

ELABORATION ET CARACTERISATION DE SUPER-RESEAUX Fe/Ag

Résumé

Des super-réseaux Fe/Ag ont été déposés sur des substrats MgO(001) par la technique d'épithaxie par jet moléculaire (MBE) sous un vide de 10^{-10} Torr. L'analyse in-situ à l'aide de la diffraction d'électrons RHEED a montré que les couches de fer déposées sur MgO(001) croissent suivant l'orientation <110> par rapport à la direction <100> du substrat et que les couches d'argent croissent sur Fe suivant la relation épithaxiale Ag(001)<100> // Fe(001)<110>.

Mots clés: Super-réseau, fer, argent, épithaxie, RHEED.

Abstract

Fe/Ag superlattices have been grown on MgO(001) substrates by molecular beam epitaxy (MBE) under a high vacuum (10^{-10} Torr). The in-situ analysis by means of Reflection High-Energy Electron Diffraction (RHEED) shows that the Fe layers deposited on MgO(001) grow along the <110> orientation with the respect to the substrate <100> direction, and the Ag layers grow on Fe following the epitaxial relation Ag(001)<100> // Fe(001)<110>.

Key words: superlattice, iron, silver, epitaxy, RHEED.

F. CHEMAM
R. HALIMI
A. BOUABELLOU
M.-F. MOSBAH

Unité de Recherche de Physique
des Matériaux et Applications
Université Mentouri
Constantine (Algérie)

ملخص

تم تحضير النظام المتعدد الرقائق المتناوبة Fe/Ag بواسطة الترسيب الموجه بالقذف الجزئي على مساند MgO(001) تحت فراغ 10^{-10} تور. بينت التحليل داخل غرفة الترسيب بواسطة الانعراج الالكتروني ان شرائح الحديد المرسية على MgO(001) تنمو في الاتجاه <110> بالنسبة للاتجاه [110] للمسند وان شرائح الفضة تنمو على الحديد حسب علاقة التبلور الموجه Ag(01)<001> // Fe(001)<110>.

الكلمات المفتاحية: الرقائق المتناوبة المتعددة، الحديد، الفضة، الترسيب الموجه، تقنية RHEED.

Les multicouches et les super-réseaux magnétiques constituent actuellement une nouvelle classe de matériaux utilisés principalement pour le stockage magnétique de l'information [1-5]. Depuis une douzaine d'années, leur étude a connu un essor considérable grâce au développement important des techniques de préparation sous ultra-vide et de caractérisation.

Ces structures artificielles sont obtenues en déposant alternativement des couches de métaux magnétiques et non magnétiques sur un substrat. Les multicouches sont généralement polycristallines et obtenues par pulvérisation cathodique. Cependant, les super-réseaux représentent une structure composée de couches monocristallines alternées avec une relation épithaxiale bien définie entre elles, et sont obtenus par épithaxie à jet moléculaire (MBE) [6-7].

Dans ce travail, nous présentons les résultats d'élaboration et de caractérisation in-situ par RHEED de super-réseaux Fe/Ag déposés sur un substrat monocristallin MgO(001).

ELABORATION DES ECHANTILLONS

Choix et préparation du substrat

La croissance des multicouches magnétiques métalliques Fe/Ag a été réalisée sur des substrats MgO (001) monocristallins. Le choix du substrat MgO est surtout motivé par sa préparation simple avant l'épithaxie des métaux et par le fait qu'il présente un bon accord paramétrique avec le fer et l'argent (Tab. 1).

Les substrats MgO sont des monocristaux commercialisés de dimensions $15 \times 15 \text{ mm}^2$ et polis sur la face (001). Après nettoyage au propanol-2 et un séchage à l'azote gazeux, ils sont mis à l'aide d'un support en molybdène dans la chambre d'introduction où ils subissent un traitement thermique à une température de 520°C pendant vingt minutes puis un refroidissement jusqu'à la température ambiante sous

un vide de 10^{-6} Torr. Ce traitement est effectué dans le but de chasser les impuretés.

La figure 1 montre les diagrammes RHEED de la surface de MgO, avant l'épitaxie des métaux, qui témoignent d'un bon état cristallin de la surface de départ. Il faut noter que la diffraction RHEED sur le substrat MgO nu est difficile à réaliser à cause d'effets de charge, liés au caractère isolant de MgO.

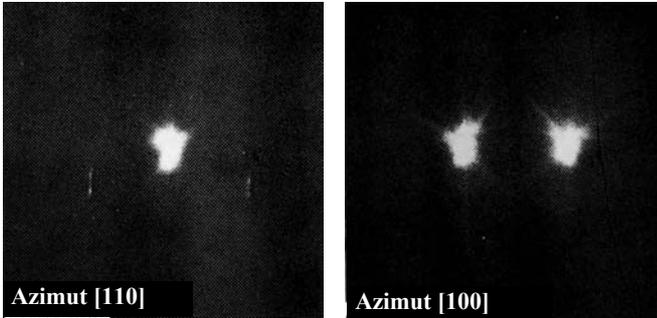


Figure 1: Diagrammes RHEED du substrat MgO(001) avant l'épitaxie des métaux.

Elaboration des super-réseaux

Après traitement thermique, les substrats MgO (001) sont introduits dans la chambre de croissance du système (MBE). Les couches de fer sont évaporées par bombardement électronique (tension 10.6 kV et courant 1.7 A), tandis que celles de l'argent sont condensées par effet Joule. Ces couches épitaxiées sont obtenues à partir de deux sources de métaux Fe et Ag de pureté 99.99%. Le processus de croissance des multicouches Fe/Ag sur MgO est piloté par un micro-ordinateur.

Les échantillons Fe/Ag, de vingt périodes chacun, sont préparés sous ultra-vide (10^{-10} Torr) avec des vitesses de croissance de Fe et Ag égales à 0.6Å/s et 1.3Å/s respectivement. Les couches de fer et d'argent sont déposées alternativement sur les substrats MgO qui sont maintenus à la température ambiante. Les épaisseurs des films (15Å pour une couche Fe, 55Å pour une couche Ag) sont contrôlées à l'aide d'un oscillateur à cristal de quartz.

Substrat	MgO	NaCl a = 4.2 Å	Accords paramétriques
	Ag	CFC a = 4.085 Å	Ag / MgO $\Rightarrow \Delta a / a = -2.74 \%$ Ag / Fe $a_{Ag} / 2^{1/2} = 2.889 \text{Å}$ $\Rightarrow \Delta a / a = 0.786 \%$
	Fe	CC a = 2.866 Å	Fe / MgO $a_{Fe} * 2^{1/2} = 4.053 \text{Å}$ $\Rightarrow \Delta a / a = -3.5 \%$ Fe / Ag $\Rightarrow \Delta a / a = -0.78 \%$

Tableau: Accords paramétriques des éléments Fe, Ag et le substrat MgO.

CARACTERISATION PAR RHEED

L'étude de la croissance de la première couche métallique est une étape importante puisqu'elle permet de déterminer la façon d'initier la croissance du super-réseau. On cherche donc à réaliser une première couche métallique épitaxiée sur le substrat présentant une rugosité de surface minimale.

Le choix du substrat et des métaux constituant la multicouche (Fe et Ag dans notre cas) exige des désaccords paramétriques suffisamment faibles. D'après le tableau, il apparaît clairement qu'en déposant Fe et Ag sur des substrats MgO (001) monocristallins, les désaccords paramétriques n'excèdent pas 4%.

Fer sur MgO (001)

Nous avons commencé par déposer le fer en premier sur MgO (001), étant donné que la croissance de Fe sur MgO est aisément reproductible et peu dépendante des conditions de croissance. Par ailleurs, le dépôt de Ag sur MgO (001) présente un problème majeur qui est la difficulté à reproduire l'épitaxie d'une façon systématique. Le schéma de la structure générale des super-réseaux Fe/Ag est illustré sur la figure 2.

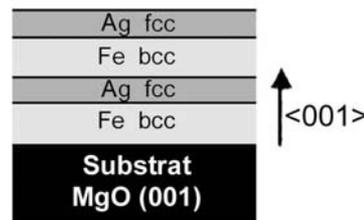
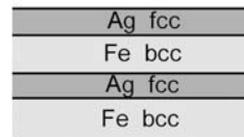
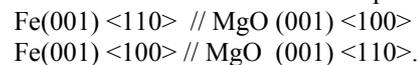


Figure 2: Schéma des super-réseaux Fe bcc (001)/ Ag fcc (001).

ce du fer sur MgO (001),
ème relation épitaxiale:



Cette relation épitaxiale correspond au désaccord paramétrique minimum entre la maille (001) du fer et celle de MgO (Tableau), ce qui veut dire que c'est la minimisation du désaccord paramétrique qui régit l'épitaxie. La figure 3 illustre cette relation épitaxiale.

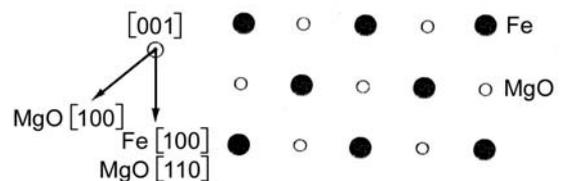


Figure 3: Illustration de la relation épitaxiale $Fe(001) \langle 100 \rangle // MgO(001) \langle 110 \rangle$.

La figure 4 montre les diagrammes de diffraction RHEED observés pendant la croissance de la première couche de fer sur MgO (001). Ces clichés de diffraction pris au début de la croissance sont constitués de tâches larges (tâches de volume) qui attestent d'un mode de croissance plutôt tridimensionnel-3D (mécanisme Volmer-Weber [8]).

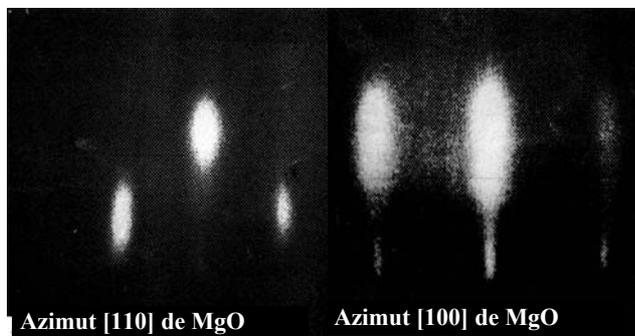


Figure 4: Diagrammes RHEED observés pendant la croissance du fer sur MgO(001).

Ces diagrammes témoignent d'un bon état cristallin et montrent que la première couche de fer s'épitaxie suivant l'orientation $\langle 110 \rangle$, orientation conservée tout le long de la croissance, par rapport à l'azimut = direction [100] de MgO(001). La relation épitaxiale donnée plus haut est déterminée à partir des figures 1 et 4. Cette relation correspond à une rotation de 45° de la maille cubique centrée du fer par rapport à la maille cubique à faces centrées de MgO.

Ag sur Fe/MgO(001)

L'étude de la croissance de la première couche d'argent sur la première couche de fer déjà déposée sur MgO(001) a montré une épitaxie suivant l'orientation $\langle 001 \rangle$ et une maille d'argent tournée de 45° par rapport à celle du fer. La relation épitaxiale est donc la suivante:

$$\text{Ag } (001) \langle 100 \rangle // \text{Fe } (001) \langle 110 \rangle$$

Cette relation correspond également à un désaccord paramétrique minimum entre Ag et Fe (Tableau).

La figure 5 illustre des diagrammes RHEED enregistrés pendant la croissance de l'argent sur une couche de fer. Ces clichés, indiquant la bonne cristallinité du film d'argent, montrent aussi que les tâches RHEED du réseau Ag s'affinent progressivement lorsque l'épaisseur déposée augmente, traduisant probablement la coalescence des îlots 3D et le passage à un mode de croissance couche par couche. Ce fait conduit à une diminution notable de la rugosité de la surface des couches de l'argent. La relation épitaxiale entre Fe et Ag peut être illustrée par la figure 6.

Fe/Ag sur MgO(001)

Nous avons vu que les premières croissances (première période) de Fe et Ag ont montré une bonne qualité cristalline. Cette bonne épitaxie est observée jusqu'à la fin de la croissance, c'est à dire jusqu'à la vingtième période. Les figures 7 et 8 montrent les diagrammes RHEED

obtenus à différents stades de la croissance d'un super-réseau $[\text{Fe}(15\text{\AA})/\text{Ag}(55\text{\AA})]_{20}$ réalisé sur un substrat

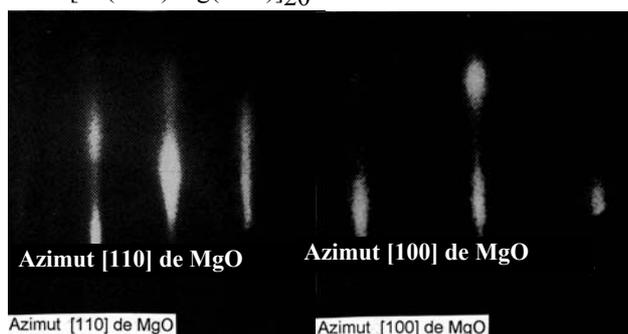


Figure 5: Diagrammes RHEED observés pendant la croissance de l'argent sur une couche de fer.

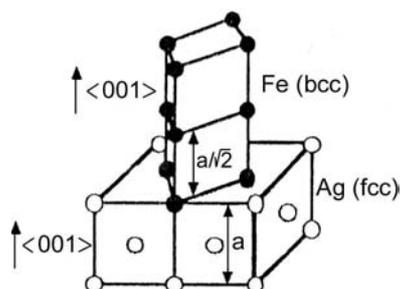


Figure 6: Arrangement épitaxial correspondant au super-réseau Fe bcc(001)/Ag fcc(001).

MgO(001). Les diagrammes RHEED de l'argent présentent des lignes fines qui témoignent d'une surface peu rugueuse. La présence de tâches plutôt que de lignes sur les diagrammes du fer indique une croissance moins bidimensionnelle. De plus, le contraste moins marqué entre le fond contenu et les tâches de diffraction témoigne d'une concentration importante de défauts dans les couches de fer. Cependant, on s'aperçoit qu'il n'y a pas de dégradation de la structure ou de la croissance.

Il est possible que la cinétique de l'épitaxie du fer soit favorisée par une température de croissance plus élevée que celle utilisée dans notre cas. Flynn [9] a défini une température de croissance $T_g = T_M/8$ (avec T_M la température de fusion du métal) en dessous de laquelle l'agglomération des atomes en surface est favorisée. Les températures de fusion de l'argent et de fer étant respectivement 961°C et 1535°C , il est clair que nous sommes très loin du critère de Flynn dans le cas du fer. Toutefois, nous avons pris la température de croissance voisine de l'ambiante pour minimiser les problèmes

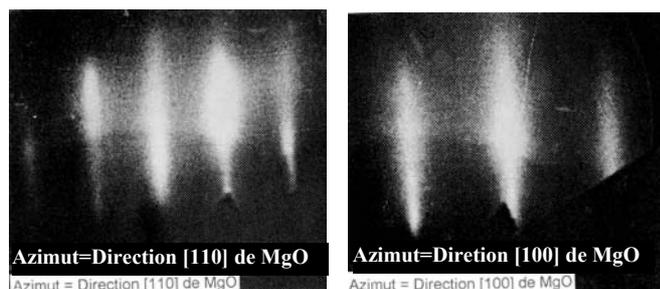


Figure 7: Diagrammes RHEED observés pendant la croissance de la couche de fer de la 2^{ème} période du super-réseau $[\text{Fe}(15\text{\AA})/\text{Ag}(55\text{\AA})]_{20}$ déposé sur MgO(001).

CONCLUSION

d'interdiffusion et de ségrégation, ces processus étant aussi activés thermiquement.

Notons également que la différence des énergies de surface (2123 ergs/cm^2 pour Fe et 1086 ergs/cm^2 pour Ag) [10] ne favorise pas une croissance couche par couche du fer sur l'argent.

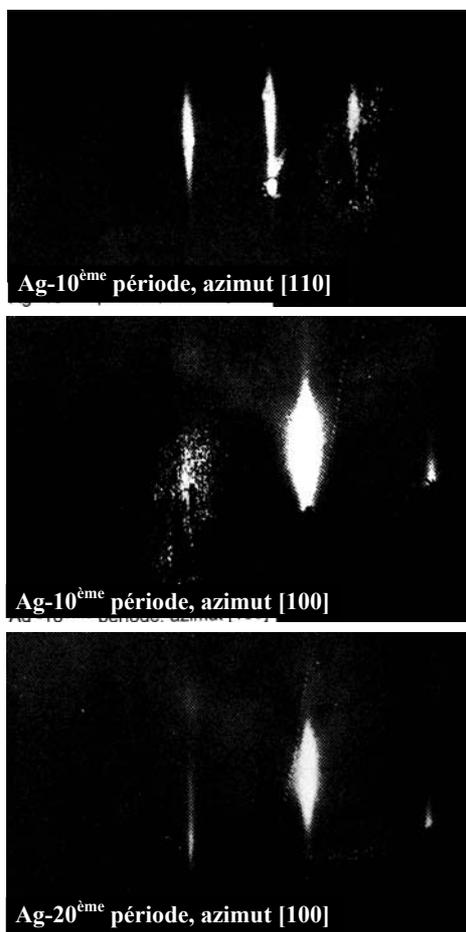


Figure 8: Diagrammes RHEED observés pendant la croissance de la couche d'argent de la 10ème période (azimut [110], [100]) et de la 20ème période (azimut [100]).

Ces résultats obtenus sont en parfait accord avec ceux d'Etienne et al. [11]. Cependant, les résultats disponibles dans la littérature quant au mode de croissance de Fe sur Ag sont assez contradictoires [11]. La différence des énergies de surface est par contre favorable à un mouillage du fer par l'argent. Le dépôt de Ag permet de "lisser" le front de croissance et ce d'autant plus que l'épaisseur est importante. Dans ces conditions, on n'observe aucune dégradation de la structure du super-réseau pendant la croissance et ce quel que soit le nombre de périodes déposées.

Nous avons étudié la croissance de super-réseaux Fe/Ag déposés par la technique d'épitaxie par jet moléculaire (MBE) sur des substrats MgO(001) monocristallins maintenus à la température ambiante. Les échantillons ont été caractérisés in-situ par la diffraction d'électrons (RHEED). La croissance de la première couche de fer sur MgO(001) suit un mécanisme plutôt tridimensionnel (tâches de RHEED larges). Le cliché RHEED montre un bon état cristallin et une épitaxie suivant l'orientation $\langle 110 \rangle$ par rapport à la direction [100] de MgO(001), ce qui correspond à une rotation de 45° de la maille CC Fe par rapport à la maille CFC de MgO. La première couche d'argent s'épitaxie sur la première couche de fer suivant l'orientation $\langle 001 \rangle$ avec une maille tournée de 45° par rapport à celle de Fe. La relation épitaxiale est $\text{Ag}(001)\langle 100 \rangle // \text{Fe}(001)\langle 110 \rangle$. Les clichés RHEED correspondants montrent une croissance plutôt couche par couche et une diminution remarquable de la rugosité de la surface des films de Ag. La croissance des multicouches Fe/Ag sur MgO(001) se fait avec une bonne épitaxie jusqu'à la vingtième période.

Remerciements

Les auteurs tiennent à remercier vivement le Professeur Y. Bruynseraede, Directeur du Laboratoire de Physique du Solide et de Magnétisme de l'Université Catholique Leuven -Belgique, pour la préparation des échantillons.

REFERENCES

- [1]- Schuller L.K., Physics, fabrication and applications of multilayered structures, Ed. P. Dhez and C. Weisbuch, Plenum, NY, (1988), p. 139.
- [2]- Shinjo T. and Takada T. (1987), Metallic Superlattices, Elsevier, Amsterdam.
- [3]- Kyuno K., Ha J.G., Yamamoto R. and Asano S., *Journal of the Physical Society of Japan*, Vol. 65 (5), (1996), p. 1334.
- [4]- Berger A. and Hopster H., *Phys. Rev. Lett.*, 76(3), (1996), p. 519.
- [5]- Schad R., Beliën P., Verbanck G., Potter C.D., Fischer H., Lefebvre S., Bessiere M., Moshchalkov V.V. and Bruynseraede Y., *Phys. Rev. B*, 57(21), (1998), p. 13692.
- [6]- Gladyszewski G., Temst K., Schad R., Beliën P., Kunnen E., Verbanck G. and Bruynseraede Y., *Thin Solid Films*, 275, (1996), p. 180.
- [7]- Gallego J.M., Kim S., Moran T.J., Lederman D. and Schuller I.K., *Phys. Rev. B*, 51(4), (1995), p. 2550.
- [8]- Buer E. and Van der Merve J. H., *Phys. Rev. B*, 333, (1986), p. 3657.
- [9]- Flynn C.P., *J. Phys. F: Met. Phys.*, 18, (1988), p.L195.
- [10]- Tyson W.R. and Miller W.A., *Surf. Sci.*, 62, (1977), p. 267.
- [11]- Etienne P., Lequien S., Nguen-Van-Dau F., Cabanel R., Creuset G., Friederich A., Massies J., Fert A., Barthelemy A. and Petroff F., *J. Appl. Phys.*, 67, (1990), p. 5400.

