

高頑磁力 FePt-Si₃N₄ 顆粒狀磁性記錄薄膜之研製

計畫編號：NSC 89-2216-E-002-053

執行期限：89/8/1 - 90/7/31

主持人：郭博成 台灣大學材料研究所 教授

計畫參與人員：李昭德、吳汀溟、張倫耀、郭志明 台灣大學材料研究所

一. 中文摘要

以直流與射頻磁控共鍍 FePt 及 Si₃N₄ targets 製作顆粒狀 (Fe₅₀Pt₅₀)_{100-x}-(Si₃N₄)_x 薄膜，其中 $x = 0\sim 50$ vol. %，然後在真空中施以不同溫度的退火。探討薄膜中 Si₃N₄ 含量、膜厚及退火溫度對平行與垂直膜面之磁性質的影響。經 TEM 分析結果顯示，薄膜結構是由球狀 FePt 散布在非晶質 Si₃N₄ 基地內而成。FePt 晶粒尺寸隨退火溫度上升而增加，但隨 Si₃N₄ 含量增加而降低。其中 (FePt)₇₀-(Si₃N₄)₃₀ 薄膜經 750 °C、30 分鐘退火處理後，其平行膜面之抗磁力可達 11 kOe，角形比約 0.9。其晶粒之平均粒徑約為 40 nm。(FePt)-(Si₃N₄) 薄膜的飽和磁化和膜厚無關而和 Si₃N₄ 含量成反比，(FePt)-(Si₃N₄) 薄膜的頑磁力和磁硬化機制則和 Si₃N₄ 含量有關。

關鍵詞：磁控濺鍍、(Fe₅₀Pt₅₀)_{100-x}-Si₃N₄)_x 薄膜、磁性

Abstract

(Fe₅₀Pt₅₀)_{100-x}-(Si₃N₄)_x ($x = 0\sim 50$ vol. %) nanocomposite thin films are prepared by dc & rf magnetron co-sputtering of FePt and Si₃N₄ targets on silicon wafer substrates, then annealed in vacuum at various temperatures. The effects of Si₃N₄ volume fraction, film thickness, and annealing temperatures on the magnetic properties are investigated. Transmission electron microscopy analysis indicated that structurally the film is an amorphous Si₃N₄ matrix with spherical FePt particles dispersed in it. The particle size of FePt increases with the annealing temperature but decreases with increasing Si₃N₄ content.

Magnetization measurements indicated that maximum in-plane squareness and coercivity occurs at 30 vol.% of Si₃N₄ after annealing the film at 750 °C for 30 min. The in-plane coercivity can reach 11 kOe and the squareness about 0.9. The average particle size of FePt in this film is about 40 nm. Saturation magnetization of the FePt-Si₃N₄ film is independent of film thickness but inversely proportional to the Si₃N₄ volume fraction. Variation of the films' coercivity with film thickness is small. In contrast, the magnetic hardening mechanism and coercivity of the FePt-Si₃N₄ composite film are dependent on the Si₃N₄ volume fraction.

Keyword: magnetron sputtering, (Fe₅₀Pt₅₀)_{100-x}-(Si₃N₄)_x thin films, magnetic properties

二、計畫緣由與目的

在磁記錄領域，如何提昇磁記錄媒體之記錄密度長久以來一直是最重要的課題；而作為高記錄密度媒體之材料，則必需具有高的頑磁力 H_c 以及適當的殘餘磁化量 M_r。在各式各樣的磁記錄裝置中，硬式磁碟是應用在個人電腦以及工作站最普遍的周邊設備，也是市場最大的；而目前硬式磁碟中最普遍使用的記錄媒體則為 CoCrPtM (M= Ni, Ta, W) 系合金薄膜，其頑磁力 H_c > 2800 Oe (Oe 為磁場的單位)；但它們皆為金屬薄膜，在未來更高記錄密度需求下尚有以下之缺點：(1). 記錄媒體雜訊高，(2). 頑磁力太低，以致記錄密度很難提升。對於這些金屬薄膜而言，最明顯的問題在

於：位於磁區轉換區中的晶粒之間的磁交換耦合所產生的雜訊[1]。此外，如果我們想要增加薄膜的記錄密度，則其晶粒大小必須降低[2]，連續性金屬薄膜的晶粒之間因缺乏足夠的間隔，所以即使晶粒尺寸能下降至單磁區尺寸，也會因為晶粒之間的磁交換耦合過強，而導致雜訊過多以致讀取失敗，造成讀寫過程的不可信賴[3]。為了改善目前鈷基合金薄膜在未來更高記錄密度需求下，其頑磁力不足和媒體雜訊過高的缺點，本計畫使用具有獨立不連通的高頑磁力 FePt 粒子散佈在非磁性之非晶質 Si_3N_4 基地的顆粒狀薄膜來當做磁性記錄媒體。

以顆粒狀複合材料薄膜而言，由於磁性金屬顆粒被非磁性物質所包圍，所以產生與純金屬薄膜迥然不同的性質；通常其晶粒尺寸會隨著磁性相之含量的增加而變大，當晶粒尺寸大於單磁區粒子時薄膜的頑磁力將下降；不過磁性相含量太少的話，磁性顆粒尺寸將變小，也會使得薄膜的磁性熱穩定性變差，而在顆粒狀薄膜中被非磁性物質包圍而區隔的磁顆粒，其晶粒成長也會受到非磁性物質的侷限。

以濺鍍之顆粒狀磁性記錄薄膜而言，其製程主要分為兩種：一種是在初鍍時我們控制磁性顆粒的大小到所需要的大小即可，不過這種初鍍膜須有足夠高的頑磁力；另一種則是針對初鍍膜在退火處理時磁性晶粒的成長，而以非磁性物質的含量多寡來改變磁性晶粒在三度空間被包圍的程度，也就是調整磁性顆粒之間的距離，以及顆粒大小、形狀等等。在此我們採用 FePt 合金作為顆粒狀薄膜媒體中之磁性顆粒，乃因 FePt 合金擁有很高磁晶異向性常數 ($K_u \sim 7 \times 10^7 \text{ erg/cm}^3$)，且其 T_c 溫度高，穩定性佳[4]。

本計畫採用磁控濺鍍法來製作顆粒狀 FePt- Si_3N_4 薄膜，初鍍膜經過真空退火處理後，薄膜中之磁性相 FePt 從軟磁相 γ -FePt 轉變為具有高磁晶異向性

之硬磁相 γ_1 -FePt；非磁性相 Si_3N_4 則為非晶質。 γ_1 -FePt 擁有高磁化量，高頑磁力，抗腐蝕及化學穩定性 (chemical stability) 佳等特性；更因為薄膜中陶瓷絕緣體 Si_3N_4 對 FePt 磁性顆粒的保護，而一併獲得了耐磨耗 (wear resistance)，抗腐蝕，抗氧化等優點。

三、實驗方法

本實驗之試片製作是利用直流和射頻磁控濺鍍系統，在室溫下以表面自然氧化的 (111) 面指向之矽晶圓為基板並旋轉基板座以 FePt 複合靶和 Si_3N_4 燒結靶共鍍製作顆粒狀 $(\text{Fe}_{50}\text{Pt}_{50})_{100-x}-(\text{Si}_3\text{N}_4)_x$ ($x = 0 \sim 50\text{-vol.}\%$) 複合材料薄膜。FePt 複合靶是以高純度的鐵靶 (99.99%) 為底，貼上高純度的鉑片 (99.99%) 而成，絕緣物則採用高純度燒結 Si_3N_4 靶 (99.95%)，經由改變射頻功率以得到含 FePt 顆粒與不同 Si_3N_4 體積分率之薄膜組成。腔體先預抽至 5×10^{-7} Torr 高背景真空，然後通入高純度氬氣，氬氣壓力固定為 5 mTorr，再進行鍍膜。然後在真空中施以不同溫度的退火，退火步驟則是將薄膜放入石英管中抽真空到 1×10^{-6} Torr 做熱處理，然後以冰水淬火。退火溫度範圍 $300^\circ\text{C} \sim 900^\circ\text{C}$ ，退火時間 30 分鐘。

在常溫以 VSM 及 SQUID 測量薄膜的磁性質。以電子顯微鏡 (TEM) 觀察其微結構。薄膜之組成由 EDX 測定，以 AES (Auger Electron Spectroscopy) 分析薄膜之元素分布，膜厚則用 α -step 測定之。

四、結果與討論

圖 1 為室溫下初鍍之 $(\text{Fe}_{50}\text{Pt}_{50})_{100-x}-(\text{Si}_3\text{N}_4)_x$ 薄膜飽和磁化 M_s 、平行膜面抗磁力 $H_{c\parallel}$ 、垂直膜面抗磁力 $H_{c\perp}$ 和 Si_3N_4 含量的關係，其膜厚 δ 為 200 nm。圖中橫軸為薄膜中 Si_3N_4 所佔體積之百分比；縱軸左邊為薄膜單位體積之飽和磁化

量；空心圓為 FePt 相之飽和磁化量。實心圓為 (FePt)-(Si₃N₄) 薄膜之飽和磁化量。縱軸右邊為薄膜之抗磁力；空心矩形為垂直膜面方向之抗磁力、實心矩形為平行膜面方向之抗磁力。從圖中的實心圓線

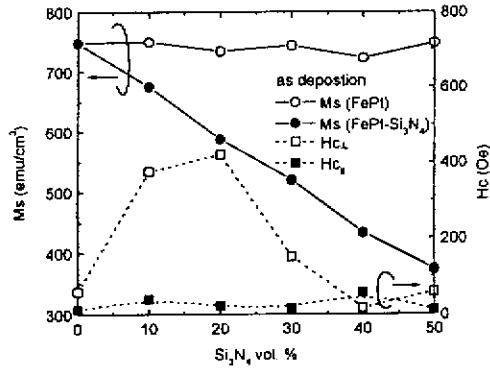


圖 1 初鍍之 (FePt)-(Si₃N₄) 薄膜在室溫之 Ms、Hc₁、Hc₂ 和 Si₃N₄ 體積分率的關係，其膜厚為 200 nm。

可以看出 (FePt)-(Si₃N₄) 薄膜之飽和磁化量是隨著 Si₃N₄ 含量之增加而降低，當 Si₃N₄ 體積分率等於 0-vol. % 時，薄膜的 Ms 值約為 750 emu/cm³，而當 Si₃N₄ 體積分率增加到 50-vol. % 時，薄膜的 Ms 值則降到約為 375 emu/cm³ (375 emu/cm³ 之飽和磁化量仍適合目前及未來磁阻式磁頭的讀取，因磁阻式磁頭需低 Mr、t 的記錄媒體，其中 t 為膜厚)。可知其 Ms 值是隨著 Si₃N₄ 體積分率的增加而下降，這是由於 Si₃N₄ 在此純粹扮演非磁性相而單純地稀釋了鐵磁性合金相之 Ms 的緣故，而圖 1 所顯示的空心圓 Ms 曲線已經扣除非磁性相的體積分率，還原成磁性相本質的磁化量，主要的用意是為了監視磁性相是否和非磁性相發生反應。如原先預期的，Si₃N₄ 的確沒有在共鍍時和 FePt 發生反應。Si₃N₄ 體積分率在 0-vol. % 和 50-vol. % 之間時，初鍍膜的 Hc₁ 隨 Si₃N₄ 體積分率的變化並不大，維持在 50 Oe 左右，而垂直膜面方向的抗磁力最低為 60 Oe、最高大約只有 420 Oe。不過可以看出 Si₃N₄ 體積分率在 10-vol. % 和 30-vol. % 之間時對初鍍膜的 Hc₁

有所影響，而在此範圍內 Hc₁ 均大幅低於 Hc₂。由此可知，Si₃N₄ 的加入雖然不影響磁性合金的本質磁化，卻影響垂直膜面方向的外稟性質如抗磁力，這有可能是 Si₃N₄ 和 FePt 介面間的內應變量變化所致。

我們利用穿透式電子顯微鏡來觀察 (FePt)-(Si₃N₄) 合金薄膜的顯微結構以分析 fcc 和 fct 之轉變過程。圖 2(a) 為 (FePt)₈₀-(Si₃N₄)₂₀ (括號外的數字表示體積分率百分比) 初鍍薄膜的 TEM 明視野照片，膜厚為 200 nm。可看出其結晶顆粒微細，大約 5 nm 左右，圖中之網狀結構是因為 Si₃N₄ 包圍在 FePt 晶粒周圍所致。而圖 2(b) 為其 TEM 電子繞射圖 (Selected Area Diffraction, SAD)。我們可以看到

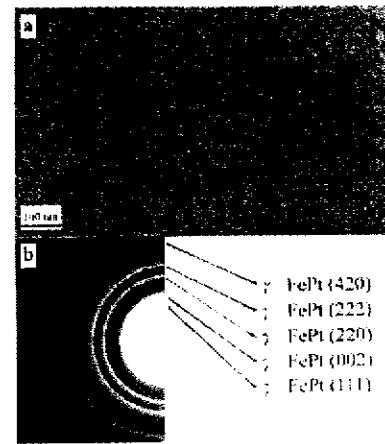


圖 2 初鍍 (FePt)₈₀-(Si₃N₄)₂₀ 薄膜的 TEM 明視野照片和電子繞射圖。(a) 為初鍍明視野照片，其中網狀結構是因為 Si₃N₄ 包圍在 FePt 晶粒周圍所致。(b) 為初鍍 TEM 電子繞射圖，可看出此膜為 fcc 結構之 γ -FePt 相。

有明顯的繞射環，這表示初鍍的薄膜已具有結晶狀態且為 γ -FePt 結構。此外，經由濺鍍純 Si₃N₄ 薄膜的 TEM 電子繞射圖的比對，我們確認 Si₃N₄ 於初鍍狀態為非晶質相。圖 2(b) 右邊為 (FePt)₈₀-(Si₃N₄)₂₀ 初鍍薄膜之 fcc γ -FePt 相的環狀繞射圖形的分析，最明顯的繞射環為 γ (111)，依序為 γ (002)、 γ (220)、 γ (222)、 γ (420)。因此薄膜的優選方向為 γ (111)。

經由 TEM 之電子繞射鑑定，初鍍膜的結構為 γ -FePt 相，此相在塊材時為軟磁性，但由於常溫濺鍍之薄膜有較大的內應力，使得薄膜有比塊材高的 H_c 值，尤其是 Pt 含量高的薄膜其內應力較大造成一些微裂縫(micro-cracks)。不過，在加入 Si_3N_4 的薄膜卻看不到微裂縫的存在，可見薄膜整體的淨內應力被非晶質相 Si_3N_4 吸收而大幅消滅。

在純 FePt 薄膜的 XRD 分析中，我們從 600 °C 下退火 30 分鐘厚以冰水淬火的試片可以發現明顯的超晶格繞射峰，可是在顆粒狀結構的試片中，我們卻發現有很大的不同。圖 3 為 $(FePt)_{70}-(Si_3N_4)_{30}$ 薄膜經不同退火溫度熱處理 30 分鐘後以冰水淬火之 XRD 繞射圖，膜厚為 200 nm。

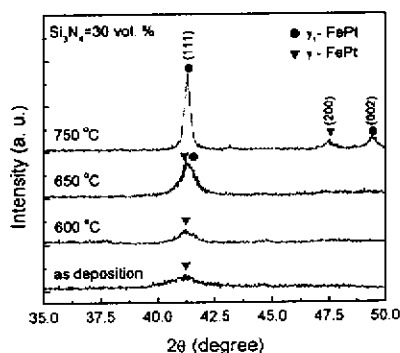


圖 3 $(FePt)_{70}-(Si_3N_4)_{30}$ 薄膜經過不同溫度退火 30 分鐘後之 x-ray 繞射圖，膜厚皆為 200 nm 且經冰水淬火。

我們可以看出 $(FePt)_{70}-(Si_3N_4)_{30}$ 薄膜在 600 °C 以下退火 30 分鐘後，經過 JCPDS 鑑定分析，並沒有發現明顯的超晶格繞射峰，其原因可能是由於 Si_3N_4 相包圍住晶粒並限制其生長而使得硬磁性的 fct γ_1 -FePt 結晶顆粒細且少量，無法用 x-ray 把其超晶格繞射峰解析出來。試片經過 750 °C 退火 30 分鐘後則可以明顯地看到超晶格之繞射峰，經由 JCPDS 鑑定分析，薄膜的結構為硬磁性的 fct γ_1 -FePt 結構。這是由於在此退火溫度下 γ -FePt 相可以完全轉變成 γ_1 -FePt 相，也就表示說 Si_3N_4 的添加會提高 γ -FePt $\rightarrow$ γ_1 -FePt

的相變態溫度。

圖 4(a)和圖 4(b)分別為四種不同 Si_3N_4 體積分率(vol. % = 0, 10, 30, 50) 之 $(FePt)-(Si_3N_4)$ 薄膜退火後以冰水淬火的 $H_{c||}$ 、 $H_{c\perp}$ 與退火溫度 T_{an} 之間的關係，其中退火時間 t_{an} 為 30 分鐘而膜厚為 200 nm。當 Si_3N_4 體積分率為 0-vol.% 時，在 600 °C 下退火後其 $H_{c||}$ 高達 10 kOe，之後隨著 T_{an} 增加而快速下降，當 T_{an} 高於

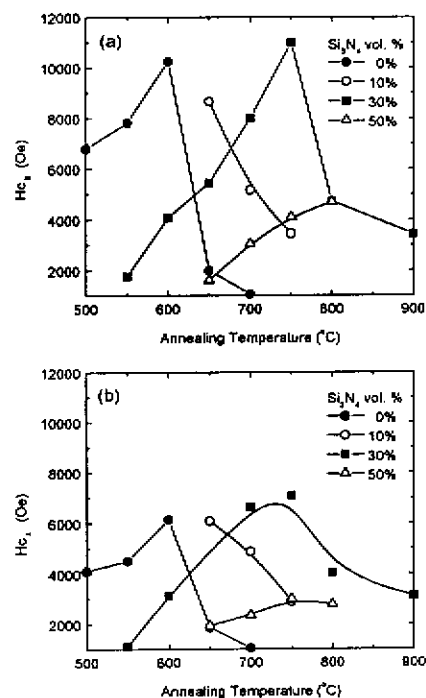


圖 4 (a) $(FePt)-(Si_3N_4)$ 薄膜(Si_3N_4 = 0, 10, 30, 50 vol. %)之 $H_{c||}$ 與退火溫度 T_{an} 的關係，(b) $(FePt)-(Si_3N_4)$ 薄膜之 $H_{c\perp}$ 與退火溫度 T_{an} 的關係。其中退火時間為 30 分鐘而膜厚為 200 nm。

650 °C 時，純 FePt 的 $H_{c||}$ 將低於 2 kOe，同時 M_s 值在退火溫度高於 600 °C 時就開始隨 T_{an} 的增加而降低，如圖 5 所示。這是因為 T_{an} 高於 600 °C 時，FePt 在高溫退火時會和矽基板起擴散化學反應的關係。反觀 $(FePt)_{70}-(Si_3N_4)_{30}$ 和 $(FePt)_{50}-(Si_3N_4)_{50}$ 薄膜的 M_s 值，卻要在退火溫度高於 800 °C 時才開始隨退火溫度的增加而降低，這是因為 $(FePt)-(Si_3N_4)$ 薄膜中

的 Si_3N_4 具有隔絕保護作用，所以比 FePt

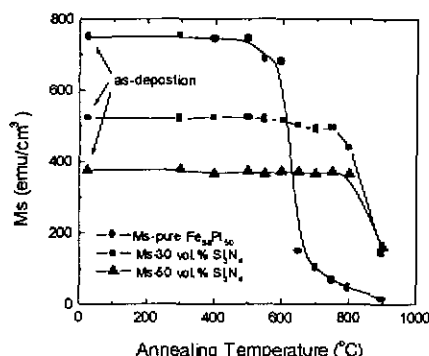


圖 5 退火後以冰水淬火之三種不同 Si_3N_4 體積分率(vol. % = 0, 30, 50)之 $(\text{FePt})-(\text{Si}_3\text{N}_4)$ 薄膜的 Ms 與退火溫度 T_{an} 之間的關係，膜厚皆為 200 nm 且經冰水淬火。

薄膜較能抵抗高溫的擴散化學反應，熱穩定性更佳。從圖 4(a) 中我們知道 $(\text{FePt})_{70}-(\text{Si}_3\text{N}_4)_{30}$ 薄膜之 $H_{c\parallel}$ 值在 T_{an} 高於 550°C 後，從 2 kOe 開始隨 T_{an} 的增加而快速增加，當 $T_{\text{an}} = 750^\circ\text{C}$ 時 $H_{c\parallel}$ 達到最大值約為 11 kOe，然後又隨退火溫度的提高而大幅衰減。在圖 4(b) 中 $(\text{FePt})_{70}-(\text{Si}_3\text{N}_4)_{30}$ 薄膜之 H_c 值也有像 $H_{c\parallel}$ 一般的趨勢， $H_{c\perp}$ 的最大值為 7 kOe，明顯地遠小於 $H_{c\parallel}$ 值。因此 $(\text{FePt})_{70}-(\text{Si}_3\text{N}_4)_{30}$ 薄膜之磁異向性平行於膜面方向。當 $T_{\text{an}} < 750^\circ\text{C}$ 時 $H_{c\parallel}$ 和 $H_{c\perp}$ 值會隨著退火溫度增加而增加，是因為軟磁性 γ -FePt 相轉變成具有極高磁晶異向性之硬磁性 γ_1 -FePt 相所致。當 $T_{\text{an}} > 750^\circ\text{C}$ 時 $H_{c\parallel}$ 和 $H_{c\perp}$ 值會隨著退火溫度增加而降低的原因則是由於 FePt 顆粒的成長以及 FePt 相和矽基板的擴散化學反應所致。大致說來，退火後的 $(\text{FePt})-(\text{Si}_3\text{N}_4)$ 薄膜之 $H_{c\parallel}$ 、 $H_{c\perp}$ 值是隨著 T_{an} 的增加而增加，在達到最大值之後又隨退火溫度的再升高而大幅降低。

從圖 4 我們也可以看到薄膜中 Si_3N_4 含量的增加會使得獲取最大抗磁力的退火溫度跟著提高。此外，我們也看到特定體積分率的 Si_3N_4 可以擴大高抗磁力存在的

退火溫度範圍。原本純 FePt 薄膜只有在 $500\sim 600^\circ\text{C}$ 之間退火 30 分鐘才有 3 kOe 以上的抗磁力，可是一旦加入 30-vol. % 的 Si_3N_4 後不但延遲起始溫度到 600°C ，也使高抗磁力存在的退火溫度範圍擴大成 $600\sim 900^\circ\text{C}$ 。

歸納起來， $(\text{FePt})_{70}-(\text{Si}_3\text{N}_4)_{30}$ 薄膜在 $T_{\text{an}} > 600^\circ\text{C}$ 時 $H_{c\parallel}$ 和 $H_{c\perp}$ 才開始隨 T_{an} 的增加而從 3 kOe 開始快速地增加，乃由於非晶質 Si_3N_4 延滯了 fcc γ_1 -FePt 相變態成 fct γ_1 -FePt 相之起始溫度的緣故，因為 fct γ_1 -FePt 相具有極高的磁晶異向性常數，若 fcc γ -FePt 相不能順利轉變成 fct γ_1 -FePt 相，抗磁力便無法大幅提高。

對於純 FePt 薄膜而言，由於初鍍 FePt 薄膜為連續性 γ -FePt 薄膜，其中包含了無數 γ_1 -FePt 相的成核點，而初鍍 $(\text{FePt})-(\text{Si}_3\text{N}_4)$ 薄膜卻是由不良熱導體的 Si_3N_4 包圍 γ -FePt 顆粒所構成，同樣在退火溫度 600°C 下作冰水淬火時，被包圍的 γ -FePt 顆粒無法完全轉變成 γ_1 -FePt，其 Si_3N_4 含量因此影響到退火 $(\text{FePt})-(\text{Si}_3\text{N}_4)$ 薄膜的硬磁程度。從圖 4(a) 我們可以看到非晶質 Si_3N_4 的添加可以提高 fcc γ -FePt 相變態成 fct γ_1 -FePt 相之起始溫度；不但如此，退火後 $(\text{FePt})-(\text{Si}_3\text{N}_4)$ 薄膜的抗磁力還可以大過純 FePt 薄膜，這是由於完全孤立的 FePt 顆粒之間的間隔恰當，又含有應力異向性對抗磁力的貢獻所致。當磁性相的分量被固定時，不只顆粒大小，連晶粒間距也會隨退火溫度升高而增加，雖然間距增加可以有效消除晶粒間交互耦合作用所帶來的媒體雜訊，可是伴隨而來的 FePt 晶粒成長則是會降低顆粒狀 $(\text{FePt})-(\text{Si}_3\text{N}_4)$ 薄膜的抗磁力。

圖 6(a) 為 $(\text{FePt})_{70}-(\text{Si}_3\text{N}_4)_{30}$ 薄膜經過 750°C 退火 30 分鐘後以冰水冷卻的 TEM 明視野照片，膜厚為 200 nm。我們可以發現它完全不同於 FePt 薄膜的狀態而有更明顯的顆粒狀結構，主要由 Si_3N_4 基地包圍住 FePt 顆粒所構成。此薄膜的 FePt 晶粒為規則球狀，晶粒大小經由計算大約

是 40 nm。圖 6(b) 為其 TEM 電子繞射圖 (Selected Area Diffraction, SAD)。

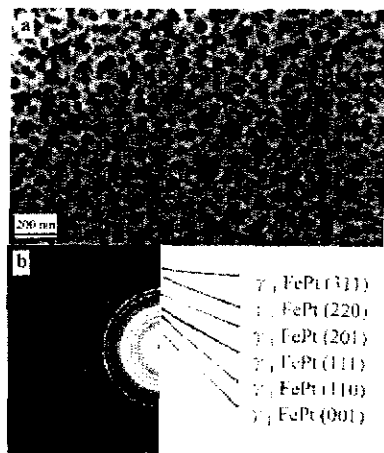


圖 6 (a) 經過 750°C, 30 分鐘退火後之 (FePt)₇₀-(Si₃N₄)₃₀ 薄膜的 TEM 明視野照片, (b) 為其 TEM 電子繞射圖, 可看出此膜為 fct 結構之 γ_1 -FePt 相圖。

我們可以看到有明顯的繞射環, 經由 TEM 選區繞射分析磁性顆粒, 發現有超晶格繞射峰生成, 為有序的 fct γ_1 -FePt 相。此外, 經由 JCPDS 的比對, 我們確認 Si₃N₄ 於退火後狀態仍然保持為非晶質相。

圖 7(a) 和圖 7(b) 分別為 FePt 在 600 °C 和 (FePt)₇₀-(Si₃N₄)₃₀ 在 750 °C 退火 30 分鐘後的 M-H 曲線, 外加磁場平行於膜面, 膜厚皆為 200 nm。值得注意的一點是, 由於 Si₃N₄ 在此純粹扮演非磁性相而單純地稀釋了鐵磁性合金相之 Ms 的緣故, 圖 7(b) 的磁化量 (520 emu/cm³) 為包含 30-vol. % 的 Si₃N₄, 所以相對於圖 7(a) 的磁化量 (780 emu/cm³), 顆粒狀薄膜的值顯著偏低, 若還原磁性相的本質磁化值, 兩者其實是一致的。在圖 7(a) 中, 純 FePt 薄膜之 M-H 曲線的雙肩形狀是由於殘留軟磁性 γ 相所致, 它來自於不完全的 $\gamma \rightarrow \gamma_1$ 相變態過程; 若薄膜中之磁性相完全為單相, 其 M-H 曲線將不會有雙肩形狀。由前面的討論我們知道 Si₃N₄ 的加入會延滯相變態起始溫度, 但對於最佳化 (完全轉變成 γ_1 -FePt 相) 的試片而言, Si₃N₄ 的加入大幅改善了 FePt 的雙肩現

象, 有可能是因為相變態起始溫度的提高加大了過冷度, 而使得相變態的驅動自由

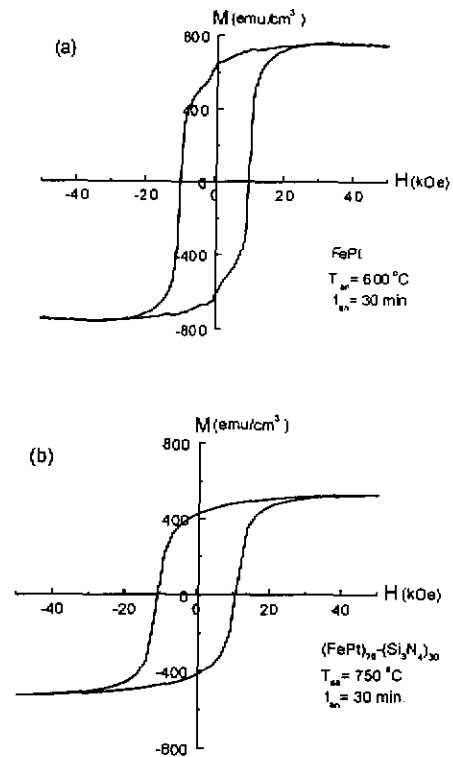


圖 7 退火後 (FePt)-(Si₃N₄) 薄膜的 M-H 磁滯曲線, (a) FePt 薄膜 600 °C 退火 30 分鐘, (b) (FePt)₇₀-(Si₃N₄)₃₀ 薄膜 750 °C 退火 30 分鐘, 兩者膜厚皆為 200 nm 且經冰水淬火, SQUID 外加磁場平行於膜面方向。

能差得以完全克服能障, 進一步使相變態完成度提高, 消除了原先 $\gamma \rightarrow \gamma_1$ 相之間的轉換不完全所殘留下來的軟磁 γ 相, 以至於我們在顆粒狀 (FePt)-(Si₃N₄) 薄膜的 M-H 曲線上看不到雙肩現象。

從 TEM 觀察我們發現 (FePt)-(Si₃N₄) 膜的晶粒大小只隨退火溫度的增加而小幅增加, 不像 FePt 薄膜一般容易長大。圖 V8 顯示各種不同 Si₃N₄ 含量的 (FePt)-(Si₃N₄) 膜的晶粒大小隨退火溫度變化的關係圖。這些試片的膜厚皆為 10 nm, 在退火後都以冰水淬火。所有初鍍膜的晶粒皆小於 5 nm, 當退火溫度在 550~600 °C 的範圍內時, (FePt)₈₀-(Si₃N₄)₂₀ 薄膜之平均晶粒尺

寸在 20 nm 以下；當退火溫度在 600~650 °C 的範圍內時 $(\text{FePt})_{70}-(\text{Si}_3\text{N}_4)_{30}$ 薄膜之平均晶粒大小則在 30 nm 以下，但純 FePt

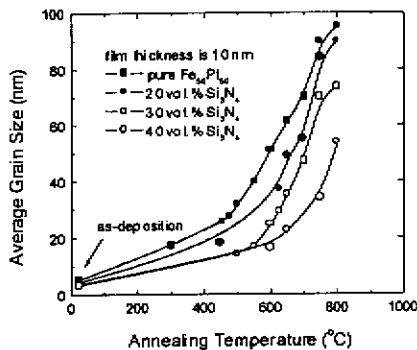


圖 8 各種不同 Si_3N_4 含量的 $(\text{FePt})-(\text{Si}_3\text{N}_4)$ 膜的晶粒大小隨退火溫度變化的關係圖。這些試片的膜厚皆為 10 nm，在退火後都以冰水淬火。

合金薄膜的晶粒大小則界於 50 nm 和 70 nm 之間。當 $T_{\text{an}} = 750^\circ\text{C}$ 時，純 FePt 薄膜內的 FePt 顆粒大小為 90 nm，而此時的 $(\text{FePt})_{70}-(\text{Si}_3\text{N}_4)_{30}$ 膜內的 FePt 晶粒只有 70 nm。我們可以看到，在同樣的退火溫度下， Si_3N_4 含量越多 FePt 顆粒大小越小。這是由於 FePt 顆粒受到周圍的 Si_3N_4 基地限制其成長所致，可能是由於在大量 Si_3N_4 包圍之下，磁性顆粒被具有穩定鍵結的絕緣物侷限，而且被隔離分散之後沒有足夠的量用於晶粒成長。因此 Si_3N_4 加入的影響不只是改變了 FePt 薄膜的磁硬化機制，也限制磁性晶粒在退火過程中的成長。

五、結論

本研究探討了不同膜厚的 $(\text{FePt})_{100-x}-(\text{Si}_3\text{N}_4)_x$ 共鍍薄膜 ($x = 0\sim 50\text{-vol.}\%$) 在不同 Si_3N_4 體積分率下做退火熱處理後的磁性質與微結構。 $(\text{FePt})-(\text{Si}_3\text{N}_4)$ 薄膜的飽和磁化量隨著 Si_3N_4 含量的增加而呈線性關係降低。經適當的退火並且以冰水淬火之後，具有高磁晶異向性的 FePt 顆粒被非晶質 Si_3N_4 包圍與隔絕，形成顆粒狀

硬磁性薄膜。薄膜的抗磁力和平均晶粒大小會隨著退火溫度增加而增加；但在相同的退火溫度下則會因為 Si_3N_4 含量的增加而減少。簡言之，改變退火溫度和膜內 Si_3N_4 的含量可以控制 $(\text{FePt})-(\text{Si}_3\text{N}_4)$ 薄膜的抗磁力和平均晶粒大小。厚度為 200 nm 的 $(\text{FePt})_{70}-(\text{Si}_3\text{N}_4)_{30}$ 薄膜在 750°C 真空退火 30 分鐘後其平行膜面的抗磁力高達 11 kOe，從 TEM 電子繞射圖的分析可知此退火後的薄膜中的磁性顆粒為 fct $\gamma_1\text{-FePt}$ 相，而從 TEM 明視野照片計算得到的平均晶粒大小約為 40 nm。此薄膜的 M_s 值約為 530 emu/cm³，而 $(BH)_{\text{max}}$ 值約為 14 MGOe。

六、參考文獻

- [1] Jian-Gang Zhu, "Transition noise properties in longitudinal thin film media", IEEE Trans. Magn. Vol.29, no.1, pp.195-200, (1993) .
- [2] D. N. Lambeth, E. M. T. Velu, G. H. Bellesis, L. L. Lee, and D. E. Laughlin, "Media for 10 Gb/in² hard disk storage: Issues and status" J. Appl. Phys., 78(8), pp.4496-4501, (1996) .
- [3] E. I. Kondorsky, "On the stability of certain magnetic modes in fine ferromagnetic particles", IEEE Trans. Magn. Vol. 15, no.5, pp.1209- 1214, (1986) .
- [4] M. Watanabe, T. Nakayama, K. Watanabe, T. Hirayama and A. Tonomura, "Microstructure and magnetic properties of high-coercive Fe-Pt alloy thin films", Mater. Trans., JIM. 37, pp.489-493, (1996).