

doi: 10.3969/j.issn.0490-6756.2018.03.032

# Ag 层厚度对 FePd 薄膜的结构和磁性能的影响

张艳丽<sup>1,2</sup>, 成 钢<sup>1,2</sup>, 许小宗<sup>2</sup>, 李 林<sup>1,2</sup>, 杜玉松<sup>1,2</sup>, 武小飞<sup>1,2</sup>

(1. 广西信息材料重点实验室, 桂林 541004; 2. 桂林电子科技大学材料科学与工程学院, 桂林 541004)

**摘 要:** 采用磁控溅射的方法, 在石英玻璃上制备了  $Ag_x/FePd(67.5\text{ nm})$  ( $x=3.875, 7.75, 15.50, 31, 38.75\text{ nm}$ ) 和  $FePd(67.5\text{ nm})/Ag_x$  ( $x=7.75, 15.50, 31\text{ nm}$ ) 薄膜, 研究了 Ag 对 600 °C 退火不同时间的 FePd/Ag、Ag/FePd 薄膜的影响. 结果显示, 无论 Ag 沉积在 FePd 薄膜顶层还是底层, Ag 层的加入都能加快薄膜从面心立方(FCC)到面心四方(FCT)的相转变. Ag 能极大增强 FePd 薄膜的矫顽力. 比较 Ag/FePd 和 FePd/Ag 薄膜, Ag/FePd 薄膜中的部分样品有沿某一方向优先生长的趋势, 更利于实际应用. 在 Ag/FePd 薄膜中晶粒易磁化轴平行面内, 当顶层 Ag 厚度为 31 nm 时, 薄膜有很大的面内矫顽力 2.8 kOe 和很小的垂直方向矫顽力 1.04 kOe.

**关键词:** FePd 薄膜; Ag 层; 相转变; 矫顽力

**中图分类号:** O484 **文献标识码:** A **文章编号:** 0490-6756(2018)03-0609-04

## Effect of thickness of Ag layer on the structure and magnetic properties of FePd films

ZHANG Yan-Li<sup>1,2</sup>, CHENG Gang<sup>1,2</sup>, XU Xiao-Zong<sup>2</sup>, LI Lin<sup>1,2</sup>, DU Yu-Song<sup>1,2</sup>, WU Xiao-Fei<sup>1,2</sup>

(1. Guangxi Key Laboratory of Information Materials, Guilin 541004, China;

2. School of Material Science and Engineering, Guilin University of Electronic Technology, Guilin 541004, China)

**Abstract:** A series of FePd based alloy films were deposited on glass substrates by DC magnetron sputtering. In order to find the role of the Ag layer in disorder-order of FePd film, it was studied that the Ag layer effected on  $Ag_x/FePd(67.5\text{ nm})$  ( $x=3.875, 7.75, 15.50, 31, 38.75\text{ nm}$ ) and  $FePd(67.5\text{ nm})/Ag_x$  ( $x=7.75, 15.50, 31\text{ nm}$ ) films annealed at 600 °C for different time. The results showed that the Ag layer could accelerate phase transition from FCC (face-centered cubic) to FCT (face-centered tetragonal) in films and greatly enhance the coercivity of FePd films. Compared Ag/FePd with FePd/Ag films, some samples of Ag/FePd films have highly preferred orientation. The magnetic easy axis of the crystallites in Ag/FePd film is in-plane of substrate. When the thickness of Ag toplayer is equal to 31 nm, the film has a very large in-plane coercivity of 2.8 kOe and a very low out-of-plane coercivity of 1.04 kOe.

**Keywords:** FePd thin film; Ag layer; Phase transition; Coercivity

## 1 引 言

有着垂直磁各向异性的铁磁性 L1<sub>0</sub> 有序化合

金薄膜, 如 FePt, CoPt 和 FePd, 近年来常被研究应用于磁记录介质、磁性随机存取存储器装置等<sup>[1-5]</sup>. 目前研究较多的磁记录介质, 如有着很高

收稿日期: 2016-11-21

基金项目: 国家自然科学基金(51261004); 广西信息材料重点实验室项目(161008-Z)

作者简介: 张艳丽(1979-), 女, 讲师, 硕士, 研究方向为磁性薄膜材料. E-mail: zhangyanli@guet.edu.cn

磁晶各向异性能(Ku)的 FePt 合金<sup>[6,7]</sup>,要求相当高的写入场将数据写入介质中,这显然不适用于商业生产. 有着相对较低 Ku 的 FePd 则能有效地解决这一问题. 另外,对于工业应用来说,Pt 元素的价格较高. 从这两方面来看,FePd 薄膜更适宜于工业应用. 而且,FePd 有序化转变温度也远低于 FePt 和 CoPt<sup>[8]</sup>. 因此,在超高密度磁记录介质中 FePd 薄膜更具应用潜力. 目前研究重点主要集中在寻找合适的添加元素、衬底以及在单晶衬底和薄膜之间加入缓冲层,以减少磁性晶粒尺寸,有效减弱或消除磁性颗粒之间的交换耦合作用等方面. 由于 Ag 原子不易与 Fe 或 Pd 原子形成合金,并且与 FePd 的晶格适配度较小,被认为是一种较理想的非磁性基质材料. 许小红等报道了底层 Ag 有利于减少 FePt 薄膜的有序化温度<sup>[9-11]</sup>. Platt 等报道了添加 Au 或 Ag 的 FePt 薄膜比纯 FePt 薄膜的矫顽力高出 1~2 kOe<sup>[12]</sup>. 本文研究 Ag 对 600 °C 退火不同时间的 FePd/Ag、Ag/FePd 薄膜的结构、相转变和磁性能的影响,目的是为了找出 FePd 薄膜的无序到有序转变过程中 Ag 所起的作用.

## 2 实验

采用直流磁控溅射法,室温下将有无 Ag 层的 FePd 薄膜沉积在玻璃衬底上,工作气体为氩气,靶材有两个:一个是表面放置 Pd 的 Fe 片,一个是 Ag 片,分别固定在两个溅射靶上. 通过调节 Fe 片上 Pd 的数量来改变薄膜的成分,通过调节沉积的时间来改变薄膜的厚度. 基片温度为室温. 沉积后,样品密封在预抽真空并充满氩气的石英管中,600 °C 退火不同的时间. 能谱仪(EDS)分析薄膜的

成分,扫描电子显微镜(SEM)测量薄膜的厚度,X 射线衍射仪(XRD)分析样品的晶体结构,室温下用综合物性测量系统(PPMS-9)测试样品磁性能.

## 3 结果与讨论

FePd 薄膜的厚度为 67.5 nm,Ag/FePd 系列薄膜中 Ag 顶层的厚度为 3.875、7.75、15.5、31 和 38.75 nm,分别命名为 1<sup>#</sup> 到 5<sup>#</sup> 样品;FePd/Ag 系列薄膜中 Ag 底层的厚度为 7.75、15.5 和 31 nm,分别命名为 6<sup>#</sup> 到 8<sup>#</sup> 样品. 图 1 显示了样品在 600 °C 退火的 XRD 图谱.(200)、(002)、(220)、(202)、(311)和(113)峰来自原来面心立方(FCC)软磁相的(200)、(220)和(311)峰,因此,从(200)、(002)、(220)、(202)、(311)和(113)分裂峰的出现能很容易地判断出面心四方(FCT)有序相的畸变程度. 图 1(a)显示 2<sup>#</sup> 样品退火不同时间的 XRD 图谱. 从退火 3 h 的 2<sup>#</sup> 样品的 XRD 谱线看出,此时薄膜仍处于一个完全无序的 FCC 相的多晶结构. 当退火时间达 4 h 以后,从图 1(a)能观察到属于 FCT 相的(111). 图 1(b)给出了 FePd 薄膜和不同厚度 Ag 层的 FePd/Ag 和 Ag/FePd 薄膜在退火 3 h 后的 XRD 图谱. 无 Ag 层的 FePd 薄膜退火后只观察到属于 FCC 相的峰,这意味着此样品中的晶体结构仍是 FCC 相,没有发生相转变. 从 1<sup>#</sup> 样品和 2<sup>#</sup> 样品的 XRD 图谱中观察不到属于 FCT 相的(111)峰,但有着 15.5 nm Ag 层的 3<sup>#</sup> 和 6<sup>#</sup> 样品的主要相已不是 FCC 相,而是 L<sub>1</sub><sub>0</sub>(FCT)相. 这说明 Ag 层能促使从软磁性质的 FCC 相到硬磁性质的 FCT 相的相转变,而且 Ag 层越厚越有助于相转变.

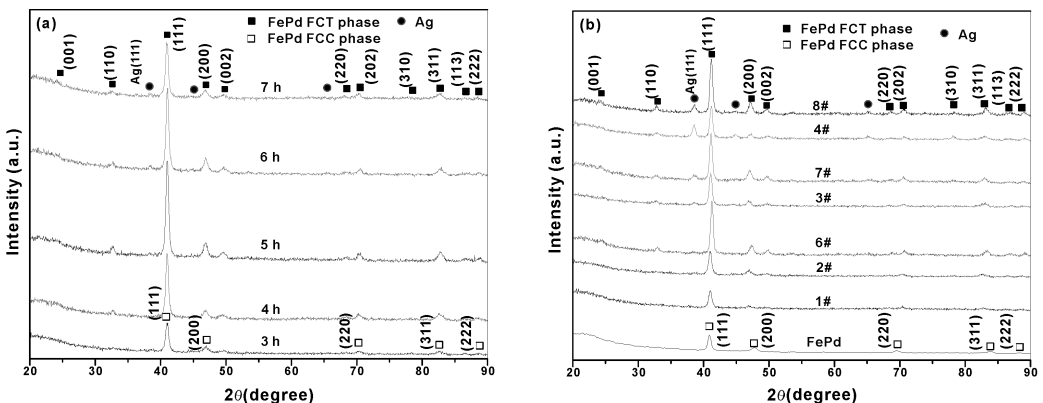


图 1 FePd、FePd/Ag 和 Ag/FePd 薄膜在 600 °C 退火的 XRD 谱

(a) 2<sup>#</sup> 样品退火不同时间;(b) 所有样品退火 3 h

Fig. 1 XRD patterns of FePd, FePd/Ag and Ag/FePd films annealed at 600 °C

(a) Sample 2<sup>#</sup> annealed for different time; (b) all films annealed for 3 h

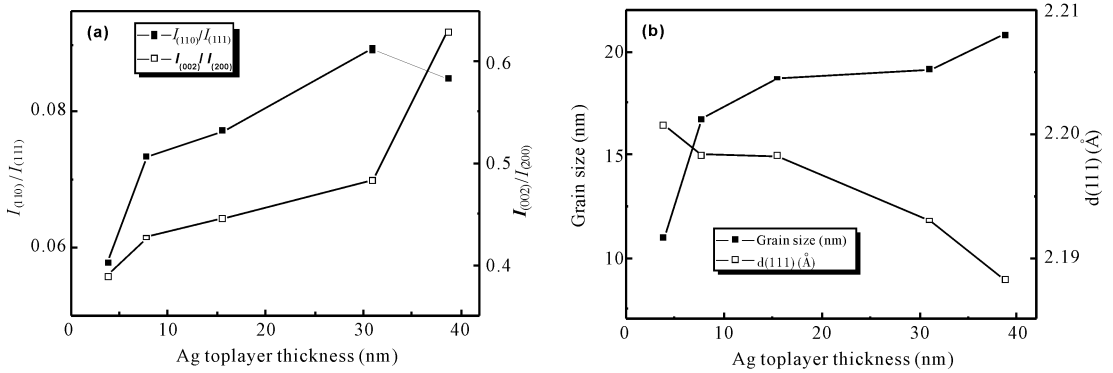


图 2 Ag/FePd 薄膜 (a)  $I(110)/I(111)$  和  $I(002)/I(200)$ 、(b) 晶粒尺寸和  $d(111)$  随顶层 Ag 厚度的变化, 所有样品均在  $600\text{ }^{\circ}\text{C}$  退火 5 h

Fig. 2 (a) The ratios of Ag/FePd  $I(110)/I(111)$  and  $I(002)/I(200)$  and (b) the grain size and  $d(111)$  as a function of the thickness Ag toplayers, all samples were annealed at  $600\text{ }^{\circ}\text{C}$  for 5 h

图 2(a)通过分析(110)/(111)和(002)/(200)的 XRD 峰强比随顶层 Ag 厚度的变化趋势, 显示了 FePd 和 Ag/FePd 薄膜的织构发展和  $L1_0$  相有序化程度. 图 2 中所有的样品都在  $600\text{ }^{\circ}\text{C}$  退火 5 h. 有序化程度与 Fe 和 Pd 原子周期性的叠层排列有关. 因此, (110)超晶格峰与(111)基本峰的比值以及(002)峰与(200)峰的比值是 FePd 中化学有序化程度的表征. 总的来看, (110)/(111)和(002)/(200)峰强比表明了增加顶层 Ag 的厚度会增加 FePd 的化学有序化. 另外, 能明显看到(110)/(111)的最大值出现在顶层 Ag 厚度为 31 nm(4<sup>#</sup> 样品)时. 可以看出, 合适的 Ag 层厚度能有效地促使化学有序化和  $L1_0$  FePd 相取向生长. 这种更优先的取向可能是由于 Ag 层和 FePd 层的不匹配所引起的热应力导致的, 这种优先的取向也为 FePd 薄膜垂直磁各向异性的形成增加了驱动力. 而且, 随着顶层 Ag 厚度的增加, (110)/(111)和(002)/(200)峰强比随之改变, 这也说明了通过控制顶层 Ag 的厚度可以控制有序和无序 FePd 相的数量.

图 2(b)给出了随着顶层 Ag 厚度的增加晶粒尺寸和(111)晶面间距  $d(111)$  的变化趋势. 显然, 晶粒尺寸随 Ag 层厚度的增加而缓慢增大. 同时,  $d(111)$  随 Ag 层厚度的增加逐渐减小, 这也意味着 FePd 的化学有序化在增加.

为了研究 Ag 对 FePd 薄膜磁性能的贡献, 对样品进行磁性能测量, 数据分别记录在图 3 和图 4 中. 图 3 给出了样品 3<sup>#</sup>  $600\text{ }^{\circ}\text{C}$  退火 5 h 的磁滞回线; 图 3 中左上图显示了 Ag/FePd 薄膜的矫顽力随顶层 Ag 厚度的变化. 图 4 给出了样品 7<sup>#</sup>  $600\text{ }^{\circ}\text{C}$  退火 6 h 的磁滞回线; 图 4 中左上图显示了

FePd/Ag 薄膜的矫顽力随底层 Ag 厚度的变化. 从图 3 中可以看出, 3<sup>#</sup> 样品相对衬底平面平行和垂直方向都容易磁化, 而且平行和垂直方向的矫顽力几乎相等, 约为 2.3 kOe, 这意味着 3<sup>#</sup> 样品不具有某一方向优先取向生长的趋势, 这也是两个方向测量出矫顽力数值基本相等的原因. 至于其他样品, 图 3 插图显示了平行和垂直方向矫顽力的不同; 对不同厚度的顶层 Ag, 平行方向的矫顽力比垂直方向大得多, 这表明了在这些薄膜中的晶粒易磁化轴是平行衬底平面. 当顶层 Ag 厚度分别为 31 和 15.5 nm 时, 平行和垂直方向矫顽力达到其最大值. 增加或减少 Ag 厚度都会导致矫顽力的减小. 当顶层 Ag 厚度为 31 nm(4<sup>#</sup> 样品)时, 薄膜的性能最佳. 4<sup>#</sup> 样品有着很大的 2.8 kOe 面内矫顽力和相对较小的 1.04 kOe 垂直方向矫顽力, 这一特性有利于实际应用. 对 4<sup>#</sup> 样品, 可以认为所有 FePd 晶粒的磁矩都相互平行于膜面. 这就导致了相对较高的磁晶各向异性. 正如前面图 2(a)所讨论的, 4<sup>#</sup> 样品有着最大的(110)和(111)峰强比. 可见, 磁性能与相应的结构一致. 观察 FePd/Ag 薄膜发现, 该系列样品平行和垂直方向都容易磁化, 平行和垂直方向的矫顽力相差不大, 且都比较大, 但都不具有某一方向优先取向生长的趋势. 综合比较而言, Ag/FePd 薄膜更有利于实际应用.

## 4 结论

本文研究了 Ag 对 FePd 薄膜结构和磁性能的影响. FePd 薄膜的取向严重受 Ag 层厚度的影响. Ag 能促进薄膜从软磁 fcc 相到硬磁 fct 相的相转变, 而且 Ag 层越厚越有助于相转变. 合适的 Ag 层厚度能提高化学有序化以及维持垂直磁各项异

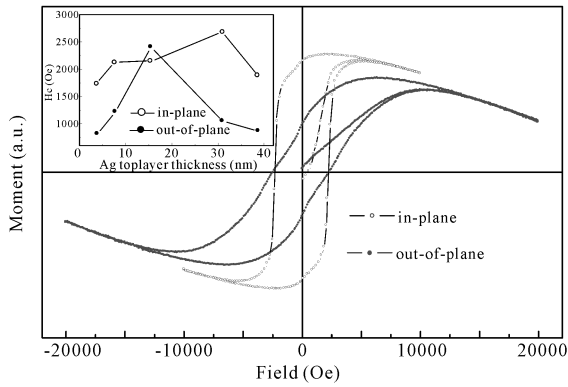


图 3  $3^{\#}$  样品在  $600^{\circ}\text{C}$  退火 5 h 的磁滞回线  
插图是 Ag/FePd 薄膜矫顽力随顶层 Ag 厚度的变化  
Fig. 3 Hysteresis loops of sample  $3^{\#}$  after anneal for 5 h at  $600^{\circ}\text{C}$   
Inset is the coercivity of Ag/FePd film as a function of the thickness Ag toplayers

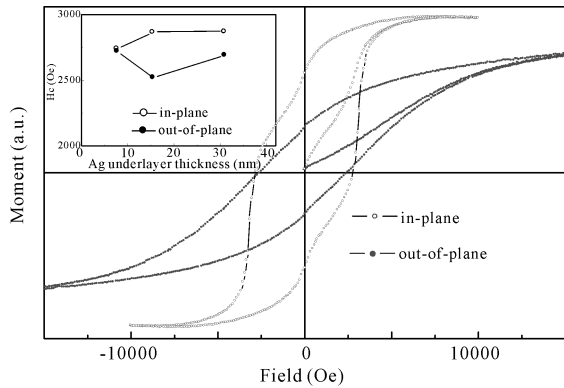


图 4  $7^{\#}$  样品在  $600^{\circ}\text{C}$  退火 6 h 的磁滞回线  
插图是 FePd/Ag 薄膜矫顽力随底层 Ag 厚度的变化  
Fig. 4 Hysteresis loops of sample  $7^{\#}$  after anneal for 6 h at  $600^{\circ}\text{C}$   
Inset is the coercivity of FePd/Ag film as a function of the thickness Ag underlayers

性。通过控制 Ag 层的厚度可以控制有序和无序 FePd 相的数量。Ag 层能极大增强 FePd 薄膜的矫顽力。比较 Ag/FePd 和 FePd/Ag 薄膜, Ag/FePd 薄膜中的部分样品有沿某一方向优先生长的趋势, 更有利于实际应用。在 Ag/FePd 薄膜中晶粒易磁化轴平行面内, 当顶层 Ag 厚度为 31 nm, Ag/FePd 薄膜峰值矫顽力达 2.8 kOe。

#### 参考文献:

[1] Perzanowski M, Krupinski M, Zarzycki A, *et al.* Determination of grain shape of laser-irradiated FePdCu thin alloy films [J]. Appl Surf Sci, 2014, 302: 129.

[2] Chen J S, Lim B C, Ding Y F, *et al.* Low-temperature deposition of  $L_{10}$  FePt films for ultra-high density magnetic recording [J]. J Magn Magn Mater, 2006, 303: 309.

[3] Gan'shina E, Guschin V, Romanov I, *et al.* Co-Pd alloy films magneto-optical recording [J]. J Magn Magn Mater, 1999, 193: 174.

[4] Van der Laan G, Chesnel K, Belakhovsky M, *et al.* Magnetic anisotropy of aligned magnetic stripe domains in FePd studied by soft x-ray resonant magnetic scattering, magnetic force microscopy and micromagnetic modeling [J]. Superlattice Microstr, 2003, 34: 107.

[5] 宋智林, 刘霞, 张丽, 等. 真空退火对  $L_{10}$ -CoPt 薄膜结构、磁性及表面形貌的影响[J]. 原子与分子物理学报, 2017, 34: 136.

[6] Gehanno V, Auric P, Marty A, *et al.* Structural and magnetic properties of epitaxial  $\text{Fe}_{0.5}\text{Pd}_{0.5}$  thin films studied by Mössbauer spectroscopy [J]. J Magn Magn Mater, 1998, 188: 310.

[7] Becker J, Mosendz O, Weller D, *et al.* Laser induced spin precession in highly anisotropic granular  $L_{10}$ FePt [J]. Appl Phys Lett, 2014, 104: 152412.

[8] Zhang Y L, Cheng G, Xu X Z, *et al.* Effect of thickness on the structure and magnetic properties of FePd films grown on glass substrate [J]. Rare Metal Mat Eng, 2017, 46: 1788.

[9] Xu X H, Wu H S, Wang F, *et al.* The effect of Ag and Cu underlayer on the  $L_{10}$  ordering FePt thin films [J]. Appl Surf Sci, 2004, 233: 1.

[10] 董凯锋, 程晓敏, 鄢俊兵, 等. 不同退火时间对  $[\text{Ag}/\text{FePt}]_{10}$  多层膜磁性能和微结构的影响[J]. 功能材料, 2009, 40: 20.

[11] Xu X H, Jin T, Wu H S, *et al.* Nearly perfect (001)-oriented Ag/[CoPt/C]<sub>5</sub>/Ag composite films deposited on glass substrates [J]. Thin Solid Films, 2007, 515: 5471.

[12] Platt C L, Wierman K W, Svedberg E B, *et al.*  $L_{10}$  ordering and microstructure of FePt thin films with Cu, Ag and Au additive [J]. J Appl Phys, 2002, 92: 6104.