

# 磁控溅射方法制备 $(\text{CoCr}/\text{Pt})_{20}$ 纳米多层膜及表征\*

黄 阔<sup>1,2</sup> 李宝河<sup>1,3</sup> 杨 涛<sup>1</sup> 翟中海<sup>1</sup> 朱逢吾<sup>1</sup>

(1 北京科技大学材料物理与化学系, 北京 100083)

(2 金日成综合大学物理系, 平壤, 朝鲜)

(3 北京工商大学数理部, 北京 100037)

**摘要:** 采用磁控溅射方法制备了性能优良的以 Pt 为缓冲层的  $(\text{CoCr}/\text{Pt})_{20}$  纳米多层膜, 研究了溅射气压对  $(\text{CoCr}/\text{Pt})_{20}$  纳米多层膜的微结构和磁性的影响. 结果表明, Ar 溅射气压对  $(\text{CoCr}/\text{Pt})_{20}$  纳米多层膜的微结构、垂直磁各向异性和矫顽力有很大的影响. 所有样品的有效各向异性常数  $K_{\text{eff}} > 0$ , 具有垂直磁各向异性. X 射线衍射结果显示, 小角衍射峰很锐, 样品有良好的周期性层状结构. 随着 Ar 溅射气压增加, 样品垂直膜面的矫顽力增加, 但样品有效磁各向异性常数减小. 原子力显微镜照片显示, 随着 Ar 溅射气压增加, 其表面平均晶粒尺寸和粗糙度均增加, 这是导致多层膜的垂直矫顽力增加和有效磁各向异性常数减小的因素.

**关键词:** 溅射气压; 纳米多层膜; 垂直磁各向异性; 有效磁各向异性常数

**PACC:** 7550S; 7570F

**中图分类号:** O484.4      **文献标识码:** A      **文章编号:** 0253-4177(2005)S0-0065-05

## 1 引言

硬磁盘技术近十年来得到飞速发展. 现今, 实验室演示的最高存储密度已达到  $20.2 \text{ Gb}/\text{cm}^2$ <sup>[1]</sup>. 要进一步提高磁记录密度, 对磁介质而言就是要提高矫顽力, 减小记录畴的尺寸. 为了克服过小的晶粒尺寸引起的超顺磁性对记录热稳定性的影响, 需要提高记录介质材料的磁各向异性. 另一方面, 对于目前采用的纵向磁记录技术, 随记录磁畴尺寸的减小会产生很强的退磁场, 影响记录磁区的稳定. 采用垂直记录方法可以克服退磁场的影响<sup>[2]</sup>.

多层膜化有利于获得垂直磁各向异性, 在磁性多层膜, 如 Co/Pt, Co/Pd 中曾经观察到很大的垂直磁各向异性, 这种垂直磁各向异性被认为起源于磁性和非磁性层界面, 是由于界面处晶体结构的各向异性所导致的. 这方面的研究对第二代垂直磁光记录介质很有意义<sup>[3~6]</sup>, 但由于存在很强的晶粒间磁耦合作用, 这些多层膜尚未在磁记录介质中得到应用.

CoCr 基合金由于具有较大的单轴磁各向异性, 而且 Cr 可以偏聚在晶界, 减小磁性晶粒间磁耦合作用, 所以这是目前普遍使用的纵向磁记录介质, 也是垂直磁记录介质的首选. 最近人们对  $\text{Co}_{1-x}\text{Cr}_x/\text{Pt}$  多层膜垂直介质的矫顽力和磁光特性做过一些研究, 发现在晶界处形成的富 Cr 区域可以减小晶粒间的交换耦合作用, 从而降低系统作为垂直磁记录介质使用时的噪音<sup>[7,8]</sup>. 但是有关各种工艺参数对 CoCr/Pt 多层膜微结构和磁性影响的系统研究, 尚未见报道.

我们最近研究了 Pt 缓冲层和 CoCr 磁性层的厚度对 CoCr/Pt 多层膜的微结构和垂直磁各向异性的影响, 结果表明, 对于以 Pt 为缓冲层的  $(\text{CoCr}/\text{Pt})_{20}$  多层膜, CoCr 层的厚度为 0.5 nm, Pt 层厚度为 1.5 nm, Pt 缓冲层的厚度为 20 nm 时, 多层膜的垂直磁各向异性最大, 但其矫顽力还偏低<sup>[9]</sup>.

为了提高 CoCr/Pt 多层膜的矫顽力, 使之适合于更高密度的垂直磁记录介质, 本文主要报道 Ar 溅射气压对  $(\text{CoCr}/\text{Pt})_{20}$  多层膜的微结构、磁各向异性和矫顽力的影响, 结果表明, 高溅射气压可明显提

\* 国家自然科学基金资助项目 (批准号: 50301002)

黄 阔 男, 1964 年出生, 博士研究生, 从事磁性薄膜材料的研究.

2004-10-22 收到, 2004-12-10 定稿

高 CoCr/Pt 多层膜的垂直矫顽力.

## 2 实验

### 2.1 多层膜的制备

所有的样品都是采用 DV-502 型磁控溅射仪制备. 溅射前的本底真空度优于  $4 \times 10^{-5}$  Pa. 溅射气体为 99.99% 的高纯 Ar 气. Ar 溅射气压在 0.4 ~ 1.6 Pa 范围变化, 由于设备限制, 溅射气压不能大于 1.6 Pa. 玻璃基片在专用电子清洗液煮沸后, 分别用去离子水、丙酮和无水乙醇超声清洗, 最后烘干. CoCr 层采用 Co 靶 (99.9%) 和 Cr 靶 (99.95%) 直流共溅射, 溅射速率为 0.15 nm/s, Pt 层用 Pt 靶 (99.95%) 射频溅射, 溅射速率为 0.13 nm/s. 沉积过程中, 基片温度控制在 220°C, 此温度下 CoCr 薄膜的矫顽力最佳<sup>[12]</sup>. 为保证薄膜的均匀性, 成膜时玻璃基片始终以 18 r/min 的速率旋转.

### 2.2 多层膜的分析与测试

利用 X 射线衍射仪 (XRD) 分析多层膜的晶体结构 (Cu-K $\alpha$ ), 利用扫描电镜的 X 射线能量色散光谱 (XEDS) 测量多层膜的成分, 所有 CoCr 膜成分均为 Co<sub>85</sub>Cr<sub>15</sub>. 根据溅射时间控制薄膜厚度. 参照我们过去的研究结果, CoCr 层的厚度为 0.5 nm, Pt 层的厚度为 1.5 nm, Pt 缓冲层的厚度为 20 nm. 薄膜厚度测量采用台阶仪. 磁性测量采用 MicroMag<sup>TM</sup> 2900 型交变梯度磁强计 (AGM). 用 Dimention<sup>TM</sup> 3100 型原子力显微镜 (AFM) 观察样品的表面形貌.

## 3 结果及讨论

### 3.1 多层膜的结构

图 1 所示为不同 Ar 溅射气压时 (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜的 X 射线衍射谱. 从 X 射线衍射结果看, 小角峰的位置都在  $2\theta \approx 4.5^\circ$  位置上, 并且峰很锐, 说明多层膜有良好的周期性层状结构. 小角峰并不随 Ar 溅射气压的增加而移动. 从界面处反射的 X 射线发生干涉时要满足布拉格衍射条件, 也就是出现衍射的条件为  $2\Delta \sin\theta = n\lambda$  ( $n = 1, 2, \dots$ ), 其中  $\Delta$  为 CoCr/Pt 双层膜厚度. 由于实验设计的调制周期  $\Delta$  为 2.0 nm, 所以衍射峰出现在小角范围内. 实验设

计  $\Delta$  值与小角衍射峰计算所得的  $\Delta$  值 (1.97 nm) 十分接近. Ar 溅射气压增加时, 膜层厚度及调制周期结构不变. 从大角衍射谱上可以看到 Pt(111) 峰、CoCr/Pt(111) 峰、卫星峰  $-S_1$ 、 $+S_1$ , 分别对应  $2\theta = 39.7, 40.7, 35.7, 45.9^\circ$ . 由图 1 看出, Pt(111) 峰是由 Pt 缓冲层产生的. 多层膜中的 Pt(111) 峰和 CoCr(002) 峰已合并成一个 CoCr/Pt(111) 峰, 这是因为 CoCr 的 (002) 面间距接近于 Pt 的 (111) 面间距. 每个峰的位置不随 Ar 溅射气压的增加而移动. 这里 Pt(111) 峰和 CoCr/Pt(111) 峰最强, 说明 CoCr/Pt 多层膜有良好的 (111) 织构. 随 Ar 溅射气压的增加,  $+S_1$  卫星峰增强.

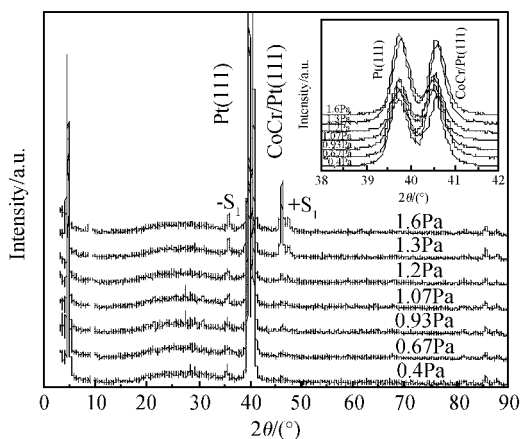


图 1 Ar 溅射气压在 0.4 ~ 1.6 Pa 范围内制备的 (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜的 X 射线衍射谱

Fig. 1 X-ray diffraction pattern of (CoCr/Pt)<sub>20</sub> nanomultilayers prepared when sputtering Ar gas pressure was varied from 0.4 to 1.6 Pa

### 3.2 多层膜的磁性

首先研究了 (CoCr/Pt)<sub>N</sub> 多层膜调制周期的变化对样品的磁性和结构的影响. 图 2 所示用交变梯度磁强计 (AGM) 测量的 (CoCr/Pt)<sub>N</sub> 多层膜的垂直矫顽力  $H_{C\perp}$  随层数  $N$  的变化 (溅射气压为 1.2 Pa). 从图中可见, 随着层数增加, 垂直矫顽力越来越大 ( $N$  小于 20 时). 在层数达到 20 时, (CoCr/Pt)<sub>N</sub> 多层膜的  $H_{C\perp}$  可达到 120 kA/m. 在  $N$  大于 20 时, 随着层数增加, 垂直矫顽力  $H_{C\perp}$  不再增加. 所有的多层膜中, 垂直方向都是易磁化方向. 垂直磁滞回线的矩形比都在 0.91 左右.

图 3 给出用交变梯度磁强计 (AGM) 测量的不同 Ar 溅射气压时 (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜的磁滞回线. 从图中可见, 在所有的多层膜中, 垂直方向都是易磁

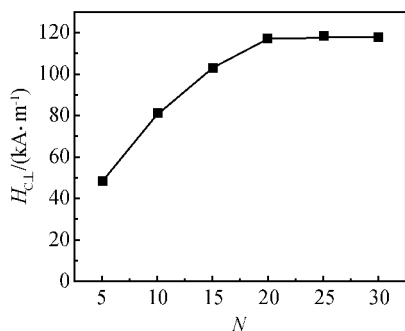


图2 (CoCr/Pt)<sub>N</sub> 多层膜的垂直矫顽力  $H_{C\perp}$  随层数  $N$  的变化

Fig. 2 Perpendicular coercivity  $H_{C\perp}$  of (CoCr/Pt)<sub>N</sub> nanomultilayers versus number of layer pairs  $N$

化方向. 垂直磁滞回线的矩形比都在 0.91 左右. 随着 Ar 溅射气压增加, 垂直矫顽力越来越大. 在 Ar 溅射气压达到 1.6 Pa 时 (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜的垂直矫顽力可达到 130 kA/m. 因为溅射气压的增加一般伴随着薄膜缺陷的增加, 从而增加了磁化过程中磁畴壁的钉扎中心, 使得垂直矫顽力上升.

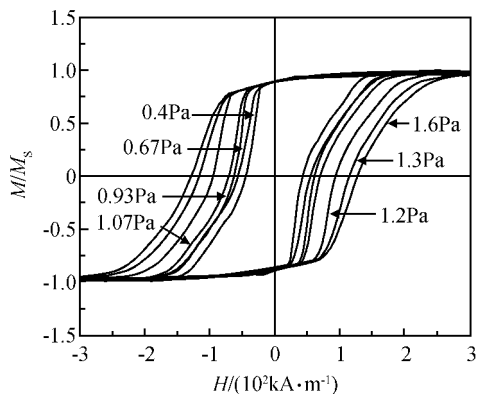


图3 不同 Ar 溅射气压制备的 (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜的垂直磁滞回线

Fig. 3 Perpendicular hysteresis loops of (CoCr/Pt)<sub>20</sub> nanomultilayers prepared at different sputtering Ar gas pressure

图4 是有效磁各向异性常数  $K_{\text{eff}}$  垂直矫顽力  $H_{C\perp}$  随 Ar 溅射气压的变化. 我们直接测到的是含有体和面各向异性贡献的有效磁各向异性常数  $K_{\text{eff}}$ ,  $K_{\text{eff}}$  反映单位体积的样品沿膜面和垂直于膜面方向磁化时的能量差, 即把面内和垂直两个方向的磁化曲线与纵轴所包围的面积之差定义为有效磁各向异性常数  $K_{\text{eff}}$ , 当  $K_{\text{eff}}$  大于零时, 垂直于膜面的磁化具有更低的能量, 薄膜具有垂直磁各向异性.  $K_{\text{eff}}$  一般被唯象地表示为:

$$K_{\text{eff}} = K_V + \frac{2K_S}{t_{\text{CoCr}}} \quad (1)$$

其中  $t_{\text{CoCr}}$  是磁性层的厚度;  $K_V$  和  $K_S$  分别代表体和界面对各向异性贡献,  $K_S$  前的因子 2 表示磁性层有两个界面. 从图中可看出, 随着 Ar 溅射气压增加, 垂直矫顽力增加. 另一方面随着 Ar 溅射气压的增加, 有效磁各向异性常数减小, 也即平行方向和垂直方向的两条磁滞回线逐渐靠近, 这表示磁化易轴逐渐从垂直转向面内方向. 但所有样品的有效磁各向异性常数  $K_{\text{eff}}$  均大于 0, 这说明所有样品仍然都是有垂直磁各向异性. 当 Ar 溅射气压为 0.4 Pa 时,  $K_{\text{eff}} = 3.9 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ , 当 Ar 溅射气压为 1.6 Pa 时,  $K_{\text{eff}} = 1.63 \times 10^5 \text{ J/m}^3$ .

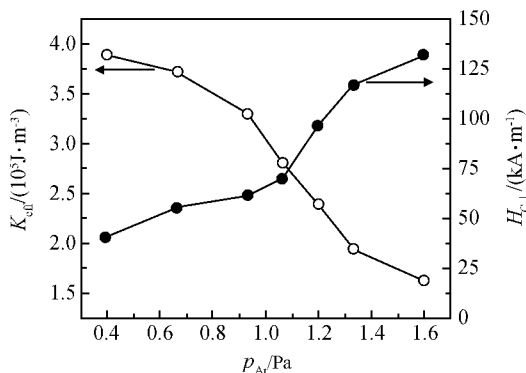


图4 (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜的有效磁各向异性常数  $K_{\text{eff}}$  和垂直矫顽力  $H_{C\perp}$  随 Ar 溅射气压的变化

Fig. 4 Effective magnetic anisotropy constant  $K_{\text{eff}}$  and perpendicular coercivity  $H_{C\perp}$  of (CoCr/Pt)<sub>20</sub> nanomultilayers versus sputtering Ar gas pressure

图5 为不同 Ar 溅射气压时 (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜的有效各向异性场  $H_{K\perp}$  和  $H_{C\perp}/H_{K\perp}$  的变化.  $H_{C\perp}/H_{K\perp}$  值和  $H_{C\perp}$  一样是磁记录介质的重要参数. 各向异性场为:

$$H_{K\perp} = \frac{2K_{\text{eff}}}{M_S} \quad (2)$$

式中  $M_S$  为 CoCr 层的饱和磁化强度. 随 Ar 溅射气压增加,  $H_{K\perp}$  减小, 而  $H_{C\perp}/H_{K\perp}$  增加. 当溅射气压为 1.6 Pa 时,  $H_{K\perp} = 140 \text{ kA/m}$ ,  $H_{C\perp}/H_{K\perp} = 0.93$ .

为寻找影响这些磁学性能变化的微结构因素, 我们观察了用两种不同 Ar 溅射气压时 [CoCr/Pt]<sub>20</sub> 多层膜表面的 AFM 像, 如图 6 所示. 测量结果表明, 溅射气压为 0.67 Pa 时, 平均晶粒尺寸约为 54 nm, 表面粗糙度约为 1.6 nm. 随着 Ar 溅射气压增

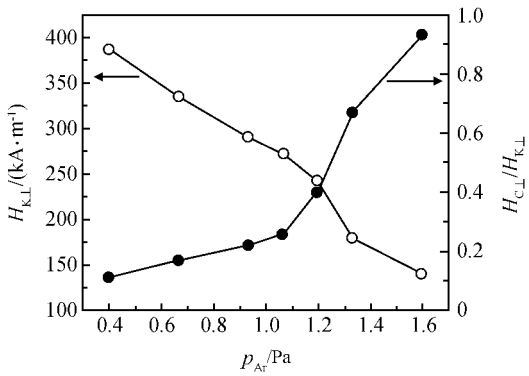


图 5 (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜的有效磁各向异性场  $H_{K\perp}$  和  $H_{C\perp}/H_{K\perp}$  随 Ar 溅射气压的变化

Fig. 5 Effective magnetic anisotropy field  $H_{K\perp}$  and  $H_{C\perp}/H_{K\perp}$  of (CoCr/Pt)<sub>20</sub> nanomultilayers versus sputtering Ar gas pressure

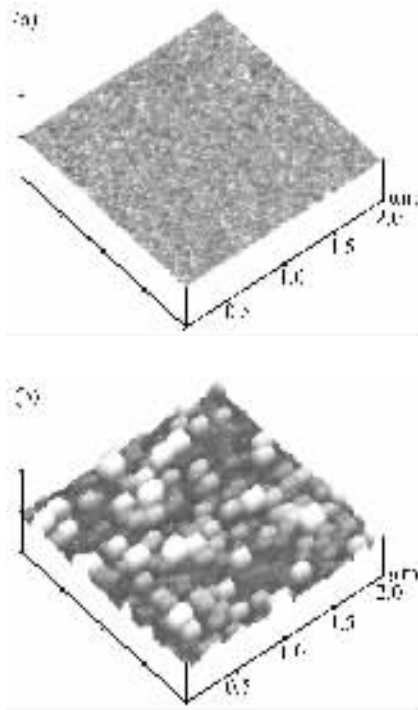


图 6 不同 Ar 溅射气压制备的 (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜的 AFM 像 (a) 0.67Pa; (b) 1.6Pa

Fig. 6 AFM images of (CoCr/Pt)<sub>20</sub> nanomultilayers prepared at different sputtering Ar gas pressure (a) 0.67Pa; (b) 1.6Pa

加,其表面平均晶粒尺寸和粗糙度均增加。当溅射气压为 1.6Pa 时,平均晶粒尺寸约为 180nm,表面粗糙度约为 10.4nm。Ar 溅射气压增加时,从靶材溅射出来的原子与 Ar 原子碰撞的几率增加,其平均自由程减小,所以溅射出来的原子到达膜表面时动能

减小,沉积速率降低,这样就减少了形核中心,容易形成更接近平衡态的较大晶粒。而晶粒增大则相应地增加了表面粗糙度。由于粗糙度增加,使得界面不再平整,也就是界面实际上不平行于膜面,因此也就减小了界面各向异性的垂直分量。所以  $K_{\text{eff}}$  随着 Ar 溅射气压的增加而减小。

## 4 结论

多层膜的层数  $N$  大于 20 时, (CoCr/Pt)<sub>N</sub> 多层膜的结构完整,  $H_{C\perp}$  不再变化。Ar 溅射气压在 0.4~1.6Pa 范围内制备的 (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜的垂直方向都是易磁化方向(即  $K_{\text{eff}} > 0$ )。垂直磁滞回线的矩形比都在 0.91 左右。随着 Ar 溅射气压增加,  $H_{C\perp}$  增加,但  $K_{\text{eff}}$  减小。Ar 溅射气压达到 1.6Pa 时, (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜的  $H_{C\perp}$  可达到 130kA/m。X 射线衍射结果表明,在 220℃ 玻璃基片上制备的 (CoCr/Pt)<sub>20</sub> 多层膜具有很好的周期性结构。AFM 的研究结果表明,随 Ar 溅射气压增加,其表面平均晶粒尺寸和粗糙度均增加。较粗糙的界面有利于多层膜  $H_{C\perp}$  的提高。

## 参考文献

- [1] Choe G, Zhou J N, Demczyk B, et al. Highly In-plane oriented CoCrPtB longitudinal media for 130Gb/in<sup>2</sup> recording. IEEE Trans Magn, 2003, 39(2): 633
- [2] Honda N, Yanase S, Ouchi K, et al. High recording performance of CoCr medium sputter-deposited at high Ar pressure and high substrate temperature. J Appl Phys, 1996, 79(8): 5362
- [3] Yasuyuki K, Yuki U, Kazuyoshi S. Co-Pt multilayers perpendicular magnetic recording media with thin Pt layer and high perpendicular anisotropy. IEEE Trans Magn, 2002, 38(5): 2045
- [4] Schuller I K, Kim S, Leighton C. Magnetic superlattices and multilayers. J Magn Magn Mater, 1999, 200: 571
- [5] Weller D, Folks L, Best M, et al. Growth structural and magnetic properties of high coercivity Co/Pt multilayers. J Appl Phys, 2001, 89(11): 7525
- [6] Zhou X, Liang B Q, Wang H, et al. Studies on magnetic and magneto-optical properties of Pt<sub>97.6</sub>Mn<sub>2.6</sub>/Co multilayers. Acta Physica Sinica, 2003, 52(2): 492 (in Chinese) [周勋, 梁冰青, 王海, 等. Pt<sub>97.6</sub>Mn<sub>2.6</sub>/Co 多层膜的磁性与磁光性质研究. 物理学报, 2003, 52(2): 492]
- [7] Takano K, Zeltzer D, Weller D K, et al. Co<sub>1-x</sub>Cr<sub>x</sub>/Pt multi-

layers as perpendicular recording media. J Appl Phys, 2000, 87 (9): 6364

[ 8 ] Svedberg E B. CoCr/Pt multilayers with perpendicular anisotropy and texture-controlled coercivity. J Appl Phys, 2002, 92

(2): 1024

[ 9 ] Hwang P, Li B H, Yang T, et al. Perpendicular magnetic anisotropy of  $\text{Co}_{85}\text{Cr}_{15}/\text{Pt}$  multilayers. Journal of University of Science and Technology Beijing, 2004, 11(4): 319

## Characterization of $(\text{CoCr/Pt})_{20}$ Nanomultilayers Preparation by Magnetron Sputtering\*

Hwang Pol<sup>1,2</sup>, Li Baohe<sup>1,3</sup>, Yang Tao<sup>1</sup>, Zhai Zhonghai<sup>1</sup>, and Zhu Fengwu<sup>1</sup>

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

(2 Department of Physics, Kim Il Sung University, Pyongyang, DPRK)

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

**Abstract:**  $(\text{CoCr/Pt})_{20}$  nanomultilayers with Pt underlayers are prepared by DC magnetron sputtering and the effect of sputtering Ar gas pressure on microstructure and magnetic properties of  $(\text{CoCr/Pt})_{20}$  nanomultilayers is studied. The results show that sputtering Ar gas pressure has a great effect on microstructure, perpendicular magnetic anisotropy, and coercivity of  $(\text{CoCr/Pt})_{20}$  nanomultilayers. For all samples, the effective magnetic anisotropy constant  $K_{\text{eff}} > 0$  and all samples have perpendicular magnetic anisotropy. The X-ray diffraction patterns show that low angle X-ray diffraction peaks are very sharp. This confirms the good quality of the multilayers and the bilayer periodicity of films. With increasing of sputtering Ar gas pressure, perpendicular and in-plane coercivity of the samples increase, but the effective magnetic anisotropy constant decreases. The images of atomic force microscopy show that when the sputtering Ar gas pressure is increased, both average grain size and the surface roughness are increased, which lead to the increase of perpendicular coercivity and the decrease of effective magnetic anisotropy constant.

**Key words:** sputtering pressure; nanomultilayers; perpendicular magnetic anisotropy; effective magnetic anisotropy constant

**PACC:** 7550S; 7570F

**Article ID:** 0253-4177(2005)S0-0065-05

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (No. 50301002)

Hwang Pol male, was born in 1964, PhD candidate. He is engaged in research on nano-magnetic thin film materials.

Received 22 October 2004, revised manuscript received 10 December 2004

©2005 Chinese Institute of Electronics