



**HAL**  
open science

# Propriétés magnétiques et structurales de multicouches Fe/Ti

A. Fnidiki, J. Juraszek, J. Teillet, M. Kaabouchi, C. Sella

► **To cite this version:**

A. Fnidiki, J. Juraszek, J. Teillet, M. Kaabouchi, C. Sella. Propriétés magnétiques et structurales de multicouches Fe/Ti. Journal de Physique IV Proceedings, 1996, 06 (C7), pp.C7-167-C7-172. 10.1051/jp4:1996720 . jpa-00254508

**HAL Id: jpa-00254508**

**<https://hal.science/jpa-00254508>**

Submitted on 4 Feb 2008

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

## Propriétés magnétiques et structurales de multicouches Fe/Ti

A. Fnidiki, J. Juraszek, J. Teillet, M. Kaabouchi\*,\*\* et C. Sella\*

*LMA, URA 808 du CNRS, Faculté des Sciences de Rouen, 76821 Mont-Saint-Aignan cedex, France*

*\* CNRS, Laboratoire de Magnétisme et d'Optique, 92195 Meudon Bellevue, France*

*\*\*\* Faculté des Sciences de Fès, Maroc*

**Résumé :** Deux séries de multicouches Fe/Ti avec des épaisseurs de Ti fixées (série 1 :  $e_{Ti} = 1\text{nm}$  ; série 2 :  $e_{Ti} = 2\text{nm}$ ) et des épaisseurs de fer variables ( $1\text{nm} \leq e_{Fe} \leq 6\text{nm}$ ) ont été déposées par pulvérisation cathodique triode et ont été étudiées par spectrométrie Mössbauer, par diffraction de rayons X, par diffraction électronique et par mesure d'aimantation. On observe en général une zone de diffusion interfaciale de l'ordre de  $1\text{nm}$  et pour les faibles épaisseurs de fer, la multicouche apparaît comme un alliage amorphe FeTi. Lorsque l'épaisseur de fer augmente, la cristallisation du Fe- $\alpha$  apparaît au centre des couches de fer et le champ hyperfin moyen croît avec  $e_{Fe}$ . Pour la série 1 ( $e_{Ti} = 1\text{nm}$ ), une anisotropie magnétique perpendiculaire apparaît pour certaines épaisseurs de fer ; tandis que pour la série 2 ( $e_{Ti} = 2\text{nm}$ ), l'anisotropie magnétique reste planaire.

### 1. INTRODUCTION

Au cours de ces dernières années, de nombreuses recherches ont été faites sur les multicouches magnétiques en vue de leur utilisation comme support d'enregistrement ou comme tête de lecture ou d'écriture. Les multicouches magnétiques présentent de nouvelles propriétés magnétiques et magnéto-optiques, différentes de celles connues pour les matériaux massifs, ces propriétés sont dues essentiellement à la stratification du matériau et dépendent de la périodicité de l'empilement [1].

Les multicouches métal de transition (Fe)/métal non magnétique (Ti) constituent des matériaux prometteurs pour leur utilisation comme miroir à neutrons ou à rayons X. La qualité de ces miroirs est très sensible aux phénomènes de diffusion intercalaire. Le but de ce travail est de corrélérer les propriétés magnétiques de ces multicouches aux propriétés structurales de leurs interfaces. Deux séries de multicouches Fe/Ti ont été étudiées par Spectrométrie Mössbauer du  $^{57}\text{Fe}$  par Electron de Conversion (CEMS) qui permet d'obtenir des informations locales sur l'état structural et les propriétés magnétiques (texture de spin, champ hyperfin) du sous-réseau fer. Cette étude est couplée à une analyse structurale effectuée par diffraction de rayons X aux grands angles et diffraction électronique, et à une analyse magnétique par mesure d'aimantation globale.

### 2. TECHNIQUES EXPERIMENTALES

Deux séries de multicouches Fe/Ti avec des épaisseurs de Ti fixées (série 1 :  $e_{Ti} = 1\text{nm}$  ; série 2 :  $e_{Ti} = 2\text{nm}$ ) et des épaisseurs de fer variables ( $1\text{nm} \leq e_{Fe} \leq 6\text{nm}$ ) ont été déposées par pulvérisation cathodique triode sur un substrat de verre à 300K. Afin de prévenir une oxydation ou une corrosion éventuelle des échantillons, l'empilement Fe/Ti a été systématiquement recouvert de 10nm de Ti. Les multicouches pulvérisées possèdent un nombre de périodes  $n$  variant de 10 à 120. La période  $\Lambda = e_{Fe} + e_{Ti}$  a été contrôlée par

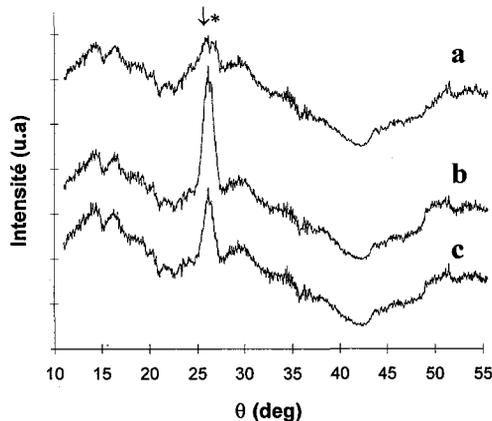
réflectivité de rayons X aux petits angles. L'investigation de l'état structural global des échantillons a été effectuée par diffraction de rayons X aux grands angles utilisant un tube de rayons X à anticathode de cobalt monochromatique ( $\lambda_{\text{Co-K}\alpha} = 0,1790\text{nm}$ ). Les spectres Mössbauer par réflexion (CEMS) à température ambiante, ont été enregistrés à l'aide d'un spectromètre conventionnel équipé d'un compteur proportionnel hélium/méthane et utilisant une source de  $^{57}\text{Co}$  dans une matrice de rhodium. Les échantillons sont placés perpendiculairement au rayonnement  $\gamma$  incident. Les spectres sont ajustés par une méthode de moindres carrés, utilisant la méthode de l'histogramme relative à des distributions discrètes de monocristal de même largeur. Les déplacements isomériques sont relatifs au fer  $\alpha$  à température ambiante.

Les mesures d'aimantation ont été réalisées à l'aide d'un magnétomètre à échantillon vibrant, en appliquant un champ extérieur parallèle à la surface des échantillons étudiées.

### 3.RESULTATS ET DISCUSSION

#### 3.1 Diffraction de rayons X aux grands angles et diffraction électronique

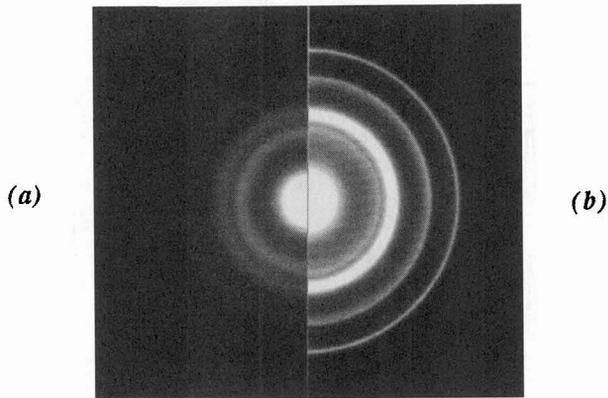
Les analyses par diffraction de rayons X aux grands angles montrent que la structure des multicouches est peu sensible à l'épaisseur de Ti pour les deux séries (série 1 :  $e_{\text{Ti}} = 1\text{nm}$  ; série 2 :  $e_{\text{Ti}} = 2\text{nm}$ ). La figure 1 montre les spectres de diffraction de rayons X pour la série 2 des multicouches Fe/Ti avec des épaisseurs  $e_{\text{Fe}}$  de fer variables ( $e_{\text{Fe}} = 2, 4, 6\text{nm}$ ).



**Figure 1:** Spectres de diffraction de rayons X aux grands angles pour les multicouches de la série 2 ( $e_{\text{Ti}}=2\text{nm}$ ). (a):  $e_{\text{Fe}}=2\text{ nm}$ , (b):  $e_{\text{Fe}}=4\text{ nm}$  et (c):  $e_{\text{Fe}}=6\text{ nm}$ .  $\downarrow$ :  $\alpha$ -Fe; \*:  $\text{Fe}_2\text{Ti}$

Quelque soit l'épaisseur de fer, on observe seulement un pic large entre  $\theta = 25^\circ$  et  $28^\circ$  pour la multicouche. Les autres pics proviennent du substrat de verre. Pour les faibles épaisseurs de fer, ce pic large est typique d'une structure désordonnée où les environnements structuraux sont très distribués. Il présente deux contributions larges autour de  $\theta = 26^\circ$  et  $\theta = 27^\circ$  correspondant respectivement au fer  $\alpha$  désordonné et à un alliage amorphe de composition moyenne  $\text{Fe}_2\text{Ti}$ . Lorsque l'épaisseur de fer augmente, les deux contributions s'affinent indiquant l'apparition du fer cristallin aux centres des couches de fer et une homogénéisation de la structure amorphe de  $\text{Fe}_2\text{Ti}$ . L'intensité de la raie du fer pour  $e_{\text{Fe}} = 6\text{ nm}$  (13 périodes)

est plus faible que pour  $e_{Fe} = 4$  nm (30 périodes). Ceci est probablement dû à une épaisseur totale de fer plus faible.



**Figure 2:** Diagramme de diffraction électronique de multicouches Fe/Ti. (a):  $e_{Ti}=e_{Fe}=1$  nm, (b):  $e_{Ti}=e_{Fe}=6$  nm

La diffraction électronique par transmission confirme les résultats de la diffraction de rayons X aux grands angles. L'absence de substrat permet de visualiser beaucoup mieux la structure amorphe de l'alliage FeTi interfacial qui domine dans les multicouches de faible période ( $e_{Ti}=e_{Fe}=1$  nm) (fig 2-a). Dans les multicouches de période plus importante ( $e_{Ti}=e_{Fe}=6$  nm), cette phase amorphe coexiste avec le fer (bcc) et le titane (fcc) (fig 2-b).

### 3.2 Spectrométrie Mössbauer et mesures d'aimantation à 300K

Les figures 3 et 4 montrent respectivement les spectres Mössbauer et les distributions de champ hyperfins  $P[B_{hf}]$  de la série 1 ( $e_{Ti} = 1$  nm avec  $e_{Fe} = 1, 2, 3, 6$  nm) et de la série 2 ( $e_{Ti} = 2$  nm avec  $e_{Fe} = 2, 4, 6$  nm).

Le spectre Mössbauer de la multicouche 1nm Ti/1nm Fe (fig 3-a) se présente comme un doublet paramagnétique symétrique avec des raies larges. La largeur des raies déduite de l'ajustement ( $\Gamma = 0,6$  mm/s) est très supérieure à la largeur naturelle ( $\sim 0,18$  mm/s) et indique une grande variété des environnements autour des sites de fer. De ce fait, le spectre a été ajusté avec une distribution d'effets quadripolaires  $P[SQ]$  (fig 3-a) entre 0 et 2 mm/s. Les valeurs moyennes du déplacement isomérique  $\langle\delta\rangle$  et de l'effet quadripolaire sont respectivement 0,15 mm/s et 0,32 mm/s. Ces valeurs sont proches de celles obtenues pour l'alliage amorphe  $Fe_2Ti$  [2, 3]. Ce résultat indique que la multicouche considérée est un alliage amorphe et que la zone de diffusion interfaciale est de l'ordre de 1 nm.

Le spectre de la multicouche 2 nm Ti / 2 nm Fe (fig 4-a) est la somme de 2 contributions: un doublet large paramagnétique ( $\langle SQ \rangle = 0,285$  mm/s) caractéristique de l'alliage amorphe  $Fe_2Ti$  qui est attribué aux interfaces de la multicouche et un sextuplet élargi caractéristique d'une structure désordonnée cristallographiquement dont les paramètres hyperfins sont proches du fer métallique ( $\delta=0$ mm/s et  $B_{hf} \approx 29$  T). Les intensités relatives de ces deux contributions sont respectivement 76% et 24% (tableau 1). L'angle  $\langle\beta\rangle$  moyen entre le rayonnement incident (perpendiculaire au plan de l'échantillon) et le champ hyperfin est de l'ordre de  $80^\circ$  indiquant une anisotropie parallèle au plan de la multicouche. Cependant, compte-tenu de la faible intensité de cette contribution, la précision sur les paramètres hyperfins  $B_{hf}$  et  $\beta$  est faible.

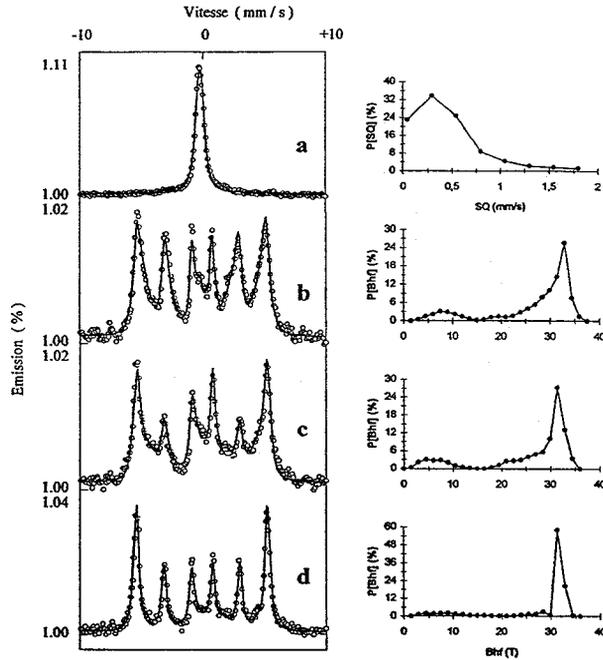


Figure 3: Spectres Mössbauer et distributions de champs hyperfins obtenus à 300 K des multicouches de la série 1 ( $e_{Ti} = 1$  nm). (a):  $e_{Fe} = 1$  nm, (b):  $e_{Fe} = 2$  nm, (c):  $e_{Fe} = 3$  nm, (d):  $e_{Fe} = 6$  nm.

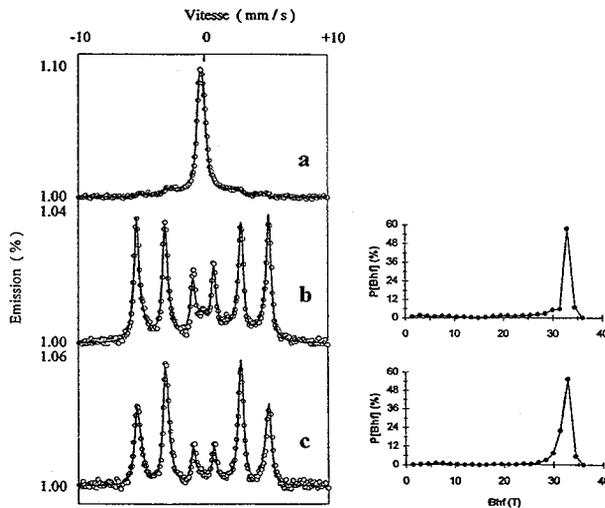


Figure 4: Spectres Mössbauer et distributions de champs hyperfins obtenus à 300 K des multicouches de la série 2 ( $e_{Ti} = 2$  nm). (a):  $e_{Fe} = 2$  nm, (b):  $e_{Fe} = 4$  nm, (c):  $e_{Fe} = 6$  nm.

Pour ( $e_{Ti} = 1$  nm;  $e_{Fe} \geq 2$  nm) et ( $e_{Ti} = 2$  nm;  $e_{Fe} \geq 4$  nm), les spectres Mössbauer présentent deux composantes: un sextuplet caractéristique du fer  $\alpha$  métallique ( $\delta = 0$  mm/s et  $B_{hf} = 33$  T) et une composante large attribuée aux atomes de fer proches des interfaces.

La dissymétrie des spectres, liée à la distribution des environnements des atomes de fer, conduit à une distribution conjointe du déplacement isomérique et du champ hyperfin.

Sur les distributions de champs hyperfins  $P[B_{hf}]$ , la présence du pic centré sur 33 T est en accord avec les résultats de diffraction de rayons X aux grands angles et indique que l'épaisseur des couches est suffisante pour qu'apparaisse du fer cristallin au centre des couches de fer. Les contributions de  $P[B_{hf}]$  à bas champs sont dues à l'interdiffusion du Fe et du Ti conduisant à la formation de l'alliage amorphe  $Fe_2Ti$  aux interfaces des multicouches.

Les contributions de  $P[B_{hf}]$  qui présentent un champ hyperfin proche du fer  $\alpha$  peuvent provenir du fer cristallin perturbé par l'interface.

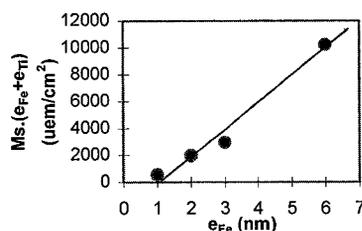
L'intensité relative de la contribution du fer cristallin  $\alpha$  augmente avec  $e_{Fe}$  (tableau 1) et conduit à une augmentation de champ hyperfin moyen avec  $e_{Fe}$ .

**Tableau 1:** Paramètres hyperfins moyens à 300 K déduits des ajustements des spectres des multicouches Fe/Ti. n est le nombre de périodes. <sup>(1)</sup>: relatif à la contribution magnétique.

$e_{Ti}$ (nm)	$e_{Fe}$ (nm)	n	% $\alpha$ -Fe	$\langle SQ \rangle$ (mm/s)	$\langle B_{hf} \rangle$ (T)	$\langle \beta \rangle$ (deg)
1	1	60	-	0.32	-	-
1	2	40	47		$27.1 \pm 0.3$	$52 \pm 5$
1	3	30	52		$28.2 \pm 0.3$	$40 \pm 5$
1	6	20	81		$29.6 \pm 0.3$	$44 \pm 5$
2	2	60	24		$28.9 \pm 0.3$ <sup>(1)</sup>	$78 \pm 10$ <sup>(1)</sup>
2	4	30	72		$28.4 \pm 0.3$	$60 \pm 5$
2	6	13	78		$30.5 \pm 0.3$	$80 \pm 5$

A la température ambiante, l'anisotropie magnétique peut être déduite des intensités relatives des raies 2 et 5 des spectres CEMS. Pour ( $e_{Ti}=2$  nm;  $e_{Fe} \geq 4$  nm), l'angle Mössbauer  $\langle \beta \rangle$  augmente avec  $e_{Fe}$  en accord avec l'augmentation du pourcentage du fer cristallin au centre des couches dont le champ démagnétisant impose une anisotropie magnétique parallèle au plan des couches.

Pour la série 1 ( $e_{Ti}=1$  nm;  $e_{Fe} \geq 2$  nm) une anisotropie magnétique plutôt perpendiculaire apparaît pour certaines épaisseurs de fer (tableau 1) en accord avec des résultats antérieurs [4]. L'origine de cette anisotropie perpendiculaire n'est pas encore élucidée et demande des investigations complémentaires.



Variation de  $Ms \cdot (e_{Fe} + e_{Ti})$  en fonction de  $e_{Fe}$  pour les multicouches de la série 1 ( $e_{Ti}=1$  nm).

La figure 5 montre le produit de l'aimantation par la période de la multicouche. Il varie linéairement avec l'épaisseur de fer et s'annule au voisinage de 1nm qui correspond à

l'épaisseur calculée de l'interface en accord avec le fait que l'interface  $\text{Fe}_2\text{Ti}$  est non magnétique.

### **Remerciements.**

Les auteurs tiennent à remercier A. Gibaud (Université du Maine) pour les mesures de diffraction de rayons X aux petits angles.

### **Références**

- [1] B.Rodmacq, J.Hillairet, J.Laugier and A.Chamberod, J.Phys. : Condens.Matter 2 (1990) 95-108
- [2] Y.Nakamura, K.Sumiyama and H.Ezawa, Hyperfine Interactions 27 (1986) 361-364
- [3] J.Balogh, B.Rodmacq and A.Chamberod, Solid State Communications, vol.66, No.2, (1988)143-147
- [4] M.S.Liu, E.Y.Jiang, Z.J.Wang, X.X.Zhang and Y.G.Liu, J.Magn.Magn.Matter.140-144 (1995) 537-538