - T 曲线见图5. FePt层在700℃热处理后已经全部转变为 $L1_0$ 相,其(200)峰已经消失.但是,FePt(700℃)/FeRh样品的XRD谱却在FePt(002)峰前面多出了一个衍射峰(图5(a)).经过分析,我们认为这是FeRh的 γ 相(FeRh₃的合金相)带来的,指数为(200). FeRh层的成分为Fe₄₈Rh₅₂,处于富Rh的状态.随着Pt逐渐进入FeRh层并取代Rh在晶格中的位置,富Rh的程度越来越严重,就有可能分离出 γ 相. γ 相虽然呈顺磁性,但Fe和Rh都有固有原子磁矩,测量磁性时,可能会对样品的磁化强度产生影响. M - T 曲线(图5(b))中, M 开始增加的温度为130℃,达到最大值的温度为210℃,跨度明显变大,且在此温度后又形成了明显的平台阶段,表明磁性转变还在继续. $T_c=170^\circ\text{C}$,与图4(b)相比,突然下降了28℃.根据图2(d),FePt层的覆盖率只剩下不到1/4,而岛状颗粒之间还存在Pt. FePt在完成有序化后发生了收缩,析出的Pt留在了露出的基片表面上.这些Pt全部进入覆盖在其上的FeRh层内,使

FeRh的AFM-FM转变温度升高,也造成 γ 相的出现.由于FePt在生长FeRh之前就已经完成有序化,Pt不能像图3和4那样较容易地从处于亚稳态的 $A1$ -FePt比较均匀地向FeRh内扩散,所以覆盖在 $L1_0$ -FePt颗粒上的FeRh,内部Pt含量低,AFM-FM转变温度也就低.这应该就是图5(b)中磁性转变过程温度跨度大的产生原因.可能是由于在FePt颗粒边缘附近,FeRh层内的Pt含量会因横向扩散形成梯度,所以磁性转变过程中并没有因存在成分不同的两部分FeRh,而使 M 突然变化形成台阶.图5(b)的最大磁化强度和图4(b)的差不多,但降温曲线在低温度段与升温曲线不重合,降温曲线的磁化强度明显高于升温曲线的磁化强度.这是由于FePt层已经基本完成了有序化,磁晶各向异性性能密度高,且收缩成相互分离的大片岛状颗粒.测量 M - T 曲线的外加磁场为10 kOe,升温之前一些FePt颗粒并没有完全被磁化到饱和,在颗粒的细颈部还存在磁化方向与外场方向相反的磁畴.温度升高后,受FeRh层转变为软磁性的影响,这些反向磁畴也跟着发生了反转.温度降低后,这部分FePt的磁矩仍然沿着外场方向,所以磁化强度比升温之前要高.值得注意的是,降温后的磁化强度比图3(b)和4(b)低温段的磁化强度大(带场降温后,未能被磁化到饱和的FePt颗粒少,磁化强度更接近饱和磁化强度),应该是 γ 相FeRh的磁矩沿磁场方向出现择优排列,叠加在FePt的磁矩上造成的.

2.3 FePt/FeRh双层的矫顽力

在FeRh层成膜前,FePt层保持高覆盖率且存在 $A1$ 相,可以将 T_c 提高到200℃左右(图3和4),距离室

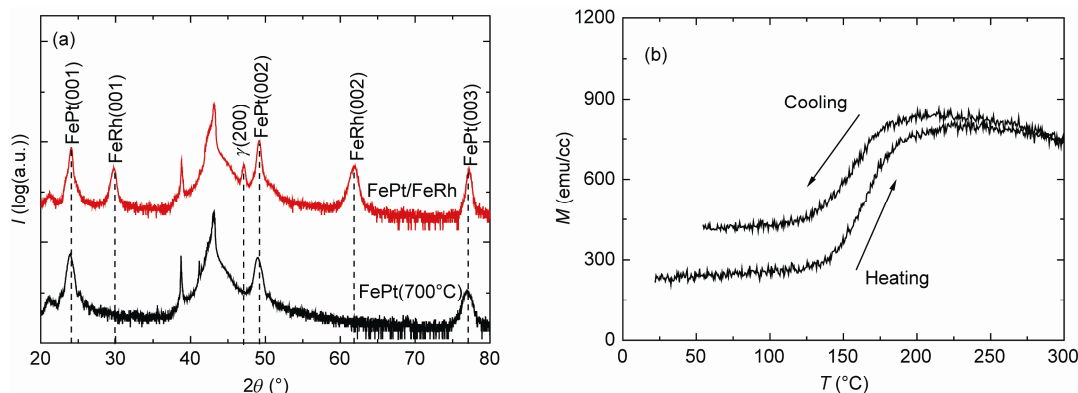


图5 (网络版彩图)FePt(700℃)/FeRh 双层薄膜的 XRD 谱(a)及 M - T 曲线(b)

Figure 5 (Color online) XRD spectra (a) and M - T curves (b) of FePt(700℃)/FeRh

温与FePt的居里温度(477℃)都较远,并且磁性转变的温度区间较窄,有利于提高FePt/FeRh热辅助复合磁存储介质的可靠性.为了进一步讨论层间交换作用的效果,在室温、AFM-FM转变刚开始的温度、AFM-FM转变基本结束的温度以及300℃,分别测量磁化曲线,分析矫顽力变化.测量时,外加磁场范围为 ± 20 kOe,方向垂直于膜面.图6是FePt(400℃)/FeRh双层薄膜在不同温度测得的 M - H 曲线.在室温(图6(a)), M 主要由FePt层贡献,但是计算时计入了双层膜的总体积,所以饱和磁化强度只有不足400 emu/cc.覆盖FeRh层后,FePt层由A1单相变为A1相和 L_{10} 相共存(见图3(a)).A1相呈软磁性, L_{10} 相呈硬磁性,薄膜的平均磁晶各向异性性能密度应该还不小.但是室温磁化曲线却呈现出良好的方形,矫顽力达到7.4 kOe.这说明FePt层确实由较为均匀的小颗粒构成,而非真正连续,并且小颗粒内A1相和 L_{10} 相之间存在软磁/硬磁交换弹性作用.颗粒尺寸够小,交换弹性作用使得磁性弹簧的软磁性磁矩和硬磁性磁矩一起反转;颗粒比较均匀,开关场的分布也不大.温度升高到175℃(图6(b)),FeRh层发生磁性相变的影响还没有显现,矫顽力(5.6 kOe)和饱和磁化强度都有所下

降,是热扰动影响FePt层内磁矩平行排列的结果.温度升高到240℃(图6(c)),FeRh层的磁性转变基本完成, M 由 L_{10} -FePt, A1-FePt和FeRh共同贡献,样品的反磁化过程被图中所示的3个特征磁场 H_1 , H_2 和 H_3 分隔成4个阶段,矫顽力为3 kOe($\approx H_3$). H_1 为FeRh的饱和场, H_2 为A1-FePt的开关场, H_3 为 L_{10} -FePt的开关场(即磁性弹簧的不可逆反转场). H_1 右边为饱和阶段,FePt层和FeRh层都进入饱和磁化状态, M 基本不变. M 在磁场下降到 H_1 时开始减少,斜率基本维持不变,直到 H_2 . H_1 到 H_2 之间是FeRh层的磁矩在退磁场的作下逐步由外磁场方向转向退磁场方向的过程. M 在 H_2 附近出现较为明显的下跳,是A1-FePt的磁矩在远离 L_{10} -FePt的地方开始反转造成的.区别于图6(a)和(b),因温度升高,并且失去反铁磁性FeRh的钉扎作用, L_{10} /A1交换弹性体中软磁性磁矩和硬磁性磁矩能够一同反转的软磁区临界厚度降低,使得远离 L_{10} -FePt的A1-FePt磁矩,在FeRh层软磁性反向磁矩交换力和外磁场的共同作用下,得以先行反转.反向磁畴进入A1-FePt后,畴壁就被挤压到A1/ L_{10} 界面附近(如果 L_{10} -FePt与FeRh直接邻接,则畴壁压向FeRh/ L_{10} -FePt界面).在 H_2 到 H_3 之间, L_{10} -FePt的磁矩仍然没有

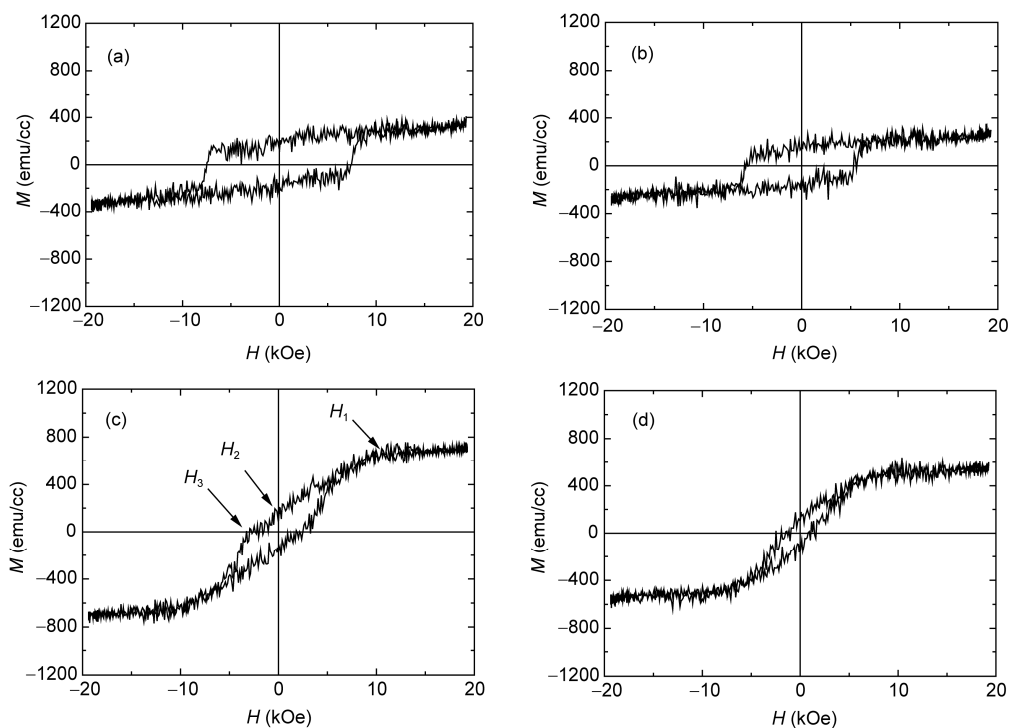


图6 FePt(400℃)/FeRh 双层薄膜在不同温度测量得到的 M - H 曲线. (a) 室温; (b) 175℃; (c) 240℃; (d) 300℃

Figure 6 Out-of-plane hysteresis loops of FePt(400℃)/FeRh measured at (a) room temperature, (b) 175℃, (c) 240℃ and (d) 300℃

反转, 形成台阶, 但 M 还是在比较缓慢地下降, 是随着反向磁场的增大, 畴壁逐渐变薄并逼近硬磁/软磁界面的过程. 畴壁的一侧被 $L1_0$ -FePt硬磁层阻挡, 而另一侧受到反向磁畴的挤压, 畴壁厚度与外磁场 H 的关系^[52]可以表示为

$$L_w = \sqrt{\frac{2A}{M_s H}}, \quad (1)$$

其中 A 和 M_s 分别是 $A1$ -FePt或FeRh的交换作用常数和饱和磁化强度. 反向磁场达到 H_3 , 畴壁突破硬磁/软磁界面进入 $L1_0$ -FePt, M 又开始更明显地变化. 所以, H_3 以后是硬磁相开始反转并趋向饱和的过程. 温度为 300°C (图6(d)), M 在 H_2 和 H_3 处的跳跃已经不明显, 但反磁化机理相同, 矫顽力约为 1.2 kOe . 特征磁场 H_2 和 H_3 的存在, 有利地证明了在 $L1_0$ -FePt/ $A1$ -FePt/FeRh和 $L1_0$ -FePt/FeRh混合体系中存在界面交换作用.

图7是FePt(600°C)/FeRh双层薄膜在不同温度测得的 M - H 曲线. 室温磁化曲线(图7(a))仍然呈现良好的方形, 但矫顽力降为 3.5 kOe . 在覆盖FeRh层之前, FePt层中 $L1_0$ 相和 $A1$ 相共存. 在FeRh层成膜并对其进行热处理的过程中, 残留的 $A1$ -FePt因其中的Pt比Fe多, 有序化温度低, 且有FeRh层额外施加的辅助畸

变应力, 也逐渐转变为磁晶各向异性性能密度较低的 $L1_0$ 相(图4(a)). 转变过程中析出部分Pt并扩散进入FeRh层. 虽然FePt层内 $A1$ 相已基本消失, 但是矫顽力却比图6(a)的低, 主要是FePt颗粒的尺寸大造成的(图2(c)). 对没有生长FeRh层的FePt单层膜分别在 450°C 和 600°C 进行热处理, 沿平行和垂直于膜面的方向施加磁场, 分别测量磁化曲线, 结果证实后者的有效垂直磁各向异性大. 热处理温度高而矫顽力下降的类似现象可参考文献[53]. 温度升高到 170°C (图7(b)), 薄膜的矫顽力降到 2.8 kOe . 温度再升高, FeRh与FePt之间的作用逐渐由交换偏置转变为交换弹性. 温度升高到 235°C (图7(c)), 磁化曲线在特征磁场 H_2 和 H_3 处的跳跃更明显, 矫顽力为 1.6 kOe . 实际上, 比矫顽力更有意义的是 H_3 ($\approx 2.3\text{ kOe}$), 代表样品真正发生磁化反转的磁场. 温度升高到 300°C (图7(d)), 磁化曲线形状基本没变, 只是饱和磁化强度和 H_3 (1.5 kOe)有所下降. 图7(c)和图7(d)里的 H_2 应该为磁晶各向异性性能密度低的 $L1_0$ -FePt所贡献.

FePt(700°C)/FeRh双层薄膜在室温和 300°C 测得的 M - H 曲线见图8. 因FePt层已经分离成大而厚的岛状颗粒, 覆盖率很低(见图2(d)), 位于FePt上的FeRh和

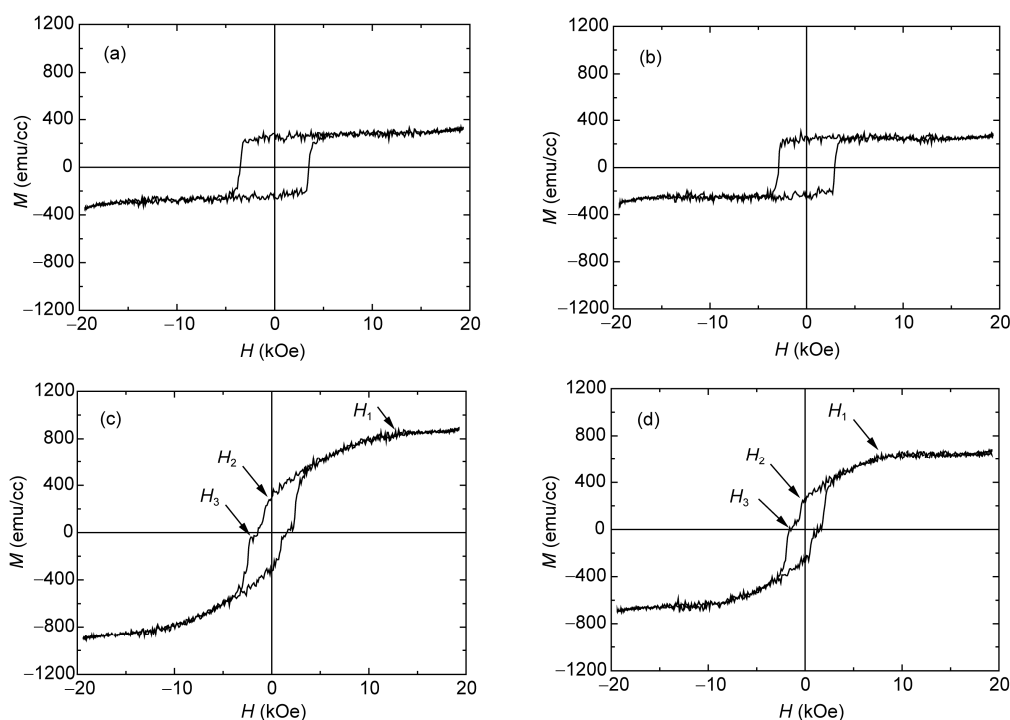


图7 FePt(600°C)/FeRh 双层薄膜在不同温度测量得到的 M - H 曲线. (a) 室温; (b) 170°C ; (c) 235°C ; (d) 300°C

Figure 7 Hysteresis loops of FePt(600°C)/FeRh measured at (a) room temperature, (b) 170°C , (c) 235°C and (d) 300°C

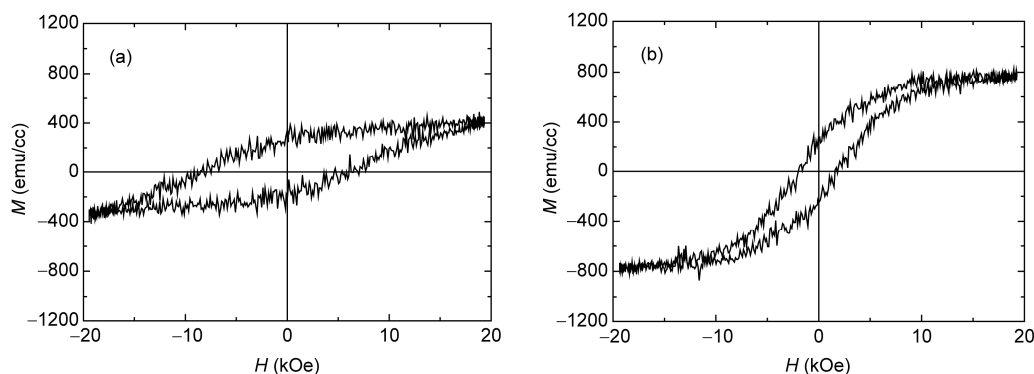


图8 FePt(700°C)/FeRh 双层薄膜的在不同温度测得的 M - H 曲线. (a) 室温; (b) 300°C

Figure 8 Hysteresis loops of FePt(700°C)/FeRh measured at (a) room temperature and (b) 300°C

位于基片上的FeRh性质不同, 而且有 γ 相FeRh的影响, 所以室温磁化曲线(图8(a))已看不到明显的方形. 在300°C测量(图8(b)), 最大磁化强度因FeRh转变为铁磁性而增大, 矫顽力减小. 由于FePt层内颗粒的分散已经很严重, 现阶段还无法对FePt层在FeRh层成膜前就已经完全转变为 $L1_0$ 相的情况做出更全面的评价.

FePt(400°C)/FeRh和FePt(600°C)/FeRh分别代表了($L1_0$ -FePt+A1-FePt)/FeRh和 $L1_0$ -FePt/FeRh两种典型的复合结构, 室温磁化曲线都呈方形. 升温使FeRh转变为铁磁性后, 矫顽力明显下降. 利用Pt的析出和扩散现象, 不经过掺杂步骤, 两种结构都将FeRh的AFM-FM转变温度提高到200°C. 这对提高FePt/FeRh热辅助磁记录介质的可靠性有利.

3 结论

在加热到400°C的MgO(001)基片上, 用磁控溅射

法获得A1相FePt(25 nm)薄膜, 具有(001)取向. 热处理温度不超过600°C, FePt薄膜不会全部转变为 $L1_0$ 相. 将没有完全转变为 $L1_0$ 相的FePt薄膜加热到450°C, 再生长50 nm厚的FeRh层, 并在相同温度保温24 h, 得到双层复合磁性薄膜, FeRh也具有(001)取向并转变为有序的 $B2$ 相, 可以在200°C由反铁磁性转变为铁磁性, 实现钉扎作用-弹性作用的相互转换. 用于制作热辅助复合磁存储介质, 能够有效降低写入磁场, 并提高数据保存时的稳定性. 在FeRh层成膜和热处理的过程中, FePt层的有序度会受到影响, 但磁化曲线都为方形. FeRh层受热转变为铁磁性后, 复合薄膜的反磁化过程中出现2个与磁性弹簧性质相关的特征磁场, 可以使FePt层的反转磁场下降一半以上. 室温矫顽力主要取决于FePt颗粒的尺寸, 而不是FePt层是否完全有序化. 即使FePt层中仍然存在软磁的A1相, 矫顽力也可以达到7.4 kOe.

参考文献

- Meiklejohn W H, Bean C P. New magnetic anisotropy. *Phys Rev*, 1956, 102: 1413–1414
- Giri S, Patra M, Majumdar S. Exchange bias effect in alloys and compounds. *J Phys: Condens Matter*, 2011, 23: 073201
- Sort J, Popa A, Rodmacq B, et al. Exchange-bias properties in permalloy deposited onto a Pt/Co multilayer. *Phys Rev B*, 2004, 70: 174431
- Binek C, Polisetty S, He X, et al. Exchange bias training effect in coupled all ferromagnetic bilayer structures. *Phys Rev Lett*, 2006, 96: 067201
- Kneller E F, Hawig R. The exchange-spring magnet: A new material principle for permanent magnets. *IEEE Trans Magn*, 1991, 27: 3588–3560
- Nogués J, Schuller I K. Exchange bias. *J Magn Magn Mater*, 1999, 192: 203–232
- Matsuzono A, Terada S, Ono H, et al. Study on requirements for shielded current perpendicular to the plane spin valve heads based on dynamic read tests. *J Appl Phys*, 2002, 91: 7267–7269
- Zhang J, Huai Y, Lederman M. Analysis of magnetic noise in lead overlaid giant magnetoresistive read heads. *J Appl Phys*, 2002, 91: 7285–7287

- 9 Jang E, Wang G, Cho K Y, et al. Heating and cooling effect of giant magnetoresistive heads during writing operations. *J Appl Phys*, 2002, 91: 8769–8771
- 10 Araki S, Sato K, Kagami T, et al. Fabrication and electrical properties of lapped type of TMR heads for 50 Gb/in² and beyond. *IEEE Trans Magn*, 2002, 38: 72–77
- 11 Tanaka A, Shimizu Y, Seyama Y, et al. Spin-valve heads in the current-perpendicular-to-plane mode for ultrahigh-density recording. *IEEE Trans Magn*, 2002, 38: 84–88
- 12 Zhang Z Y, Feng Y C, Clinton T, et al. Magnetic recording demonstration over 100 Gb/in². *IEEE Trans Magn*, 2002, 38: 1861–1866
- 13 Hong J, Kane J, Hashimoto J, et al. Spin-valve head with specularly reflective oxide layers for over 100 Gb/in². *IEEE Trans Magn*, 2002, 38: 15–19
- 14 Stoev K, Liu F, Chen Y, et al. Demonstration and characterization of 130 Gb/in² magnetic recording systems. *J Appl Phys*, 2003, 93: 6552–6554
- 15 Liu Z Y. Recent advances in exchange bias of layered magnetic FM/AFM systems. *Sci China Phys Mech Astron*, 2013, 56: 61–69
- 16 Allibe J, Fusil S, Bouzehouane K, et al. Room temperature electrical manipulation of giant magnetoresistance in spin valves exchange biased with BiFeO₃. *Nano Lett*, 2012, 12: 1141–1145
- 17 Reddy V R, Crisan O, Gupta A, et al. Tuning exchange spring effects in FePt/Fe(Co) magnetic bilayers. *Thin Solid Films*, 2012, 520: 2184–2189
- 18 Gasi T, Nayak A K, Winterlik J, et al. Exchange-spring like magnetic behavior of the tetragonal Heusler compound Mn₂FeGa as a candidate for spin-transfer torque. *Appl Phys Lett*, 2013, 102: 202402
- 19 Dean J, Bashir M A, Goncharov A, et al. Thermally induced adjacent track erasure in exchange spring media. *Appl Phys Lett*, 2008, 92: 142505
- 20 Weller D, Moser A. Thermal effect limits in ultrahigh-density magnetic recording. *IEEE Trans Magn*, 1999, 35: 4423–4439
- 21 Thompson D A, Best J S. The future of magnetic data storage technology. *IBM J Res Dev*, 2000, 44: 311–322
- 22 Skumryev V, Stoyanov S, Zhang Y, et al. Beating the superparamagnetic limit with exchange bias. *Nature*, 2003, 423: 850–853
- 23 Nogués J, Skumryev V, Sort J, et al. Shell-driven magnetic stability in core-shell nanoparticles. *Phys Rev Lett*, 2006, 97: 157203
- 24 Eisenmenger J, Schuller I K. Overcoming thermal fluctuations. *Nat Mater*, 2003, 2: 437–438
- 25 Liu J P, Luo C P, Liu Y, et al. High energy products in rapidly annealed nanoscale Fe/Pt multilayers. *Appl Phys Lett*, 1998, 72: 483–485
- 26 Jiang J S, Pearson J E, Liu Z Y, et al. Improving exchange-spring nanocomposite permanent magnets. *Appl Phys Lett*, 2004, 85: 5293–5295
- 27 Suess D, Schrefl T, Dittrich R, et al. Exchange spring recording media for areal densities up to 10 Tbit/in². *J Magn Magn Mater*, 2005, 290–291: 551–554
- 28 Hadjipanayis G, Gaunt P. An electron microscope study of the structure and morphology of a magnetically hard PtCo alloy. *J Appl Phys*, 1979, 50: 2358–2360
- 29 Weller D, Moser A, Folks L, et al. High K_u materials approach to 100 Gbits/in². *IEEE Trans Magn*, 2000, 36: 10–15
- 30 Sun S H, Murray C B, Weller D, et al. Monodisperse FePt nanoparticles and ferromagnetic FePt nanocrystal superlattices. *Science*, 2000, 287: 1989–1992
- 31 Barcaro G, Sementa L, Negreiros F R, et al. Interface effects on the magnetism of CoPt-supported nanostructures. *Nano Lett*, 2011, 11: 5542–5547
- 32 Shima T, Takanashi K, Takahashi Y K, et al. Nucleation-type magnetization behavior in FePt(001) particulate films. *J Appl Phys*, 2006, 99: 033516
- 33 Goll D, Bublat T. Large-area hard magnetic L_{10} -FePt and composite L_{10} -FePt based nanopatterns. *Phys Status Solidi A*, 2013, 210: 1261–1271
- 34 Richter H J. The transition from longitudinal to perpendicular recording. *J Phys D*, 2007, 40: R149–R177
- 35 Giannopoulos G, Spiliotis Th, Li W F, et al. Structural and magnetic properties of L_{10} /Al FePt nanocomposites. *J Magn Magn Mater*, 2013, 325: 75–81
- 36 Bublat T, Goll D. Influence of dot size and annealing on the magnetic properties of large-area L_{10} -FePt nanopatterns. *J Appl Phys*, 2011, 110: 073908
- 37 Heinonen O, Gao K Z. Extensions of perpendicular recording. *J Magn Magn Mater*, 2008, 320: 2885–2888
- 38 Zhu J G, Zhu X, Tang Y. Microwave assisted magnetic recording. *IEEE Trans Magn*, 2008, 44: 125–131
- 39 Sato Y, Sugiura K, Igarashi M, et al. Thin spin-torque oscillator with high AC-field for high density microwave-assisted magnetic recording. *IEEE Trans Magn*, 2013, 49: 3632–3635
- 40 Alex M, Tselikov A, McDaniel T, et al. Characteristics of thermally assisted magnetic recording. *IEEE Trans Magn*, 2001, 37: 1244–1249
- 41 Fallot M. The alloys of iron with metals of the platinum family (in French). *Ann Phys*, 1938, 10: 291–332

- 42 Fallot M, Hocart R. On the appearance of ferromagnetism upon elevation of the temperature of iron and rhodium (in French). *Rev Sci*, 1939, 8: 498–499
- 43 Kouvel J S. Unusual nature of the abrupt magnetic transition in FeRh and its pseudobinary variants. *J Appl Phys*, 1966, 37: 1257–1258
- 44 Thiele J U, Maat S, Fullerton E E. FeRh/FePt exchange spring films for thermally assisted magnetic recording media. *Appl Phys Lett*, 2003, 82: 2859–2861
- 45 Guslienko K Y, Chubykalo-Fesenko O, Mryasov O, et al. Magnetization reversal via perpendicular exchange spring in FePt/FeRh bilayer films. *Phys Rev B*, 2004, 70: 104405
- 46 Garcia-Sanchez F, Chubykalo-Fesenko O, Mryasov O, et al. Exchange spring structures and coercivity reduction in FePt/FeRh bilayers: A comparison of multiscale and micromagnetic calculations. *Appl Phys Lett*, 2005, 87: 122501
- 47 Lu W, Nam N T, Suzuki T. Magnetic properties and phase transition kinetics of $\text{Fe}_{50}(\text{Rh}_{1-x}\text{Pt}_x)_{50}$ thin films. *IEEE Trans Magn*, 2009, 45: 4011–4014
- 48 Huang Y, Zhu X Y, Lang Y Y, et al. Thermal antiferromagnetism-ferromagnetism transition in $(B2\text{-FeRh})\text{-}(L1_0\text{-FePt})$ composite films (in Chinese). *Sci Sin Phys Mech Astron*, 2014, 44: 720–727 [黄颖, 朱心阳, 郎颖越, 等. $(B2\text{-FeRh})\text{-}(L1_0\text{-FePt})$ 复合双层薄膜的热致反铁磁-铁磁转变. *中国科学: 物理学 力学 天文学*, 2014, 44: 720–727]
- 49 Klemmer T J, Liu C, Shukla N, et al. Combined reactions associated with $L1_0$ ordering. *J Magn Mater*, 2003, 266: 79–87
- 50 Soffa W A, Laughlin D E. Decomposition and ordering processes involving thermodynamically first-order order $\rightarrow$ disorder transformations. *Acta Metall*, 1989, 37: 3019–3028
- 51 Barmak K, Kim J, Berry D C, et al. Calorimetric studies of the $A1$ to $L1_0$ transformation in binary FePt thin films with compositions in the range of 47.5–54.4 at.% Fe. *J Appl Phys*, 2005, 97: 024902–024908
- 52 Lu W, He C C, Chen Z, et al. Magnetic properties of epitaxial-grown exchange-coupled FePt/FeRh bilayer films. *Appl Phys A*, 2012, 108: 149–153
- 53 Xiang H, Mo X J, Zheng Y P, et al. Morphology and magnetic properties of vertically orientated continuous FePt films annealed at high temperature (in Chinese). *Chin Sci Bull*, 2011, 56: 1188–1195 [向晖, 莫小静, 郑远平, 等. 耐高温垂直取向 FePt 连续薄膜的表面形貌与磁性. *科学通报*, 2011, 56: 1188–1195]

Structures and magnetic properties of FePt/FeRh bilayer films

ZHAO HuJun¹, ZHU YanYan¹, ZENG DaoFu¹, LI YuHui¹, ZHENG Fu^{2,4}, PEI WenLi^{3,4}, EGAWA Gentai⁴, YOSHIMURA Satoru⁴, SAITO Hitoshi⁴ & LI GuoQing^{1,4}

¹School of Physical Science and Technology, Southwest University, Chongqing 400715, China;

²School of Physical Electrical Information Engineering, Ningxia University, Yinchuan 750021, China;

³Key Laboratory for Anisotropy and Texture of Materials, Ministry of Education, Northeastern University, Shenyang 110006, China;

⁴School of Engineering and Resource Science, Akita University, Akita 010-0852, Japan

Soft $A1\text{-FePt}$ (25 nm) films were magnetron-sputtered onto MgO (001) substrates at 400°C and annealed at different temperatures to adjust the degree of $A1\rightarrow L1_0$ transformation. The FePt was then covered with FeRh (50 nm) film at 450°C and subsequently annealed at the same temperature for 24 h to transform the FeRh layer into the ordered $B2$ phase. In this way, near-equiatomic FeRh/FePt bilayer films showing thermal antiferromagnetic-ferromagnetic transition behavior were obtained. The results indicate that both layers can grow epitaxially with an (001) texture. The antiferromagnetic-ferromagnetic transition temperature of FeRh increased from 100°C to 200°C by depositing the FeRh layer on a disordered or partially ordered FePt layer. When a magnetic field was applied perpendicularly to the plane, the magnetization curves of FeRh/FePt measured at room temperature were rectangular, and the coercive force could reach up to 7.4 kOe. After transiting the FeRh layer from antiferromagnetic to soft magnetic by heating, the magnetization jumped at two critical fields during the magnetization reversal process, indicating the existence of magnetic springs, and the coercive force could decrease to about half of that at room temperature. It is proposed that the shift of the antiferromagnetic-ferromagnetic transition temperature resulted from the precipitation of Pt from FePt during the $A1\rightarrow L1_0$ transformation and the migration into FeRh during the disordered $B2\rightarrow$ ordered $B2$ transformation. This information will be useful for improving the stability of thermally assisted magnetic storage media.

FeRh/FePt bilayer film, antiferromagnetic-ferromagnetic transition, annealing, coercive force

doi: 10.1360/N972014-01131