

Université de Montréal

**Les effets des interfaces sur les propriétés magnétiques  
et de transport des multicouches Ni/Fe et Co/Ag**

par

Teodor Veres

Département de Physique

Faculté des arts et des sciences

Thèse présentée à la Faculté des études supérieures  
en vue de l'obtention du grade de  
Philosophiæ Doctor (Ph.D.)

Septembre, 1999

©Teodor Veres



QC

3

U54

2000

v. 007

Université de Montréal

Les effets des interférences sur les propriétés magnétiques  
et de transport des multicoûches NiFe et Co/Ni

par

Frédéric Véron

Département de Physique  
Faculté des arts et des sciences

Thèse présentée à la Faculté des études supérieures  
en vue de l'obtention du grade de  
Maîtrise en Sciences (M.Sc.)



1999 - Université de Montréal  
Frédéric Véron

Université de Montréal  
Faculté des études supérieures

Cette thèse intitulée:

Les effets des interfaces sur les propriétés magnétiques et  
de transport des multicouches Ni/Fe et Co/Ag

présentée par

Teodor Veres

a été évaluée par un jury composé des personnes suivantes:

Professeur John Brebner	président du jury
Professeur Robert W. Cochrane	directeur de recherche
Professeur Louis Andre Hamel	membre du jury
Professeur Peter Grütter	examineur externe
Professeur Andre Charrette	représentant du doyen

Thèse acceptée le: 22 décembre 1999

## Sommaire

Cette thèse est consacrée à l'étude de l'évolution structurale des propriétés magnétiques et de transport des multicouches Ni/Fe et nanostructures à base de Co et de l'Ag.

Dans une première partie, essentiellement bibliographique, nous introduisons quelques concepts de base reliés aux propriétés magnétiques et de transport des multicouches métalliques. Ensuite, nous présentons une brève description des méthodes d'analyse des résultats.

La deuxième partie est consacrée à l'étude des propriétés magnétiques et de transport des multicouches ferromagnétiques/ferromagnétiques Ni/Fe. Nous montrerons qu'une interprétation cohérente de ces propriétés nécessite la prise en considération des effets des interfaces. Nous nous attacherons à mettre en évidence, à évaluer et à étudier les effets de ces interfaces ainsi que leur évolution, et ce, suite à des traitements thermiques tel que le dépôt à température élevée et l'irradiation ionique. Les analyses corrélées de la structure et de la magnétorésistance nous permettront d'émettre des conclusions sur l'influence des couches tampons entre l'interface et le substrat ainsi qu'entre les couches elles-mêmes sur le comportement magnétique des couches F/F.

La troisième partie est consacrée aux systèmes à Magnéto-Résistance Géante (MRG) à base de Co et Ag. Nous allons étudier l'évolution de la microstructure suite à l'irradiation avec des ions  $\text{Si}^+$  ayant une énergie de 1 MeV, ainsi que les effets de ces changements sur le comportement magnétique. Cette partie débutera par l'analyse des propriétés d'une *multicouche hybride*, intermédiaire entre les *multicouches* et les *matériaux granulaires*. Nous analyserons à l'aide des mesures de diffraction, de relaxation superparamagnétique et de magnétorésistance, les évolutions structurales produites par l'irradiation ionique. Nous *établirons* des modèles qui nous aideront à interpréter les résultats pour une série des multicouches qui couvrent un large éventail de différents comportements magnétiques et ceci en fonction de l'épaisseur de la couche

de différents comportements magnétiques et ceci en fonction de l'épaisseur de la couche magnétique de Co. Nous verrons que dans ces systèmes les effets de l'irradiation ionique sont fortement influencés par l'énergie de surface ainsi que par l'enthalpie de formation, largement positive pour le système Co/Ag.

**Mots clés:** anisotropie magnétique, couches minces, diffusion dépendente du spin, irradiation ionique, magnéto-résistance anisotrope, magnéto-résistance géante, nanostructures, superparamagnétisme,

## Table des matières

Sommaire .....	iii
Table des matières .....	v
Liste des figures .....	viii
Liste des sigles et abréviations .....	xv
Remerciements .....	xvi
Dédicace .....	xviii

## Partie I Introduction Générale

<b>Chapitre 1: Généralités, définitions et cadre de travail</b> .....	2
1.1 Introduction .....	3
1.2 Cette Thèse .....	4
1.3 Propriétés magnétiques .....	6
1.3.1 Anisotropie magnétique .....	6
1.3.2 Le magnétique des petites particules .....	9
1.4 Propriétés de transport .....	10
1.4.1 La magnéto-résistance des métaux ferromagnétiques .....	11
1.4.2 La diffusion dépendante du spin: le mécanisme de Mott .....	11
1.4.3 La magnéto-résistance géante .....	13
1.4.4 Autres systèmes à MRG .....	15
Références .....	17
 <b>Chapitre 2: Techniques expérimentales et procédures d'analyse</b>	
<b>des résultats</b> .....	20
2.1 Elaboration des échantillons .....	21
2.2 Modification structurale des échantillons .....	21
2.2.1 Variation de la température du substrat .....	21
2.2.2 Irradiation avec faisceaux d'ions .....	22

2.3	Caractérisation structurale .....	27
2.3.1	Diffraction des rayons X .....	27
2.3.1.1	Diffraction par un super-réseaux .....	27
2.3.1.2	Diffraction aux grands angles .....	30
2.3.1.3	Mesures de réflectivité aux petits angles .....	32
2.3.1.4	Analyse quantitative des spectres de réflectivité de rayons X (RRX) aux petits angles .....	34
2.3.2	Microscopie Électronique à Transmission .....	36
2.4	Caractérisation des propriétés magnétiques et de transport.....	37
2.4.1	Mesures magnétiques .....	37
2.4.2	Mesures de magnétorésistance .....	39
	Références .....	40

## **Partie II: L'étude des propriétés magnétiques et de transport des multicouches Ni/Fe.**

<b>Présentation des articles</b> .....	43
<b>Chapitre 3: Propriétés magnétiques et de transport des multicouches Ni/Fe</b>	46
3.1 Article 1: <i>Magnetic and magnetotransport properties of Ni/Fe Multilayers</i> .....	47
<b>Chapitre 4: L'évolution de la structure et des propriétés magnétiques des multicouches Ni/Fe en fonction de la température du substrat</b> .	57
4.1 Article2: <i>Deposition-temperature dependence of texture and magnetic properties of sputtered Ni/Fe multilayers</i> .....	58
<b>Chapitre 5: Les effets de l'irradiation ionique sur la structure et les propriétés magnétiques et de transport des multicouches Ni/Fe</b>	67
5.1 Article 3: <i>MeV Si<sup>+</sup> irradiation of Ni/Fe multilayers: Structural, transport and magnetic properties</i> .....	68

<b>Chapitre 6: Irradiation des bicouches Ni/Fe: Effets de la microstructure et des interfaces sur les propriétés magnétiques .....</b>	<b>98</b>
6.1 Article 4: <i>MeV Si<sup>+</sup> irradiation of Ni/Fe bilayers on SiO<sub>2</sub>/Si(001): Effects of microstructural changes and interfacial reactions on magnetic properties .....</i>	<b>99</b>
<b>Partie III: Irradiation ionique des nanostructures Co<sub>x</sub>Ag<sub>1-x</sub>: modifications structurales et leur influence sur les propriétés magnétiques et de transport.</b>	
<b>Présentation des articles .....</b>	<b>119</b>
<b>Chapitre 7: Irradiation des multicouches Co/Ag avec des ions Si<sup>+</sup> 1MeV: L'évolution de la structure et des propriétés magnétiques des films à faible épaisseur de la couche Co .....</b>	<b>121</b>
7.1 Article 5: <i>Ion-beam modifications of Co/Ag multilayers I: Structural and magnetic properties of films with very thin Co layers .....</i>	<b>122</b>
<b>Chapitre 8 Irradiation des multicouches Co/Ag avec des ions Si<sup>+</sup> 1MeV: Etude de l'évolution des propriétés structurales et magnétiques avec l'épaisseur de la couche de Co .....</b>	<b>150</b>
8.1 Article 6: <i>Ion-beam modifications of Co/Ag multilayers II: Variation of structural and magnetic properties with Co layers thickness .</i>	<b>151</b>
<b>Conclusions .....</b>	<b>181</b>
<b>Annexe: liste de publications .....</b>	<b>185</b>



## Liste des figures

### Chapitre 1

- 1.1 *Représentation schématique: (a) la densité des états pour les bandes sp et d dans les métaux de transition, (b) la diffusion dépendante de spin dans une multicouche pour un alignement ferromagnétique (à gauche) et antiferromagnétique (à droite), (c) représentation par un circuit de résistances équivalentes* ..... 14

### Chapitre 2

- 2.1 *Représentation schématique des interactions balistiques entre l'ion incident et le solide. Notons la présence de la pulvérisation de surface, des interactions ion-atome avec recul élastique ainsi que le développement des cascades de collision* ..... 23
- 2.2 *Image TEM en coupe transverse sur un bicouche [Fe(500Å)/Ni(500Å)] $\times$ 11/SiO<sub>2</sub>/Si(100) irradiée avec une dose de  $1 \times 10^{17}$  ions/cm<sup>2</sup>. On observe la présence d'une couche de SiO<sub>2</sub> amorphe, la formation d'une couche épaisse de Si amorphe qui définit approximativement le parcours projeté des ions de Si<sup>+</sup> utilisé lors des expériences d'irradiation* ..... 26
- 2.3 *Représentation schématique de deux bicouches dans un super-réseau parfait* ..... 28
- 2.4 *(a) Géométrie des expériences de réflectométrie. Le profil est mesuré selon l'axe Oz; (b) Courbe de réflectivité spéculaire mesurée sur une multicouche [Fe(28 Å)/Ni(85 Å)] $\times$ 11/SiO<sub>2</sub>/Si(100)* ..... 33
- 2.5 *Schéma de principe du magnétomètre à échantillon vibrant. M représente l'électroaimant, B les bobines de détection, AS est l'amplificateur synchrone, et E l'échantillon* ..... 38
- 2.6 *Courbe d'aimantation mesurée sur une bicouche*

	<i>[Fe(500Å)/Ni(500 Å)]/SiO<sub>2</sub>/Si(100)</i> .....	39
2.7	<i>Représentation schématique des géométries utilisées pour les mesures de magnéto-résistance et les dimensions des échantillons</i> .....	40

### Chapitre 3

3.1	<i>Low angle X-ray reflectivity spectra for (Ni<sub>60</sub>/Fe<sub>30</sub>)<sub>11</sub>. The lower curve is experimental while the upper curve, shifted for clarity, is the fit described in the text</i> .....	53
3.2	<i>Coercive field (a) and remanence (b) of (Ni<sub>20</sub>/Fe<sub>20</sub>)<sub>16</sub> and (Ni<sub>35</sub>/Fe<sub>12</sub>)<sub>16</sub> multilayers as a function of the angle between the applied field and the longitudinal direction of the multilayer strips</i> .....	54
3.2	<i>(a) Anisotropic magnetoresistance (AMR) and (b) resistivity for Ni/Fe multilayers as a function of the nickel layer thickness. The lines have been calculated using the models and parameters described in text</i> .....	55
3.4.1	<i>Magnetization of a) pure nickel and iron thin films and b) (Ni<sub>20</sub>/Fe<sub>20</sub>)<sub>16</sub> and (Ni<sub>35</sub>/Fe<sub>12</sub>)<sub>16</sub> multilayers. In all cases, the applied field is in the longitudinal direction and the magnetizations are normalized relative to that of an iron film of equal thickness</i> .....	56

### Chapitre 4

4.1	<i>High-angle x-ray diffraction spectra for the (Ni<sub>86</sub>Å/Fe<sub>29</sub>Å)<sub>11</sub> multilayers deposited at various substrate temperatures (T<sub>s</sub>). Curves at different T<sub>s</sub> are shifted for clarity</i> .....	63
4.2:	<i>Low-angle x-ray reflectivity spectra for the (Ni<sub>86</sub>Å/Fe<sub>29</sub>Å)<sub>11</sub> multilayers deposited at various substrate temperatures (T<sub>s</sub>). Also shown is a simulated spectra for a multilayer with a 5 Å intermixed interface region. Individual spectra have been shifted for clarity</i> .....	64
4.3:	<i>Resistivity of (Ni<sub>86</sub>Å/Fe<sub>29</sub>Å)<sub>11</sub> multilayers as a function of deposition temperature. The solid line is a guide to the eye</i> .....	65
4.4:	<i>In-plane coercive field of (Ni<sub>86</sub>Å/Fe<sub>29</sub>Å)<sub>11</sub> multilayers as a function of deposition temperature. The solid line is a guide to the eye</i> .....	65

4.5:	<i>Anisotropic magnetoresistance ratio of (Ni86Å/Fe29Å)<sub>11</sub> multilayers as a function of deposition temperature. The solid line is a guide to the eye</i> .....	66
------	--	----

## Chapitre 5

5.1:	<i>High-angle <math>\theta</math>-<math>2\theta</math> XRD curves for the Fe<sub>28</sub>/Ni<sub>85</sub> multilayer as a function of ion dose <math>\Phi</math>. The bottom curve is the from the substrate. The acquisition time per step was 80 s. Successive curves have been shifted vertically for clarity</i> .....	86
5.2:	<i>Average grain size in the growth direction as a function of the ion dose <math>\Phi</math> as calculated from the high-angle XRD curves using the Scherrer formula</i> .....	87
5.3:	<i>XRR curves for the Fe<sub>28</sub>/Ni<sub>85</sub> multilayer as function of the ion dose <math>\Phi</math>. The open circles are experimental data while the solid lines are fitted curves. Successive curves have been shifted vertically by one decade for clarity</i> .....	88
5.4:	<i>(a) The square of the irradiation-induced intermixing width <math>W_{ion}^2 - W_0^2</math>, obtained from fitting of the XRR curves, as a function of the ion dose <math>\Phi</math></i> .....	89
5.5:	<i>Magnetization curves for the Fe<sub>28</sub>/Ni<sub>85</sub> multilayer, measured at 300 K, in longitudinal (O) and transverse (●) geometries for (a) the as-deposited sample and (b) after irradiation with <math>\Phi = 6 \times 10^{15}</math> ions cm<sup>-2</sup></i> .....	90
5.6:	<i>Longitudinal coercivity for the Fe<sub>28</sub>/Ni<sub>85</sub> multilayer and for 1000 Å Fe and 1500 Å Ni single layer films as a function of the ion dose <math>\Phi</math></i> .....	91
5.7:	<i>(a) Resistivity at 300 K for the Fe<sub>28</sub>/Ni<sub>85</sub> multilayer as a function of the intensity of the magnetic field H applied parallel (<math>\rho_{  }</math>) and perpendicular (<math>\rho_{\perp}</math>) to the current, before irradiation and after irradiation with <math>\Phi = 6 \times 10^{15}</math> ions·cm<sup>-2</sup>; (b) the variation of the</i>	

	<i>parallel <math>\Delta\rho_{\parallel}/\rho_0</math> and perpendicular <math>\Delta\rho_{\perp}/\rho_0</math> AMR ratios as function of the ion dose <math>\Phi</math> .....</i>	92
5.8:	<i>(a) Resistivity and (b) AMR ratio measured at 300 K as a function of ion dose <math>\Phi</math> for the <math>Fe_{28}/Ni_{85}</math> multilayer, as well as for 1000 Å Fe and 1500 Å Ni single layer films .....</i>	93
5.9:	<i>Anisotropic magnetoresistance ratio (<math>\Delta\rho_{\perp}/\rho_0</math>) and resistivity (<math>\rho</math>) as a function of the Ni layer thickness for a series of <math>[Fe(x \text{ Å})/Ni(y \text{ Å})]_{11}</math> multilayers (<math>y = 3x</math>) deposited on oxidized Si (100). The solid lines have been calculated using the semi-classical model with the parameters described in the text .....</i>	94

## Chapitre 6

6.1:	<i>High-angle <math>\theta</math>-2<math>\theta</math> XRD curves from the Fe/Ni bilayer as a function of ion dose <math>\Phi</math> .....</i>	109
6.2:	<i>Bright-field XTEM micrographs from (a) the as-deposited Fe/Ni bilayer and (b) after irradiation with <math>\Phi = 2 \times 10^{16}</math> ions <math>cm^{-2}</math> .....</i>	110
6.3:	<i>Bright-field plan-view TEM micrographs and corresponding SAED patterns from (a) the as-deposited Fe/Ni bilayer and (b) after irradiation with <math>\Phi = 2 \times 10^{16}</math> ions <math>cm^{-2}</math> .....</i>	111
6.4:	<i>(a) Bright-field XTEM micrograph and (b) <math>\theta</math>-2<math>\theta</math> XRD curve near <math>2\theta = 38^\circ</math> from the Fe/Ni bilayer irradiated with <math>\Phi = 1 \times 10^{17}</math> ions <math>cm^{-2}</math> ...</i>	112
6.5:	<i>XRR curves from the 500 Å Fe/500 Å Ni bilayer as a function of dose <math>\Phi</math> during 1 MeV <math>Si^+</math> irradiation. The open circles are experimental data while the solid lines are fitted curves. Successive curves have been shifted vertically by one decade for clarity .....</i>	113
6.6:	<i>Normalized magnetization curves for the as-deposited (<math>\bullet</math>) and irradiated with <math>\Phi = 1 \times 10^{17}</math> ions <math>cm^{-2}</math> (<math>\circ</math>) Fe/Ni bilayers, measured at 300 K for (a) <math>\alpha = 0^\circ</math>, (b) <math>\alpha = 40^\circ</math> and (c) <math>\alpha = 90^\circ</math>. Here <math>M_s</math> is the saturation magnetic moment .....</i>	114
6.7:	<i>Resistivity at 300 K for the Fe/Ni bilayer as a function of the intensity</i>	

<i>of the magnetic field <math>H</math> applied parallel (<math>\rho_{\parallel}</math>) and perpendicular (<math>\rho_{\perp}</math>) to the current (a) before irradiation and (b) after irradiation with <math>\Phi = 1 \times 10^{17}</math> ions<math>\cdot</math>cm<math>^{-2}</math> .....</i>	115
---	-----

## Chapitre 7

7.1: <i>Selected high-angle X-ray diffraction patterns measured with <math>\text{CuK}\alpha</math> radiation on a <math>[50\text{\AA}(\text{Co}5\text{\AA}/\text{Ag}25\text{\AA})_{70}]</math> multilayer irradiated with 1 MeV <math>\text{Si}^+</math> ions. The solid-line spectrum originates from the substrate. For clarity, successive diffraction patterns have been shifted vertically ..</i>	141
7.2: <i>The variation of the lattice parameter of the Ag grains of the <math>[50\text{\AA}(\text{Co}5\text{\AA}/\text{Ag}25\text{\AA})_{70}]</math> multilayer as a function of the irradiation dose ...</i>	142
7.3: <i>Magnetization curves of the sample measured at room temperature after different irradiation doses. The measured data are represented by the open circles, the calculated superparamagnetic contribution by the dashed line and the calculated ferromagnetic contribution by the solid line .....</i>	143
7.4: <i>Variation with ion dose of the coercive field for the <math>[50\text{\AA}(\text{Co}5\text{\AA}/\text{Ag}25\text{\AA})_{70}]</math> multilayer .....</i>	144
7.5: <i>(a) The temperature dependence of the magnetization for the irradiated (<math>8 \times 10^{14}</math> <math>\text{Si}^+/\text{cm}^2</math>) sample, measured under conditions of zero-field-cooling (ZFC) and field-cooling (FC) in several magnetic fields. (b) The variation of square root of the blocking temperatures (<math>T_b^{1/2}</math>) deduced from Fig. 5(a) as a function of the applied magnetic field. The line is a linear fit to the data .....</i>	145
7.6: <i>Magnetoresistance <math>\Delta\rho/\rho</math> at 300 K of the <math>[50\text{\AA}(\text{Co}5\text{\AA}/\text{Ag}25\text{\AA})_{70}]</math> multilayer as a function of the magnetic field applied in the sample plane (gray circles) and perpendicular to the plane (open circles): (a) as-deposited and (b) after irradiation with <math>5 \times 10^{16}</math> <math>\text{Si}^+/\text{cm}^2</math> .....</i>	146
7.7: <i>The dependence of (a) the resistivity <math>\rho</math>, (b) its field change <math>\Delta\rho</math>, and (c) the magneto-resistance <math>\Delta\rho/\rho</math> of the sample at 300 K as a function of the ion dose .....</i>	147

- 7.8: *Magnetoresistance for the sample at various ion doses. The solid lines are fits to the data based on Eq. (7) ..... 148*
- 7.9: *The maximum change of the resistivity ( $\Delta\rho = \alpha$ ) of the sample, obtained from the fits to the room temperature magnetoresistance, as a function of the inverse mean particle radius. The solid line is a linear fit to the data for doses larger than  $1.5 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  ..... 149*

## Chapitre 8

- 8.1: *X-ray diffraction spectra measured using  $\text{CuK}\alpha$  radiation for the as-deposited multilayers with  $t_{\text{Co}} = 2.8 \text{ \AA}$ ,  $5.0 \text{ \AA}$  and  $14 \text{ \AA}$ . The solid-line spectrum shows the signal originating from the substrate. For clarity, successive spectra have been shifted vertically ..... 169*
- 8.2: *In-plane magnetization curves measured at room temperature for multilayers with Co thicknesses of  $1.2 \text{ \AA}$ ,  $4.0 \text{ \AA}$ ,  $6.0 \text{ \AA}$  and  $14 \text{ \AA}$  ..... 170*
- 8.3: *Temperature dependence of the magnetization measured in an applied field of 20 Oe for the as-deposited multilayers with  $t_{\text{Co}} = 4.0 \text{ \AA}$ ,  $5.0 \text{ \AA}$  and  $7.0 \text{ \AA}$ . ZFC (filled circles) and FC (open circles) refer to zero-field-cooled and field-cooled conditions, respectively ..... 171*
- 8.4: *Room temperature magnetoresistance in transverse geometry for the as-deposited samples with Co thicknesses of  $1.2 \text{ \AA}$ ,  $4.0 \text{ \AA}$ ,  $6.0 \text{ \AA}$  and  $14 \text{ \AA}$  ... 172*
- 8.5: *X-ray diffraction spectra for the  $14 \text{ \AA}$  Co multilayer after various stages of 1 MeV  $\text{Si}^+$  irradiation. The substrate signal is represented by the solid-line spectra. Successive spectra have been shifted vertically for clarity ..... 173*
- 8.6: *Magnetization of the  $t_{\text{Co}} = 6.0 \text{ \AA}$  sample measured at 300 K after different irradiation doses: (a) as-deposited, (b)  $3 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ , (c)  $1 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  and (d)  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ . The calculated superparamagnetic (solid) and the ferromagnetic (dashed) contributions are also shown. The total calculated curve (SPM+FM - solid line) is superimposed on the data in (d) ..... 174*
- 8.7: *(a) Resistivity, (b) resistivity change ( $\rho(15 \text{ kOe}) - \rho(0)$ ) and (c) magnetoresistivity at 300 K versus the ion dose for samples with*

	$t_{Co} = 1.2 \text{ \AA}, 4.4 \text{ \AA}, 6.0 \text{ \AA} \text{ and } 8.3 \text{ \AA}$ .....	175
8.8	<i>Field dependence of the transverse magnetoresistance at 300 K for the <math>t_{Co} = 2.8 \text{ \AA}</math> multilayer at the following ion doses: (a) as-deposited, (b) <math>5 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2</math>, (c) <math>3 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2</math>, (d) <math>1 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2</math>, (b) <math>5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2</math>. Solid lines are fits to the data using Eq. (2)</i> .....	178
8.9:	<i>Maximum change of the fitted resistivity (<math>\Delta\rho = \alpha_o</math>) for samples <math>t_{Co} = 2.8 \text{ \AA}</math> and <math>5.0 \text{ \AA}</math> as a function of the inverse mean particle radius. The solid line is a linear fit to the data</i> .....	179
8.10:	<i>Schematic representation for the structural evolution upon irradiation: (a) as-deposited, (b) <math>&lt; 1 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2</math>, (c) <math>&gt; 1 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2</math></i> .....	180

## Liste des sigles et abréviations

AMR	magnétorésistance anisotrope «Anisotropic Magnetoresistance»
$D_{\text{cas}}$	coefficient de diffusion effectif
$\tilde{D}$	coefficient chimique d'interdiffusion
EJM	épitaxie à jet moléculaire
$F_D$	énergie seuil de déplacement
LMR	magnétorésistance longitudinale («Longitudinal Magnetoresistance»)
MRG	magnétorésistance géante
MR	magnétorésistance
PMR	magnétorésistance perpendiculaire «Perpendicular Magnetoresistance»
RF	radio-fréquence
RRX	réflectivité de rayons X
S-O	couplage spin-orbite «Spin-Orbite»
TEM	microscopie électronique à transmission «Transmission Electron Microscopy»
TRIM	programme de simulation des effets balistiques
TMR	magnétorésistance transverse «Transverse Magnetoresistance»
VSM	magnétomètre à échantillon vibrant «Vibrating Sample Magnetometer»
ZFC/FC	mesures d'aimantation «Zero-Field Cooled/Field Cooled magnetization measurements»
$\Delta H_{\text{mix}}$	énergie de mixage
$\Delta H_{\text{coh}}$	énergie de cohésion
$\Phi$	dose de l'irradiation

K KV K<sub>v</sub> PP 7-9  
ZFC p10



## Remerciements

Je voudrais remercier en premier lieu mon directeur de thèse, le professeur Robert W. Cochrane de l'Université de Montréal qui a encadré et suivi mon travail avec toujours autant d'intérêt, de disponibilité et d'enthousiasme. J'ai bénéficié de son expérience, de ses compétences scientifiques et j'ai eu beaucoup de plaisir à travailler à ses côtés. Je le remercie pour m'avoir donné la chance de continuer ma carrière au Canada et pour son soutien constant durant toutes ces années. Je tiens à lui témoigner ma reconnaissance pour tout ce qu'il m'a apporté ainsi que ma sincère et vive sympathie.

Je dois beaucoup à mes collègues de groupe, Meng Cai, Mohktar Rouabhi et Robert Morel. Je remercie Cai pour les discussions fructueuses que nous avons partagées et qui ont été précieuses pour l'avancée de mes travaux. Ce fut un réel plaisir de collaborer avec Mokhtar qui a su garder son calme et sa gentillesse tout en corrigeant mes fautes d'orthographe. Je le remercie pour sa disponibilité et son aide. Je remercie Robert pour avoir su me remonter le moral et me donner de nouvelles idées. Je tiens à lui témoigner mon amitié.

Je tiens à remercier le professeur Sjoerd Roorda pour son constant support et ses innombrables conseils. Je remercie le professeur Mark Sutton pour avoir mis à ma disposition les programmes de simulations ainsi que pour l'accès à ses expériences de réflectivité de rayons X.

Je remercie Patrick Desjardins pour sa contribution à la caractérisation structurale et son enthousiasme avec lequel il m'a aidé, particulièrement dans les derniers mois de rédaction.

Les expériences de diffractions de rayons X ont été en grande partie réalisées à l'Université McGill. Je tiens à remercier Li Cheng, Randa Abdouche et Dok Won Lee et James Freitag pour leur disponibilité et leur aide pour la caractérisation structurale.

L'élaboration des nombreux échantillons a été grandement facilitée grâce à l'aide précieuse de Germain Rinfret et Robert Rinfret. Leur persévérance et leur ingéniosité ont été un facteur important pour l'avancement de ce travail et j'ai toujours

eu beaucoup de plaisir à travailler avec eux. Je remercie également Pierre Bérichon et Real Gosselin pour leur aide durant les expériences d'irradiation.

Je tiens à témoigner ma sincère reconnaissance à nos Professeurs du groupe des couches minces, John Brebner, Laurent Lewis, Richard Lionelli, Yves Lepine, Arthur Yelon et Remo Mazut, pour leur soutien constant et leurs conseils précieux, souvent donnés autour d'une bonne tasse de café, dans un climat très amical.

Je remercie aussi les collègues du secrétariat du Département de physique, Louise Lafortune, Louise Gregoire et Louis Lemay pour leur disponibilité et leur aide.

A mes collègues de la Bibliothèque de physique, Francine, Michelle et Daniel, je tiens à dire que *"en physique il y a de bons services"*. Alors, un grand merci !

*A tous mes collègues finissants ou aspirants à un titre de docteur en physique, avec lesquels j'ai partagé des fois des moments d'euphorie, et des fois d'angoisse: Cai, Gwendoline, Mourad, Anna, Marc, Khalid, Sophie, Pierre, Patrick, Alexis..., je dis; Ne lâchez pas! car «Il y a une vie après la thèse»*

Finalement, je remercie le Groupe de recherche en physique et technologie des Couches Minces (GCM), la Faculté des Études Supérieures de l'Université de Montréal et les Fonds FCAR (Fonds pour la Formation de Chercheurs et l'Aide à la Recherche du Québec) pour m'avoir accordé des bourses pendant mes années d'études graduées.

A tous un grand merci !

## **Dédicace**

A mes très chers Adrian et Maria, merci pour votre patience et votre soutien.

A ma mère et à la mémoire de mon père.

# **Partie I**

## **Introduction Générale**

# **Chapitre 1**

## **Généralités, définitions et cadre de travail**

## 1.1 Introduction

L'évolution impressionnante des techniques d'élaboration et de caractérisation au cours de ces quinze dernières années, a permis d'ouvrir de nombreux domaines dans la physique des matériaux. Des nouvelles classes de matériaux ont pu ainsi voir le jour. On peut citer, entre autres, les multicouches, formées de couches minces magnétiques, alternant avec d'autres non magnétiques de seulement quelques angströms, constituant des structures artificielles périodiques. De nouvelles propriétés physiques jusqu'alors inexistantes dans les matériaux massifs et dans les alliages des mêmes matériaux, ont été découvertes. Celles-ci dépendent de plusieurs facteurs, reliés autant aux matériaux constituants qu'aux méthodes de préparation et de traitement, mais surtout à l'existence et l'état des interfaces et aux interactions entre les couches individuelles.

Un premier phénomène relié à la structure électronique et aux interactions magnétiques aux interfaces est *l'anisotropie d'interface*. Le fait le plus notable est la découverte par Garcia *et coll.*, de l'anisotropie magnétique perpendiculaire dans les multicouches Co/Pd [1] et ensuite dans les multicouches Co/Ni [2]. Cette anisotropie se manifeste par une orientation spontanée perpendiculaire au plan des couches lorsque l'épaisseur du Co est réduite à seulement quelques couches atomiques.

On peut également citer les phénomènes associés à la stabilisation des nouvelles phases cristallines par croissance épitaxiale. Le cas du Fe est intéressant car de nombreuses études théoriques et expérimentales ont montré la possibilité de stabiliser des phases cristallines cubiques-faces-centrées (cfc), même à la température ambiante, par croissance épitaxiale sur des substrats de Cu [3,4] ou dans des multicouches Ni/Fe [5]. Ces phases ont un comportement magnétique complexe car il est en fonction de l'épaisseur de la couche de Fe, et les structures obtenues peuvent être antiferromagnétiques ou ferromagnétiques.

Un autre exemple est la découverte par Grünberg *et coll.* [6] du couplage d'échange oscillant entre les couches de Fe à travers une couche très mince de Cr ( $\sim 10 \text{ \AA}$ ) dans des tri-couches Fe/Cr/Fe préparées par Epitaxie à Jet Moléculaire (EJM). Ces auteurs ont montré que l'orientation relative (en champ nul) des aimantations des

couches de Fe adjacentes, peut changer grâce au couplage d'échange, d'une orientation parallèle à une orientation antiparallèle seulement en changeant l'épaisseur de la couche de Cr.

Mais le phénomène qui a généré le plus d'intérêt autant théorique qu'expérimental est incontestablement la découverte, en 1988, de la Magnétorésistance Géante (MRG) faite indépendamment par Baibich *et coll.* [7] et Binasch *et coll.* [8] dans les multicouches Fe/Cr, préparées par EJM. Ils ont montré que la résistance électrique de ces multicouches dépend de l'orientation relative des moments dans les couches magnétiques adjacentes. Une configuration dans laquelle les aimantations des couches de Fe adjacentes sont antiparallèles est caractérisée par une résistance électrique plus grande qu'une configuration où les aimantations sont parallèles.

La résistivité devenant fonction du champ magnétique, ceci ouvre des possibilités importantes dans la détection des champs magnétiques faibles. Les senseurs magnétorésistifs existant à l'heure actuelle exploitent le phénomène d'anisotropie de la résistivité des films minces d'alliages NiFe [9]. Ces dernières années, beaucoup d'efforts ont été consacrés à la recherche de solutions alternatives qui peuvent offrir des sensibilités plus importantes.

## 1.2 Cette Thèse

Cette thèse étudie les effets des modifications structurales sur les propriétés magnétiques et de transport des multicouches Ni/Fe et des structures Co/Ag (multicouches et granulaires et hybrides). Nous la présentons sous la forme d'une collection d'articles publiés ou en cours de publication. Elle est constituée de trois parties.

Une première, essentiellement bibliographique, est constituée de deux chapitres. Dans le premier nous introduisons quelques concepts de base reliés aux propriétés magnétiques et de transport des multicouches métalliques. Le deuxième chapitre décrit les techniques de caractérisations structurales, de mesures magnétiques et de transport.

La deuxième partie (*chapitres 3 à 6*) est consacrée à l'étude des propriétés magnétiques et de transport des multicouches ferromagnétiques/ferromagnétiques Ni/Fe. Contrairement aux couches minces des métaux ferromagnétiques et leurs

alliages, la superstructure artificielle dans les multicouches, est importante à plus d'un titre.

- i) elle peut introduire des barrières de potentiel aux interfaces, ce qui affecte le transport électrique (résistivité, magnétorésistance) et les propriétés magnétiques (anisotropie, structures en domaine)
- ii) elle peut favoriser la stabilisation des phases cristallines métastables, grâce aux interactions près des interfaces.

Pour aborder ce sujet intéressant, il est nécessaire de maîtriser, à la fois les techniques de modification structurale très fines, ainsi que les méthodes de caractérisation très précises et rapides. C'est la raison pour laquelle nous avons décidé d'utiliser *l'irradiation ionique* et la *diffraction de rayons X à incidence rasante* pour *induire* et ensuite *caractériser* l'influence des changements structuraux aux interfaces sur les propriétés magnétiques et de transport de multicouches composées de matériaux ferromagnétiques uniquement. Nous montrerons qu'une interprétation cohérente de ces propriétés nécessite la prise en considération des effets des interfaces. Nous nous attacherons à mettre en évidence, à évaluer et à étudier les effets de ces interfaces ainsi que leur évolution, et ce, suite à des traitements thermiques tels que le dépôt à température élevée et l'irradiation ionique. Les analyses corrélées de la structure et de la magnétorésistance nous permettront d'émettre des conclusions sur l'influence qu'ont les couches tampons, de l'interface avec le substrat, ainsi que celles entre les couches elles-mêmes, sur le comportement magnétique des couches F/F.

La troisième partie (*chapitres 7 et 8*) est consacrée aux systèmes à MRG à base de Co et Ag. Il faut mentionner qu'un effort considérable a été fourni pour optimiser les performances des *matériaux hybrides* (multicouches granulaires). *Néanmoins*, le contrôle des caractéristiques structurales et des autres facteurs importants pour l'optimisation de la MRG est encore à un stade empirique dans ces matériaux hétérogènes. *Le travail sur les multicouches et structures granulaires Co/Ag, que nous présentons dans cette partie s'inscrit dans cette perspective*. Notre but est d'étudier la nature des modifications structurales induites par l'irradiation ionique à basse température et ses effets sur les propriétés magnétiques et de transport. Une telle étude



est intéressante aussi du point de vue fondamental, car peu d'études sur les effets d'irradiation ionique dans des structures magnétiques formées par des éléments non-miscibles ont été réalisées à ce jour.

Nous allons étudier, et ce, pour la première fois l'évolution des propriétés structurales, magnétiques et de la MRG suite à l'irradiation de ces matériaux avec des ions  $\text{Si}^+$  ayant une énergie de 1 MeV. Cette partie débutera par l'analyse des propriétés d'une *multicouche hybride*, intermédiaire entre les multicouches et les matériaux granulaires (*Chapitre 7*). Dans ce chapitre nous analyserons à l'aide des mesures de diffraction, de relaxation superparamagnétique et de magnétorésistance, les évolutions structurales produites par l'irradiation ionique. Nous *établirons* des modèles qui nous aideront à interpréter les résultats pour une série de multicouches qui couvrent un vaste éventail de comportements allant de celui des multicouches continues au comportement granulaire (*Chapitre 8*). Nous verrons que dans ces systèmes les effets de l'irradiation ionique sont fortement influencés par l'énergie de surface ainsi que par l'enthalpie de formation, largement positive pour le système Co/Ag.

## 1.3 Propriétés magnétiques

### 1.3.1 Anisotropie magnétique

Plusieurs contributions à l'énergie totale d'un échantillon ferromagnétique, telle que la *forme*, le *stress* et la *structure cristalline* elle-même, font en sorte que les propriétés magnétiques des films minces et des multicouches ne sont pas isotropes. En conséquence, les moments magnétiques peuvent s'orienter dans des directions privilégiées qu'on appelle directions faciles (ou axes faciles). La présence des anisotropies dans les échantillons magnétiques a des conséquences sur les propriétés de transport et des implications technologiques très importantes.

L'anisotropie magnétique caractérise la dépendance de l'énergie de l'état fondamental d'un cristal en fonction de la direction de l'aimantation par rapport aux axes cristallins. Dans les couches minces, l'énergie d'anisotropie par unité de volume comporte trois termes: un terme de volume appelé *anisotropie magnétocristalline*, important dans les monocristaux, le terme *d'anisotropie magnétique dipolaire* (*anisotropie de forme*), particulièrement important dans les couches minces et dans les

agrégats magnétiques, et un terme *d'anisotropie d'interface*. Les principales sources de ces contributions à l'anisotropie totale sont l'*interaction dipolaire* et le couplage *spin-orbite (S-O)*.

La longue portée des interactions dipolaires a comme résultat une contribution à l'anisotropie qui dépend de la forme de l'échantillon et qui oblige l'aimantation des couches minces et des multicouches à rester dans le plan du film. D'une manière phénoménologique cette contribution à l'énergie totale du film s'écrit

$$E_D = -\frac{1}{2}\mu_0 M_s^2 \sin^2(\theta) \quad (1.1)$$

où  $M_s$  est l'aimantation à la saturation et  $\theta$  l'angle entre l'aimantation et la normale à la surface du film.

L'*anisotropie magnétocristalline* a son origine dans le couplage S-O. En l'absence de ce couplage, l'énergie d'un système de spins ne dépend pas de la direction de l'aimantation. La présence de l'interaction S-O induit un faible moment orbital qui interagit avec le champ cristallin. Le résultat d'un tel couplage est un terme d'énergie ayant la symétrie du cristal et fait en sorte que l'énergie totale dépend de l'orientation de l'aimantation par rapport aux axes de symétrie du cristal. Pour un cristal cubique, l'énergie s'exprime, à l'aide des constantes d'anisotropie magnétocristalline  $K_1$  et  $K_2$ , sous la forme:

$$E_V = K_1[\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2] + K_2\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 \quad (1.2)$$

où  $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$  sont les cosinus directeurs de l'aimantation par rapport aux axes du cube. Dans l'analyse des anisotropies des couches minces une approximation uniaxiale est généralement employée:  $E_v = K_v \sin^2 \theta$ , où  $\theta$  est l'angle entre l'aimantation et la normale à la surface du film et  $K_v$  la constante d'anisotropie volumique.

Dans les films minces et les multicouches métalliques, les surfaces externes et les interfaces imposent une rupture de symétrie. La réduction de symétrie autour des sites de surface/interface fait en sorte que la contribution à l'énergie des atomes est modifiée par rapport aux contributions volumiques. Il en résulte une *anisotropie de*

*surface/interface* appelée aussi l'anisotropie de Néel. Cette contribution est proportionnelle à la densité d'interfaces, donc à l'inverse de l'épaisseur ( $t$ ) de la couche magnétique:  $\frac{2K_s}{t} \sin^2(\theta)$ , où  $K_s$  est la densité d'énergie par unité de surface.

La contribution volumique  $K_v$  est faible dans les couches minces. Il est alors possible que pour de très faibles épaisseurs de la couche magnétique et pour  $K_s$  positif, le terme d'interface domine le terme dipolaire  $E_D$  et force l'aimantation perpendiculairement à la surface du film produisant ainsi une *anisotropie perpendiculaire* (Co/Pd, Co/Ni [1,2]). On peut obtenir dans les multicouches des énergies d'anisotropie beaucoup plus importantes que dans les matériaux ferromagnétiques purs. Par exemples les énergies d'anisotropie magnétiques (en  $\mu\text{eV}/\text{atome magnétique}$ ) sont 1,4  $\mu\text{eV}/\text{Fe}$ , 2,7  $\mu\text{eV}/\text{Ni}$ , 65  $\mu\text{eV}/\text{Co}$  pour les matériaux magnétiques purs, tandis que dans les multicouches Co/Pd, Co/Pt la valeur de l'énergie d'anisotropie est beaucoup plus importante  $\sim 300 \mu\text{eV}/\text{Co}$  [10].

La rugosité et l'intermixage à l'interface affectent les propriétés magnétiques, dont l'anisotropie. Bruno [11] a montré que, pour des films dont l'aimantation est orientée dans le plan des couches, la rugosité crée un champ démagnétisant à la surface qui réduit l'anisotropie de forme par une contribution qui dépend de l'amplitude de la rugosité et de la valeur moyenne des terrasses. En même temps, l'intermixage aux interfaces introduit une distribution aléatoire des liaisons magnétiques qui est en accord avec les prévisions du modèle de Néel [12] et avec les résultats de Draaisma [13]. Ce dernier a montré, sur la base d'un modèle des interactions en paires, que l'anisotropie d'interface dépend fortement du degré d'intermixage.

### 1.3.2 Le magnétisme des petites particules.

Le comportement magnétique de structures Co/Ag que nous allons étudier dans la troisième partie de la thèse est largement influencé par la présence et le comportement des petites particules magnétiques mono-domaine, notamment par le phénomène de *relaxation superparamagnétique*. En réduisant les dimensions des particules ferromagnétiques, la compétition entre l'énergie d'échange et l'énergie magnétostatique, détermine une *taille critique* au-delà de laquelle la formation des

parois de domaines n'est plus favorable. La particule est alors dans une configuration magnétique mono-domaine, même en l'absence d'un champ magnétique. Cette *taille critique* dépend sensiblement de la forme des particules ainsi que de leur type d'anisotropie. Kittel [14] a estimé le *diamètre critique* pour les particules sphériques des matériaux ferromagnétiques de 200 à 400 Å. La direction de l'aimantation d'une particule est déterminée par une barrière d'énergie due à l'anisotropie magnétique (KV), qui dépend de la taille (V), de la forme et la nature du matériau via la constante d'anisotropie totale K. Néel a montré en 1949 [15] que si le volume d'une particule est suffisamment petit, l'énergie thermique  $k_B T$  peut dépasser la hauteur de la barrière KV. En conséquence, la direction de l'aimantation peut fluctuer entre plusieurs directions faciles équivalentes. Observée sur plusieurs cycles, la particule semble ne pas avoir de moment magnétique permanent et, par analogie avec les dipôles fluctuants dans le paramagnétisme, une telle particule est appelée *superparamagnétique*.

Un ensemble de particules *superparamagnétiques* aimanté à la saturation par l'application d'un champ magnétique externe va évoluer vers un état d'équilibre thermodynamique caractérisé par une rémanence nulle. Cette évolution est décrite par un *temps de relaxation*  $\tau$  qui suit une loi de type Arrhenius:  $\tau = \tau_0 \exp(KV/k_B T)$ , où  $\tau_0$  ( $\sim 10^{-9}$ - $10^{-12}$  s) est un temps caractéristique.

On voit que le temps de relaxation augmente avec le volume de la particule et diminue avec la température. Par exemple pour le Fe à la température de la pièce, une particule sphérique d'un rayon de 115 Å a un temps de relaxation  $\tau \sim 10^{-1}$  s et elle atteint l'équilibre thermique presque instantanément. Par contre, une particule avec un rayon de 150 Å a un temps de relaxation  $\tau \sim 10^9$  sec et elle paraît extrêmement stable [16].

Pour une particule de volume donné, il y a donc une température de transition entre un état stable et un état fluctuant. Dans une expérience avec un temps de mesure  $\tau_m$ , les fluctuations superparamagnétiques vont commencer à être détectées quand  $\tau$  devient comparable à  $\tau_m$ , c'est-à-dire à une température usuellement appelée *température de blocage* :

$$T = T_B = \frac{KV}{k_B \ln(\tau_m/\tau_0)} \quad (1.3)$$

La mesure de la température de blocage permet de déterminer le produit  $KV$  et de remonter au volume  $V$  des particules. La mise en évidence de la température de blocage peut se faire par plusieurs types de mesures tels que: l'effet Mössbauer, mesures de susceptibilité magnétique en courant alternatif ainsi que par la mesure de l'aimantation lors du refroidissement en champ nul (ZFC) et ensuite en présence d'un faible champ magnétique externe (Fig. 7.5). Comme la taille des particules varie dans les échantillons granulaires, il existe alors une certaine *distribution de tailles*. De la même manière, il doit exister une distribution des températures de blocage. La valeur à laquelle nous avons accès expérimentalement par des mesures de relaxation superparamagnétique correspond donc à la valeur moyenne de la distribution de tailles.

Cette méthode a été appliquée dans les chapitres 7 et 8 pour suivre l'évolution de la taille des particules de Co suite à l'irradiation ionique.

#### **1.4. Propriétés de transport**

Du fait de son importance technologique, la magnéto-résistance (MR) est une des propriétés des multicouches et films ferromagnétiques la plus étudiée ces dernières années. Elle définit le changement dans la résistivité électrique ( $\rho$ ) suite à l'application d'un champ magnétique. La MR est présente dans tous les métaux mais sa valeur et sa dépendance avec le champ magnétique dépendent de beaucoup de facteurs dont la nature des éléments.

L'action de la force de Lorentz sur les trajectoires des électrons de conduction est à l'origine de la *magnéto-résistance normale* caractéristique de tous les métaux. Cependant, de par sa valeur très faible, elle reste négligeable par rapport aux magnéto-résistances *anisotrope* (AMR) et *géante* (MRG), présentes dans les films et multicouches magnétiques.

Nous allons maintenant présenter un bref résumé des résultats qui expliquent les propriétés de transport, notamment la magnéto-résistance géante obtenue dans les nanostructures (multicouches et matériaux granulaires).

### 1.4.1 La magnétorésistance des métaux ferromagnétiques

Dans les métaux ferromagnétiques, la magnétorésistance est sensiblement plus élevée que dans les métaux non-magnétiques. Sa variation avec le champ appliqué dépend de l'orientation du champ par rapport au courant électrique. Quand le champ magnétique est parallèle au courant (*magnétorésistance longitudinale: LMR*) (Figure 7, Chapitre 5), la résistivité augmente avec le champ ( $\Delta\rho_{\parallel} > 0$ ) alors qu'avec le champ perpendiculaire au courant (*magnétorésistance transverse: TMR*) la résistivité décroît ( $\Delta\rho_{\perp} < 0$ ) quand le champ augmente. Cette dépendance de la résistivité avec l'orientation relative entre le champ magnétique et le courant est connue sous le nom de *magnétorésistance anisotrope (AMR)*. L'AMR est généralement définie par le rapport entre la différence ( $\Delta\rho = \Delta\rho_{\parallel} - \Delta\rho_{\perp}$ ) de la résistivité à la saturation en configurations parallèle ( $\rho_{\parallel}$ ) et transverse ( $\rho_{\perp}$ ) et une résistivité moyenne  $\bar{\rho} = 1/3\rho_{\parallel} + 2/3\rho_{\perp}$  qui tient compte de l'équipartition des directions d'aimantation en volume. L'amplitude de l'AMR peut atteindre 25% à 4,2 K dans des alliages  $\text{Ni}_{70}\text{Co}_{30}$ , et 4-6% à 300 K dans  $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$  [17] avec des champs de saturation très faibles (10 Oe).

Si la compréhension phénoménologique de l'AMR est assez simple, son explication microscopique l'est beaucoup moins car il est nécessaire d'introduire un mécanisme de diffusion anisotrope pour les électrons de conduction.

### 1.4.2 La diffusion dépendante du spin: le mécanisme de Mott

Pour expliquer la résistivité électrique des matériaux ferromagnétiques, il faut faire appel à la structure de bande. Une présentation schématique de la densité des états pour les bandes (sp) et (d) des matériaux ferromagnétiques (Fe, Co et Ni) est donnée dans la figure 1(a). Dans ces métaux, le niveau de Fermi est situé à la fois dans les bandes (s) et la bande (d), ce qui signifie que les deux bandes contribuent à la conduction. Tel que montré initialement par Mott [18], la conduction des métaux de transition n'est pas due aux électrons (d) (situés dans des bandes étroites, donc avec une grande masse effective), mais plutôt aux électrons (4s) très mobiles (ayant une faible masse effective). Cependant, la bande (d) participe à la conduction car la forte densité

des états au niveau de Fermi de la bande (d) accroît la probabilité de diffusion des électrons 4s vers des états d libres.

Un modèle simplifié pour la conduction, basé sur la structure de bandes a été proposé par Mott en 1964 [19]. Dans ce modèle, le courant électrique est véhiculé en parallèle par *deux canaux de spins* indépendants. L'un est composé d'*électrons de spin* ( $\downarrow$ ) (antiparallèles à l'aimantation) et l'autre des *électrons de spin* ( $\uparrow$ ) (parallèles à l'aimantation). Due à la dissymétrie des bandes (d) dans les matériaux ferromagnétiques, la densité des états libres au niveau de Fermi  $n^\downarrow(E_F)$  et  $n^\uparrow(E_F)$  pour les électrons ( $\downarrow$ ) et ( $\uparrow$ ) est très différente. Dans le Co par exemple,  $n^\downarrow(E_F)$  est d'un ordre de grandeur supérieur à  $n^\uparrow(E_F)$  [20]). En conséquence, les probabilités de diffusion pour les deux canaux de spin sont très différentes, ce qui produit des libres parcours moyens et donc des résistivités  $\rho^\downarrow$  et  $\rho^\uparrow$  très différentes. Ceci implique que la *conduction est dépendante du spin* ou *polarisée*. Cette polarisation est souvent caractérisée par le rapport  $\alpha = \rho^\downarrow/\rho^\uparrow$ . Ce modèle réussit à expliquer la résistivité relativement élevée des matériaux ferromagnétiques par rapport à celle des métaux non-magnétiques, ainsi que sa décroissance après la saturation. Mais, la conductivité dans ce modèle est *isotrope*, ce qui ne peut pas expliquer l'anisotropie de la résistivité, donc l'AMR.

Dans un modèle microscopique proposé en 1951 par Smit [21], l'anisotropie de la résistivité est expliquée comme la conséquence d'un mécanisme de diffusion anisotrope dû à la présence du couplage *spin-orbite*. En plus d'imposer des directions préférentielles pour l'aimantation, cette interaction va mélanger les états  $d^\downarrow$  et  $d^\uparrow$ , produisant une distribution non-uniforme des états libres entre les 5 orbitales d. Les calculs ont montré qu'il y a un déficit des états libres pour les orbitales perpendiculaires à l'aimantation. De ce fait, un électron qui se déplace dans une direction perpendiculaire à l'aimantation a une probabilité de *diffusion sd* plus petite qu'un électron se déplaçant parallèlement à l'aimantation, ce qui explique pourquoi  $\rho_\perp < \rho_\parallel$ . Le mécanisme d'AMR est ainsi lié à la variation du facteur  $\alpha = \rho^\downarrow/\rho^\uparrow$  dû au couplage spin-orbite.

D'une manière phénoménologique, le traitement de l'AMR dans le cas des multicouches F/F composées de deux matériaux ferromagnétiques peut se faire en utilisant des modèles de transport [22] adaptés du modèle de Fuchs-Sondheimer [23].

Un traitement similaire sera utilisé pour les multicouches Ni/Fe dans la deuxième partie de la thèse.

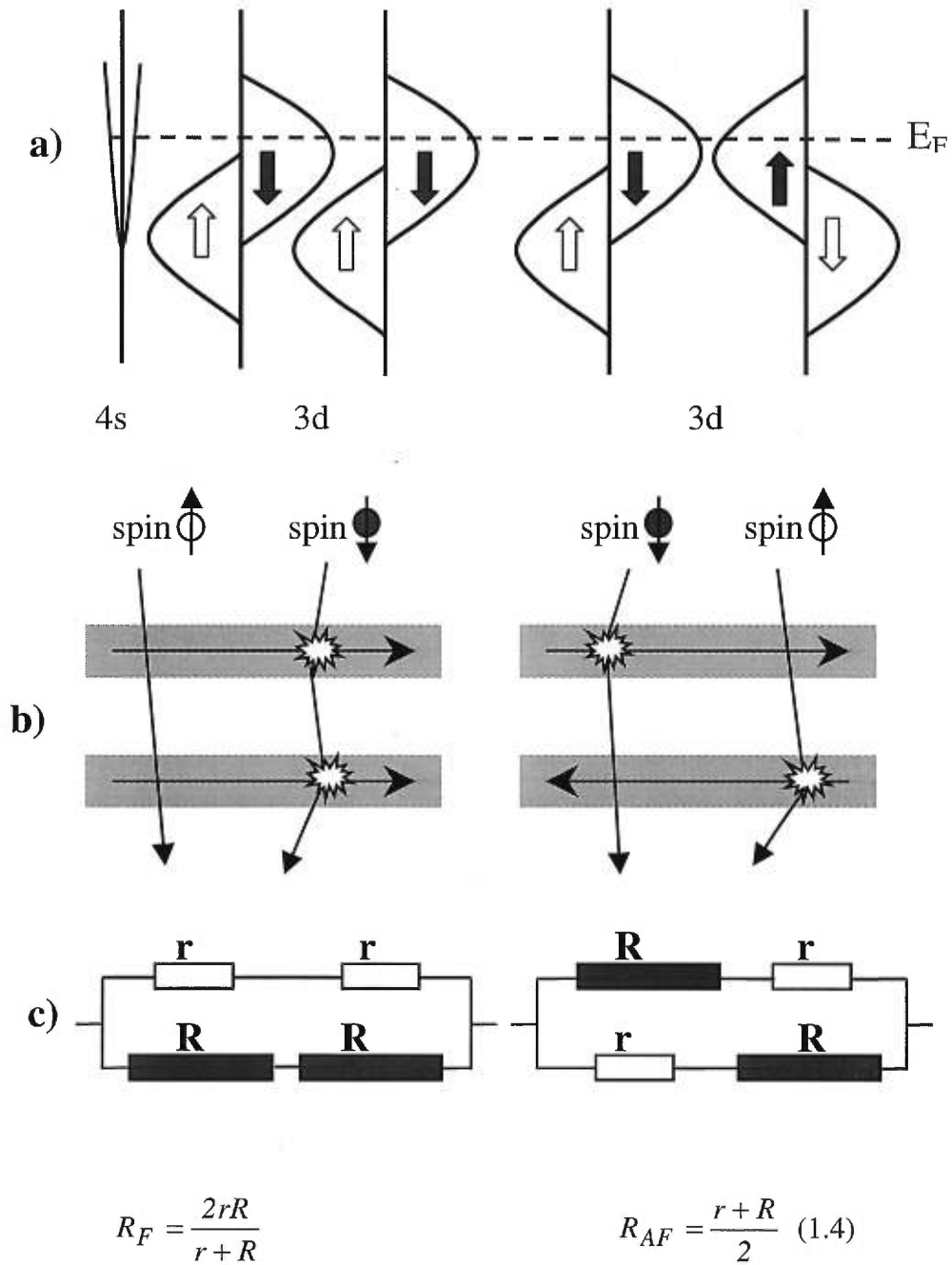
### 1.4.3 La magnéto-résistance géante

La MRG a maintenant été mise en évidence dans une grande variété de multicouches magnétiques. Deux paramètres sont utilisés pour quantifier l'effet MRG: le premier est l'*amplitude*  $\Delta\rho/\rho_{\text{sat}}$ , défini par le rapport entre la variation totale de résistivité  $\Delta\rho = \rho_0 - \rho_{\text{sat}}$  où  $\rho_0$  et  $\rho_{\text{sat}}$  sont les résistivités en champ nul et à la saturation respectivement. Le deuxième paramètre est le champ  $\Delta H$  nécessaire pour observer l'amplitude totale de l'effet.

Ce qui distingue la MRG de la AMR, n'est pas seulement son amplitude, mais aussi le fait que la variation de résistivité soit toujours négative pour toutes les directions du champ appliqué. Il faut noter que l'effet repose sur la diffusion dépendante du spin discuté dans le paragraphe précédent pour les matériaux ferromagnétiques. *Cependant*, la MRG ne peut être observée que dans les systèmes où les électrons de conduction ont la possibilité de traverser successivement des «entités» magnétiques (couches, agrégats) dont les aimantations ne sont pas colinéaires, et de subir des diffusions dépendantes de spin *aux interfaces* ou *dans le volume*.

L'explication phénoménologique de la MRG peut se faire aussi avec le formalisme à deux courants. Les figures 1.2 (b) et 1.2(c) présentent une représentation schématique du phénomène de diffusion dépendante de spin dans une multicouche magnétique. Dans la *configuration antiparallèle*, en champ nul (Fig. 1.2 (b) à droite), les électrons de spin ( $\downarrow$ ) sont largement diffusés dans la première couche, où la densité des états d libres est plus forte que celle pour les électrons de spin opposé ( $\uparrow$ ). Dans la deuxième couche les rôles s'inversent. En conséquence, sur une période magnétique et dans l'hypothèse d'un libre parcours moyen plus grand que l'épaisseur des couches, la résistance est  $R_{\text{AF}} = (r+R)/2$ . Après saturation (Fig. 1.2(b) à gauche), seulement les électrons de spin ( $\downarrow$ ) sont largement diffusés, les électrons de spin opposés sont court-circuités et la résistance est  $R_{\text{F}} = 2rR/(r+R)$ . En conséquence, l'effet du champ est de réduire la résistance car  $R_{\text{F}} < R_{\text{AF}}$ .





**Figure 1.** Représentation schématique: (a) la densité des états pour les bandes sp et d dans les métaux de transition, (b) la diffusion dépendante du spin dans une multicouche pour un alignement ferromagnétique (à gauche) et un alignement antiferromagnétique (à droite), (c) représentation par un circuit de résistances équivalentes.

Un pas significatif vers l'application de la MRG dans les dispositifs a été fait par Parkin *et al.* [24]. Ils ont montré que la MRG peut être observée aussi dans des multicouches préparées par pulvérisation, et que l'amplitude de la MRG dans ces multicouches peut être plus importante que dans les multicouches obtenues par EJM [24]. Plusieurs synthèses sur les résultats obtenus dans les multicouches F/NM/F (ou NM est un élément non-magnétique) ont été publiées à ce jour. On peut faire référence à celles publiées par Parkin [25] et Dieny [26]. L'amplitude MRG, la plus grande ( $\sim 220\%$ ), a été mesurée à 1.5 K dans des multicouches Fe/Cr avec couplage AF [27]. À 300 K, la valeur la plus grande ( $\sim 65\%$ ) a été mesurée dans des multicouches Co/Cu [28]. Malgré les amplitudes MRG très importantes, les multicouches couplées AF ne sont pas adéquates pour les applications de têtes de lecture à cause du grand champ magnétique nécessaire pour renverser l'aimantation.

#### 1.4.4 Autres systèmes à MRG

Si initialement, l'existence de l'effet MRG a été reliée au couplage AF entre les couches magnétiques adjacentes, ce dernier n'est pas essentiel pour mesurer l'effet. Il est seulement nécessaire que les moments dans les couches magnétiques ne soient pas parallèles. Ce fait a été démontré par la découverte de la MRG dans au moins trois catégories de matériaux sans couplage AF entre les couches magnétiques.

*Premièrement*, chez IBM, V. Speriosu et ses collaborateurs [29] ont développé des structures «vannes de spin» ( $50\text{\AA}$  Ta/ $62\text{\AA}$  NiFe/ $22\text{\AA}$  Cu/ $40\text{\AA}$  NiFe/ $70\text{\AA}$  FeMn) de type AF/F1/NM/F2 dans lesquelles une couche magnétique (F1) est piégée par le couplage d'échange avec la couche antiferromagnétique (FeMn), tandis que l'autre couche ferromagnétique (F2) tourne librement lorsque le champ appliqué augmente. Un alignement antiparallèle des aimantations entre les deux couches ferromagnétiques est ainsi créé et la résistivité chute rapidement ( $\Delta\rho/\rho \sim 5\%$  ;  $\Delta H \sim 2\text{Oe}$ ). Dans ce type de configuration, la courbe de magnétorésistance n'est pas réversible du fait du couplage unidirectionnel produit par l'anisotropie d'échange à l'interface AF/F1.

*Une deuxième alternative* pour produire un effet MRG, en absence du couplage AF entre couches magnétiques, réside dans les multicouches contenant deux matériaux ferromagnétiques ayant des coercivités différentes, par exemple  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$  et Co dans une

multicouche  $(\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Cu}/\text{Co}/\text{Cu})_N$  [26]. Avec ce type de structure, il est possible d'obtenir des amplitudes MR d'environ 15% avec des champs de saturation  $\sim 10\text{-}80$  Oe. Le problème avec les deux dernières classes de matériaux réside dans la difficulté de contrôler les épaisseurs des couches (parfois une précision  $\sim 1 \text{ \AA}$  est nécessaire) ainsi que la stabilité thermique.

Presque simultanément, A. Berkowitz *et coll.* [30], et C. Chien *et coll.* [31] ont annoncé en 1992 l'existence de la MRG en absence du couplage AF dans les *alliages granulaires* où des agrégats magnétiques (Co, Ni, NiFe, CoFe) sont dispersés dans une matrice non-magnétique (Cu, Ag). L'existence de l'effet MRG dans cette *troisième catégorie* de structures repose sur l'existence d'une distribution complètement aléatoire des aimantations des agrégats magnétiques mono-domaines. Par analogie avec le cas des multicouches, la résistivité est plus grande dans la configuration avec le plus haut degré d'alignement antiferromagnétique. Cette configuration correspond à l'état où l'aimantation totale du système est nulle ( $H = \pm H_c$ ). La résistivité décroît quand le champ appliqué aligne les moments.

La simplicité de fabrication (co-déposition) de ces nouveaux matériaux par rapport aux multicouches, ainsi que les amplitudes importantes de la MRG (92% à 4.2 K dans  $(\text{Co}_{65}\text{Fe}_{35})_x\text{Ag}_{1-x}$  [32]) ont suscité un très grand intérêt, notamment pour leur potentiel technologique. Malheureusement, pour le moment, ces matériaux restent handicapés par les valeurs très élevées ( $> 20$  kOe) des champs nécessaires pour saturer les petits agrégats qui gardent un comportement superparamagnétique. La MR dans ces matériaux dépend fortement de leur structure, inhomogène et très complexe, à l'échelle microscopique. Les paramètres importants contrôlant l'amplitude de l'effet dans ces matériaux sont: *la forme*, *la distribution de tailles* et *la concentration* des agrégats, la valeur relative du *libre parcours moyen* par rapport à la taille et la présence des *couplages* entre les agrégats.

Dans un effort de réduire les champs de saturation, Hylton *et coll.* [33] ont préparé des *multicouches discontinues* (structure hybride entre multicouche et granulaire) formées d'agrégats magnétiques sous la forme de plaquettes («disk-like») par recuit des multicouches  $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}/\text{Ag}$  à environ  $315^\circ \text{C}$ . Ces structures favorisent une diminution importante de l'anisotropie de forme qui assure un couplage antiparallèle

local entre les agrégats des couches magnétiques voisines. Les sensibilités en champ sont très respectables ( $\Delta\rho/\rho \sim 4\text{-}6\%$ ;  $\Delta H \sim 5\text{-}10$  Oe). Mais la reproductibilité ainsi que la stabilité thermique posent encore des problèmes. Le recuit thermique après le dépôt permet de modifier la taille des particules et ainsi d'améliorer la MR, mais les conditions de recuit et ses résultats ne sont pas facilement contrôlables car les paramètres qui déterminent l'amplitude de la MRG, mentionnés ci-haut, évoluent d'une manière très différente. C'est pourquoi des méthodes alternatives de préparation et de traitement, permettant un meilleur contrôle de ces paramètres, ont une importance technologique certaine.

Une méthode alternative, proposée par Loloee *et coll.* [34], suggère la préparation des multicouches granulaires en réduisant progressivement l'épaisseur de la couche magnétique jusqu'à ce qu'elle devienne discontinue (5-8 Å). On obtient ainsi des structures hybrides constituées d'agrégats magnétiques sous forme de plaquettes avec une taille latérale de quelques dizaines d'angströms. Tout comme l'approche de Hylton, cette procédure permet d'obtenir des agrégats sous forme de plaquettes avec un couplage local antiparallèle. C'est cette procédure que nous avons adoptée pour préparer les échantillons utilisés en vue d'étudier les effets de l'irradiation ionique dans les multicouches Co/Ag.

## Références

- 
- [1] P. F. Garcia, A. D. Meinhaldt, and A Suna, *Appl. Phys. Lett.* **47**, 178 (1985).
  - [2] G.H. Daalderop, P.J. Kelly, and F.J.A. den Broeder, *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 682 (1992).
  - [3] D.P. Pappas, K.P. Kamper, H. Hopster, D.E. Fowler, C.R. Brundle, A.C. Luntz, and Z.X. Shen, *Phys. Rev. Lett.*, **66**, 504 (1991).
  - [4] R.D. Ellerbrock, A. Fuest, A. Schatz, W. Keune, and R.A. Brand, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 3053 (1995).
  - [5] A. C. Ehrlich, D. J. Gillespie, T. M. Tritt, C. Kim, A. S. Edelstein, and S. B. Qadri, *J. Appl. Phys.* **70**, 5819 (1991).

- 
- [6] P. Grünberg, R. Schriber, Y. Pang, M. B. Brodsky, and H. Sowers, *Phys. Rev. Lett.* **57**, 2442 (1996).
- [7] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. NguyenVan Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61** 2472 (1988).
- [8] G. Binach, P Grünberg, F. Saurenbach and W. Zinn, *Phys. Rev. B* **39** 4828 (1989).
- [9] P. Ciureanu, “*Magnetoresistive Sensors*” dans *Thin Film Resistive Sensors*, ed. by P. Ciureanu, S. Middelhoek (Institute of Physics Publishing, Bristol), 253 (1992).
- [10] W.J.M. de Jonge, P.J.H. Bloemen, and F.J.A. den Broeder, dans *Ultrathin Magnetic Structures I*, ed. by B. Heinrich and J.A.C. Bland (Springer-Verlag), pg. 68 (1994).
- [11] P. Bruno *J. Appl. Phys.* **64**, 3153 (1988).
- [12] L. Neel, *J. de Phys. et le Rad.* **15**, 225 (1954).
- [13] H.J.G. Draaisma, F.J.A. den Broeder, W.J.M. de Jonge, *J. Appl. Phys.* **63**, 3479 (1988).
- [14] C. Kittel, *Phys. Rev.* **70**, 965 (1946).
- [15] L. Néel, *Compt. rend.* **228**, 664 (1949); *Ann. géophys.* **5**, 99 (1949).
- [16] C.P. Bean, and J.D. Livingston, *J. Appl. Phys.* **30** (4) 120S (1959).
- [17] T.R. McGuire, R.I. Potter, *IEEE Trans. Magn.*, **MAG11**, 1018 (1973).
- [18] N.F. Mott, *Proc. Roy. Soc. (London)*, **A 156**, 368 et 699 (1936).
- [19] N.F. Mott, *Adv. Phys.* **13**, 325, (1964).
- [20] P.L. Rossiter, *The Electrical Resistivity of Metals and Alloys* (Cambridge University Press, Cambridge, 1987).
- [21] J. Smit, *Physica* **16**, 612 (1951).
- [22] Th. G.S.M. Rijks, R. Coehoorn, M.J.M. de Jong and W.J.M. de Jonge, *Phys. Rev. B* **51**, 283(1995).
- [23] K. Fucks, *Proc. Cambridge Philos. Soc.* **34**, 100 (1938); E.H. Sondheimer, *Philos. Mag. Suppl.* **1**, 1 (152)
- [24] S.S.P. Parkin, N. More and K. P. Roche, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2304 (1990).
- [25] S.S.P. Parkin, dans *Ultrathin Magnetic Structures II*, ed. by B. Heinrich and J.A.C. Bland (Springer-Verlag), pg. 148 (1994).
- [26] B. Dieny , *J. Magn. Magn. Mater.*, **136**, 335 (1994).

- 
- [27] R. Schad, C.D. Potter, P. Beliën, G. Verbanck, V.V. Moshchalkov, and Y. Bruynserade, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 3500 (1994).
- [28] S.S.P. Parkin, Z.G. Li, and D.J. Smith, *Appl. Phys. Lett.*, **58**, 2710 (1991).
- [29] B. Dieny, V.S. Speriosu, S. Metin, B.A. Gurney, P. Baumgart, and D.R. Wilhoit, *J. Appl. Phys.*, **69**, 4774 (1991).
- [30] A. Berkowitz, J.R. Mitchell, M.J. Carey, A.P. Young, S.Zhang, F.F. Spada, F.T. Parker, A. Hutten, and G. Thomas, *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 3745 (1992).
- [31] J.Q. Xiao, J.S. Jiang, and C.L. Chien, *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 3749 (1992).
- [32] C. Bellouard, B. Georges, G. Marchal, *J. Phys.: Condens. Matter.*, **6**, 7239 (1994).
- [33] T. L. Hylton, K.R. Coffey, M.A. Parker, and J.K. Howard., *Science*, **261**, 1021 (1993).
- [34] R. Loloee, P.A. Schroeder, W.P. Pratt Jr., J. Bass, A. Fert, *Physica B*, **204**, 274 (1995).

# **Chapitre 2**

## **Techniques expérimentales et procédures d'analyse des résultats**

## 2.1. Elaboration des échantillons.

Les échantillons utilisés pour cette étude ont été préparés à l'Université de Montréal dans les laboratoires du Groupe de Recherche en Physique et Technologie des Couches Minces (GCM), en utilisant un bâti de pulvérisation cathodique radio-fréquence (RF) en configuration triode. Les principes physiques des procédés de fabrication par pulvérisation ainsi que les diverses méthodes utilisées pour les dépôts des couches minces ont déjà été discutés dans plusieurs articles de synthèse [1,2]. La configuration du bâti de pulvérisation utilisé pour la préparation des échantillons est décrite dans la thèse de doctorat de Y. Huai [3]. Nous estimons que quelques détails relatifs aux conditions de dépôt seront néanmoins nécessaires.

Les échantillons sont élaborés sur des substrats amorphes de verre Corning 7059 et de Si(001) avec une couche d'oxyde d'une épaisseur de 3000 Å. La température du substrat pendant les dépôts est maintenue à 20 C° grâce à un circuit de refroidissement à l'eau. La distance entre la cible et le substrat est de 12 cm et la pression de base avant la pulvérisation est d'environ  $1 \times 10^{-7}$  Torr.

Nous avons préparé plusieurs séries de multicouches Ni/Fe et Co/Ag en utilisant des cibles de grande pureté (99,99). Pour une pression d'argon de 4 mTorr et une puissance RF de 200 W, les taux de dépôt sont de 0,9 Å/s pour le Fe, 1,2 Å/s pour le Ni, 0,9 Å/s pour le Co et 5,1 Å/s pour l'Ag. Les taux des dépôts sont mesurés pendant les dépôts à l'aide d'un cristal de quartz et vérifiés ensuite par des mesures de réflectivité de rayons X.

La caractérisation structurale, les mesures magnétiques ainsi que les mesures de magnétorésistance sont effectuées sur des échantillons ayant la même géométrie (Figure 2.7), définie lors du dépôt par des masques de contact.

## 2.2. Modification structurale des échantillons

### 2.2.1 Variation de la température du substrat

Pour étudier l'effet des différents traitements thermiques sur les propriétés magnétiques et de transport, nous avons déposé des multicouches Ni/Fe sur des substrats dont la température a été maintenue constante à une valeur comprise entre 100 °C et

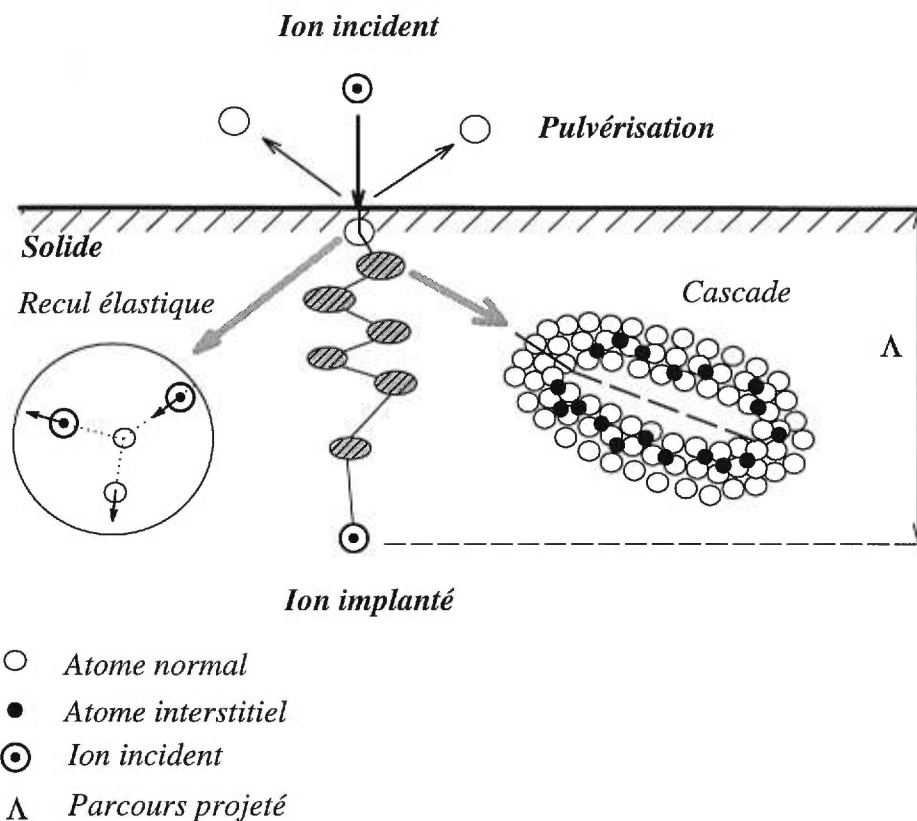


300°C. Pour éviter des contaminations dues à l'échauffement du porte-échantillon, nous nous assurons que la montée en température du substrat s'effectue lentement avec un taux de chauffage de 2°/min, jusqu'à la stabilisation à la température de dépôt. La pression de base dans la chambre de dépôt reste alors maintenue à  $\sim 8 \times 10^{-7}$  Torr.

### 2.2.2 Irradiation avec faisceaux d'ions.

Une méthode très versatile pour modifier la structure des multicouches est l'irradiation avec faisceaux d'ions. Cette technique nous permet d'induire un réarrangement très significatif au niveau atomique, aussi bien dans le volume des couches qu'à leurs interfaces. Le réarrangement près de l'interface a comme conséquence l'apparition de régions d'intermixage dont les caractéristiques dépendent de plusieurs facteurs qui sont reliés à l'interaction entre les ions incidents et les atomes cibles. Les modifications structurales résultent de l'énergie perdue par les ions incidents, autant dans des collisions électroniques (énergie transférée aux électrons libres ou liés) que dans des collisions nucléaires (énergie transférée aux atomes qui forment le réseau). C'est ce dernier type de processus qui est en grande partie responsable du transfert d'énergie entre l'ion incident et la cible.

Les interactions balistiques entre l'ion incident et le solide sont montrées schématiquement dans la Figure 2.1. Deux types de processus sont généralement considérés pour décrire les effets de l'interaction ion-solide: les *collisions directes* ion-atome avec recul élastique («*primary recoil*»), et la formation de *casades de collisions*.



**Figure 2.1:** Représentation schématique des interactions balistiques entre l'ion incident et le solide. Notons la présence de la pulvérisation de surface, des interactions ion-atome avec recul élastique ainsi que le développement des cascades de collisions.

Dans les collisions nucléaires directes *ion-atome*, l'atome cible peut acquérir une énergie substantielle dans une seule collision et être relocalisé dans le réseau, d'une façon permanente, loin de sa position d'équilibre. Ce transport net des atomes cibles constitue la forme la plus simple d'intermixage par des processus balistiques: «*recoil mixing*». La probabilité des collisions directes reste cependant très faible et le mixage qui en résulte est fortement directionnel [4]. Les expériences d'irradiation sur des couches minces contenant des atomes «marqueurs» ont montré une dispersion isotrope du déplacement de ces derniers. Ceci suggère que les collisions directes («single-collision forward momentum transfer») ne constituent pas en fait le mécanisme dominant dans le mixage balistique [5].

Par contre, si l'atome qui est relocalisé suite à un «primary recoil», continue à son tour de déplacer d'autres atomes voisins, il peut générer autour de sa trajectoire une

succession de déplacements multiples par des collisions secondaires: *une cascade de collisions*. Dans une *cascade*, et par contraste avec les collisions directes («primary recoil»), les atomes subissent une multitude de collisions de faible énergie qui ont pour résultat des déplacements secondaires isotropes non-corrélés des atomes cibles. Ce processus est connu sous le nom de *mixage en cascade* («cascade mixing»).

La plus simple description du *mixage en cascade* est de considérer seulement les effets balistiques. Dans cette approche, les réarrangements atomiques à l'intérieur d'une cascade sont modélisés comme un déplacement aléatoire avec un parcours moyen  $\langle r^2 \rangle$  et une énergie seuil  $E_d$  pour déplacer les atomes. Le processus peut donc être assimilé à une diffusion avec un coefficient de diffusion effectif  $D_{cas}$  [6]. Comme décrit dans l'article 3 (chapitre 5), ce modèle, purement balistique, prédit pour le coefficient de diffusion une dépendance linéaire à la fois avec la dose  $\Phi$  et les pertes d'énergie  $F_D$ . Ce qui semble en bon accord avec *les tendances* observées expérimentalement.

Plusieurs auteurs ont montré que les taux de mixage dans des bicouches lourdement irradiées ne peuvent pas être expliqués seulement par les effets balistiques. Les différences entre les *taux de mixages* trouvés dans les systèmes qui possèdent des propriétés balistiques très similaires (mêmes masses atomiques et mêmes densités atomiques) ont été expliquées par la différence entre leurs propriétés thermodynamiques (l'énergie de mixage  $\Delta H_{mix}$  et l'énergie de cohésion  $\Delta H_{coh}$ ) [7,8]. Si la chaleur de mixage est négative ( $\Delta H_{mix} < 0$ ), la formation des liaisons A-B sera un processus exothermique qui agit comme une force motrice pour l'intermixage des deux espèces atomiques. Quand  $\Delta H_{mix} > 0$ , l'irradiation peut produire l'intermixage à basse température. Mais si la température augmente, un processus de ségrégation des composants («*de-mixing*») peut apparaître. C'est le cas, par exemple, du système Co/Ag traité dans la troisième partie de cette thèse..

Dans les alliages où  $\Delta H_{mix} = 0$ , on doit s'attendre à ce que le taux des mixages soit déterminé essentiellement par les interactions balistiques. M. van Rossum a montré [9] que les taux de mixage des bicouches Au/Ag sont cinq fois plus grands que ceux trouvés dans les bicouches Pt/Pd ayant des propriétés balistiques très similaires. Plusieurs autres travaux sur des bicouches où  $\Delta H_{mix} = 0$ , ont conduit à la conclusion que

les taux des mixages mesurés expérimentalement ne se corrèlent pas avec les taux prédits par le modèle purement balistique Eq(2.1) [5]. C'est plutôt une corrélation entre les taux expérimentaux et l'énergie de cohésion qui a été observée:  $\frac{4\tilde{D}t}{\Phi} \propto (\Delta H_{coh})^{-2}$ ,  $\tilde{D}$  étant le coefficient chimique d'interdiffusion des deux espèces atomiques, et  $\Delta H_{coh}$  l'énergie qui maintient les atomes du matériau liés. Celle-ci est égale à la différence entre l'énergie du solide et l'énergie résultante des atomes qui le composent s'ils étaient sans aucune interaction.

Dans un modèle phénoménologique qui prend en compte explicitement  $\Delta H_{mix}$  et  $\Delta H_{coh}$ , Johnson et ses collaborateurs [10] supposent l'existence de processus de diffusion chimiquement activés («*chemically biased*») dans des cascades très denses («*thermal spikes*»). Le taux d'intermixage est donné par:

$$\frac{d(4\tilde{D}t)}{d\Phi} = K_1 \frac{F_D^2}{N_0^{5/3} (\Delta H_{coh})^2} \left( 1 + K_2 \frac{\Delta H_{mix}}{\Delta H_{coh}} \right) \quad (2.1)$$

où  $K_1$  et  $K_2$  sont des constantes d'ajustement.

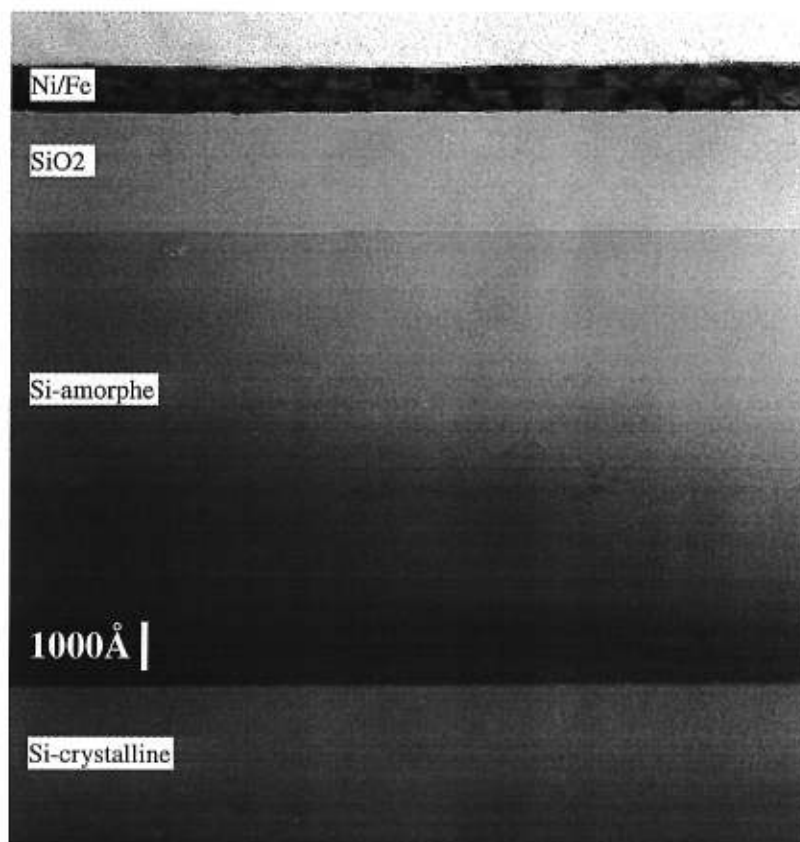
L'équation (2.3) donne des valeurs raisonnables pour les taux d'intermixage des bicouches métalliques irradiées à basse température avec des ions relativement lourds. On observe que le taux de mixage varie linéairement avec  $\Delta H_{mix}/\Delta H_{coh}$ . Le facteur de proportionnalité est déterminé autant par les effets balistiques que par l'énergie de cohésion  $\Delta H_{coh}$ . Ce modèle met aussi en évidence le fait que les matériaux avec une faible énergie de cohésion subissent une plus grande diffusion à cause des faibles barrières d'activation et des temps de vie des cascades plus longs.

Les expériences d'irradiation ont été faites à l'aide de l'accélérateur d'ions du type Tandetron de l'Université de Montréal, construit par High Voltage Engineering Europe BV. Il fournit un voltage d'accélération qui peut varier entre 50 kV et 1,7 MV, ce qui correspond à une gamme d'énergies entre 100 keV et 5 MeV pour des ions monovalents.

Les échantillons sont placés à la fin du parcours du faisceau dans une chambre à vide avec une pression de base d'environ  $10^{-7}$  Torr. Le faisceau d'ions, d'un diamètre de quelques millimètres, balaie toute la surface de l'échantillon ( $\sim 2 \text{ cm}^2$ ). Pour éviter les

effets du recuit thermique dus à l'échauffement lors de l'implantation, les échantillons sont maintenus en contact avec un porte-échantillon massif en cuivre refroidi à l'azote liquide. L'intensité du courant d'implantation est inférieure à  $50 \text{ nA/cm}^2$ .

Avec une énergie de 1 MeV, le parcours projeté des ions de  $\text{Si}^+$  est beaucoup plus grand que l'épaisseur des films utilisés dans ce travail ( $< 2000 \text{ \AA}$ ). En conséquence, très peu d'ions de  $\text{Si}^+$  restent à l'intérieur des films irradiés. De plus, le profil de dommages le long de l'épaisseur du film est relativement uniforme, dû à une faible variation de l'énergie transférée lors des collisions (électroniques et nucléaires).



**Figure 2.2:** Image TEM en coupe transverse sur une bicouche  $[\text{Fe}(500\text{\AA})/\text{Ni}(500\text{\AA})] \times 11/\text{SiO}_2/\text{Si}(100)$  irradiée avec une dose de  $1 \times 10^{17} \text{ ions/cm}^2$ . On observe la présence d'une couche de  $\text{SiO}_2$  amorphe, la formation d'une couche épaisse de Si amorphe qui définit approximativement le parcours projeté des ions de  $\text{Si}^+$  utilisés lors des expériences d'irradiation.

La Figure 2.2 présente l'image obtenue par microscopie électronique à transmission (TEM) en coupe transversale pour une bicouche  $\text{Ni}(500\text{\AA})/\text{Fe}(500\text{\AA})$

irradiée avec une dose de  $1 \times 10^{17} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ . Nous observons alors que le parcours projeté est de l'ordre de  $1,5 \mu\text{m}$ , donc beaucoup plus grand que les épaisseurs des films irradiés. Ce qui est en accord avec les simulations TRIM [11]. On constate la présence d'une couche amorphe d'oxyde de silicium  $\text{SiO}_2$  avec une épaisseur d'environ  $2000 \text{ \AA}$  ainsi que l'apparition d'une couche de Si amorphe avec une épaisseur d'environ  $9000 \text{ \AA}$ .

## 2.3. Caractérisation structurale

### 2.3.1 Diffraction des rayons X.

La diffraction des rayons X est une méthode de caractérisation structurale rapide et surtout non destructive. Elle nous permet d'obtenir de nombreux renseignements structuraux à l'échelle atomique et en particulier sur la régularité de l'empilement atomique à l'intérieur de chaque couche de la structure (texture, distances inter-réticulaires, taille des grains).

Dans les cas des multicouches, les spectres montrent l'existence de pics satellites dus à la modulation chimique de la structure. Ces effets de diffraction particuliers, dus à une périodicité artificielle imposée par l'empilement des couches de différents matériaux, peuvent être traités si on considère la multicouche comme un système unidimensionnel stratifié parfait.

#### 2.3.1.1 Diffraction par un super-réseau

Dans cette représentation très simple, le super-réseau est vu comme une succession de  $N$  bicouches de  $n_A$  plans d'atomes A espacés d'une distance  $d_A$  et  $n_B$  plans d'atomes B espacés d'une distance  $d_B$  (Figure 2.3). La valeur  $\Lambda$  de la super-période est donc  $\Lambda = n_A d_A + n_B d_B$ .

Considérons la diffraction avec un vecteur de diffusion  $\vec{q}$  perpendiculaire aux plans des couches. Il s'ensuit des réflexions sur les plans atomiques parallèles à la surface du film. Dans cette géométrie, l'intensité diffractée dans la direction du vecteur de diffraction  $\vec{q}$  s'écrit sous la forme du produit de la fonction d'interférence de Laue

$S(\vec{q})$ , caractérisant la périodicité du super-réseau, et du facteur de structure d'une bicouche  $F(\vec{q})$  [12]:

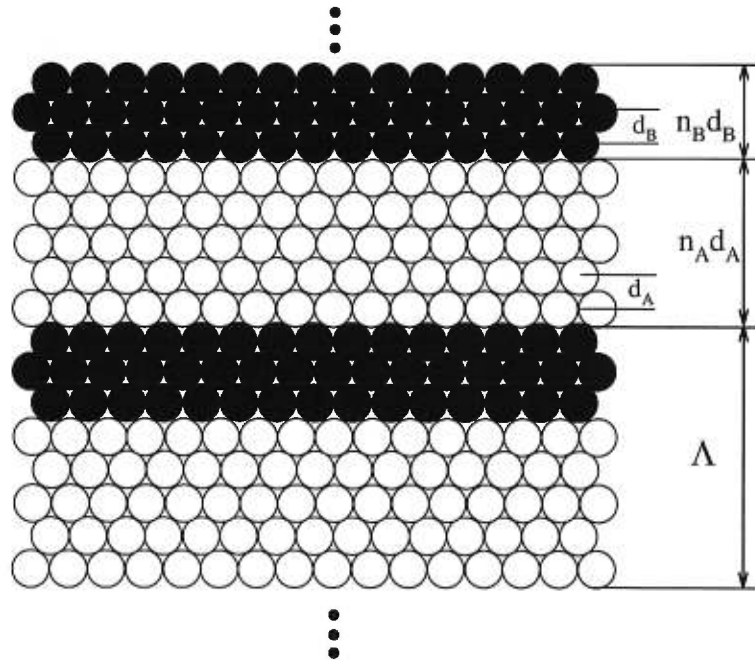
$$I(\vec{q}) \propto |f(\vec{q})|^2 = |S(\vec{q})|^2 \cdot |F(\vec{q})|^2 \quad (2.2)$$

où

$$|S(q)|^2 = \left| \frac{\sin(Nq\Lambda/2)}{\sin(q\Lambda/2)} \right|^2 \quad (2.3)$$

et

$$|F(q)|^2 = \left| f_A \frac{\sin(n_A q d_A / 2)}{\sin(q d_A / 2)} + \exp\left(\frac{iq\Lambda}{2}\right) f_B \frac{\sin(n_B q d_B / 2)}{\sin(q d_B / 2)} \right|^2 \quad (2.4)$$



**Figure 2.3:** Représentation schématique de deux bicouches dans un super-réseau parfait

Il s'ensuit que l'intensité totale présente des pics centrés sur les maxima de la fonction d'interférence  $|S(\vec{q})|^2$  dont les intensités relatives sont modulées par la fonction de diffraction  $|F(\vec{q})|^2$ .

Les maxima de  $|S(\vec{q})|^2$  sont des pics étroits centrés sur des valeurs de  $q$  égales à un nombre entier  $k$  de  $2\pi/\Lambda$  ( $q = 2k\pi/\Lambda$ ), dont la largeur à mi-maximum  $\Gamma$  est inversement proportionnelle à l'épaisseur totale du super-réseau ( $\Gamma = 2\pi/N\Lambda$ ).

La fonction  $|F(\vec{q})|^2$  est sensible à la structure atomique de la bicouche. Elle correspond à la diffraction de Bragg d'une bicouche composée de deux couches minces A et B d'épaisseurs respectives  $n_A d_A$  et  $n_B d_B$ . Elle possède des pics larges proches de  $q_A = 2n\pi/d_A$  et  $q_B = 2n\pi/d_B$  et correspondant aux pics de Bragg des matériaux massifs;  $n$  étant l'ordre de la réflexion. Les largeurs à mi-hauteur sont de l'ordre de  $2\pi/n_A d_A$  et  $2\pi/n_B d_B$ , donc beaucoup plus importantes que la largeur à mi-hauteur des pics de la fonction d'interférence  $|S(\vec{q})|^2$ , puisque  $N\Lambda \gg n_i d_i$  ( $i \equiv A, B$ ). Les positions des maxima de l'intensité totale dépendent des valeurs relatives des distances inter-réticulaires et des facteurs de diffusion atomiques des espèces A et B.

Dans le cas où les distances inter-réticulaires sont très voisines (le cas des multicouches Ni/Fe), les maxima de la fonction de diffraction,  $|F(\vec{q})|^2$  sont centrés à  $q = 2k\pi/\bar{d}$  où  $\bar{d} = (n_A d_A + n_B d_B)/(n_A + n_B)$  est la distance inter-réticulaire moyenne. Les maxima de la fonction d'interférence  $|S(\vec{q})|^2$  se superposent avec les maxima de la fonction de diffraction. L'intensité diffractée présente des pics principaux centrés sur ceux de la fonction de diffraction ( $q = 2k\pi/\bar{d}$ ). Tout autour, régulièrement espacés dans l'espace  $\mathbf{q}$ , se trouvent des pics satellites dont les intensités relatives sont modulées par la fonction  $|F(\vec{q})|^2$ . Les positions de ces derniers pics satellites permettent alors de déterminer la valeur de la superpériode  $\Lambda$  ainsi que les valeurs des distances inter-réticulaires  $d_\nu$  dans la direction de croissance (très proche de  $\bar{d}$ ).

Lorsque les distances inter-réticulaires sont très différentes (le cas des multicouches Co/Ag par exemple), la fonction de diffraction présente des maxima centrés aux valeurs  $q_\nu = 2k\pi/d_\nu$  ( $\nu \equiv A, B$ ). La fonction d'interférence présente des maxima régulièrement espacés qui ne sont plus centrés sur les maxima de Bragg correspondant à chaque élément. Dans ce cas, l'espacement des pics satellites ne permet de déterminer



que la valeur  $\Lambda$  de la superpériode et ne donne pas accès aux distances inter-réticulaires individuelles  $d_A$  et  $d_B$ .

Nous avons utilisé la diffraction des rayons X d'une manière systématique pour suivre l'évolution des paramètres structuraux avec la température de croissance, la température du recuit et la dose d'irradiation. Les mesures ont été faites en mode réflexion symétrique  $\theta/2\theta$  dans *deux plages angulaires: grands angles* ( $2\theta > 30^\circ$ ) et *petits angles* ( $2\theta < 10^\circ$ ).

### 2.3.1.2 Diffraction aux grands angles

Les spectres de diffraction aux grands angles utilisés dans ce travail ont été obtenus sur un diffractomètre Nicolet-Stœe L11 avec une anticathode en cuivre. Les rayonnements émis sont  $K_{\alpha 1}$  et  $K_{\alpha 2}$ . La divergence axiale est limitée à  $\sim 3^\circ$  par des fentes Stoller, et l'élargissement expérimental (la résolution expérimentale)  $\Delta(2\theta_0)$  pour les balayages  $\theta/2\theta$  est de  $0.15^\circ$ .

La plupart des spectres ont été enregistrés avec  $2\theta$  entre  $30^\circ$  et  $100^\circ$ . Dans cette région angulaire, les rayons X sont sensibles à la structure atomique (à travers la fonction de Bragg (Eq.(2.4)).

Un balayage  $\theta/2\theta$ , avec le vecteur de diffraction parallèle à la direction de croissance, permet d'estimer la longueur de cohérence dans la direction d'empilement. Le paramètre de maille de la couche selon la direction de croissance est déduit de la position du pic de Bragg. La largeur à mi-hauteur  $\Delta(2\theta)$  du pic traduit un relâchement des conditions de diffraction résultant de la taille finie des cristallites. La taille moyenne  $\xi$  des grains définit la longueur de cohérence le long de l'axe de croissance. Elle est donnée par la *relation de Scherrer* [13]:

$$\xi = \frac{0.94\lambda}{\cos(\theta_B) \cdot \sqrt{[\Delta(2\theta)]^2 - [\Delta(2\theta_0)]^2}} \quad (2.5)$$

où  $\Delta(2\theta)$  est la largeur à mi-hauteur des spectres mesurés expérimentalement,  $\Delta(2\theta_0)$  est la résolution instrumentale, et  $\lambda$  la longueur d'onde.

Une série de pics satellites, espacés de  $2\pi/\Delta$  dans l'espace  $q$ , est observée au voisinage des réflexions de Bragg pour les deux éléments constituant la multicouche. L'amplitude de ces pics dépend fortement du contraste de densités électroniques entre les deux couches.

Nous avons rencontré *deux situations* différentes. Dans les cas des multicouches Ni/Fe, les distances inter-réticulaires des deux éléments  $d_{Ni}$  et  $d_{Fe}$  sont très voisines, et il y a un faible contraste électronique entre les deux couches. Nous avons observé des pics de super-réseau de faible intensité centrés autour de  $q = 2k\pi/\bar{d}$  où  $\bar{d}$  correspond à la distance inter-réticulaire moyenne (très proche de  $d_{Ni}$  et  $d_{Fe}$ ). Les résultats sont présentés dans le *chapitre 5*, consacré à l'étude des multicouches Ni/Fe irradiés.

En revanche, les pics de super-réseaux sont très bien définis dans les spectres aux grands angles obtenus sur des multicouches Co/Ag. Ceci est dû au fort contraste électronique entre le Co et l'Ag et aux distances inter-réticulaires très différentes entre les plans Ag (111) et Co (200), (voir les *chapitres 7 et 8*).

Une analyse simple des spectres expérimentaux, aux grands angles, permet de calculer la valeur de la superpériode  $\Delta$  à partir des positions des pics d'ordre  $k$  et  $l$  à l'aide de l'équation:

$$\Delta = \frac{\lambda(k-l)}{2(\sin\theta_k - \sin\theta_l)} \quad (2.6)$$

L'approche, présentée ci-dessus, est très utile car elle nous permet d'ajuster les spectres de diffraction pour tous les angles de diffraction et d'obtenir des informations de base sur la structure ( $d_A$ ,  $d_B$ ,  $\Lambda$ ,  $\xi$ ). Mais cette analyse n'est pas complète pour autant, car elle ne prend pas en compte les déviations possibles de ces paramètres aux interfaces ainsi que sur toute l'épaisseur du film. Dans *les échantillons réels*, des défauts perturbent la périodicité cristalline (*défauts d'empilement, dislocations, joints de grains*) mais aussi des défauts de la super-structure (*rugosité et interdiffusion aux interfaces, variations dans les épaisseurs des couches*).

Des informations plus détaillées sur la rugosité ou l'interdiffusion à l'interface peuvent être obtenues par l'utilisation des techniques d'ajustement plus avancées, récemment proposées dans la littérature [14,15].

### 2.3.1.3 Mesures de réflectivité aux petits angles

Les mesures de réflectivité ont été réalisées à l'aide d'un diffractomètre trois-axes à haute résolution qui utilise une source de Cu de 2,2 kW. Les balayages  $\theta/2\theta$  avec un pas de  $0,001^\circ$  ont été effectués pour  $2\theta$  de  $0,3^\circ$  à  $10^\circ$  avec une résolution angulaire de  $0,0005^\circ$ .

La courbe de réflexion spéculaire (Figure 2.4 (a)) est obtenue en balayant l'angle  $\omega$  pour des valeurs inférieures à  $10^\circ$ , tout en conservant l'égalité entre l'angle d'incidence et l'angle de réflexion ( $\theta = \omega$ ). Dans cette plage angulaire, les rayons X voient un empilement des couches homogènes qui se différencie par leur densité électronique et donc par leur facteur de diffusion atomique. Les rayons X aux petits angles sont donc sensibles à la superpériodicité à travers la modulation de la composition chimique qu'elle engendre et non pas à la modulation du paramètre de maille. La courbe de réflectivité spéculaire de la Figure 2.4(b) fait apparaître deux zones angulaires bien distinctes, conséquence du fait que dans la région X du spectre, l'indice de réfraction d'une couche est inférieur à l'unité:

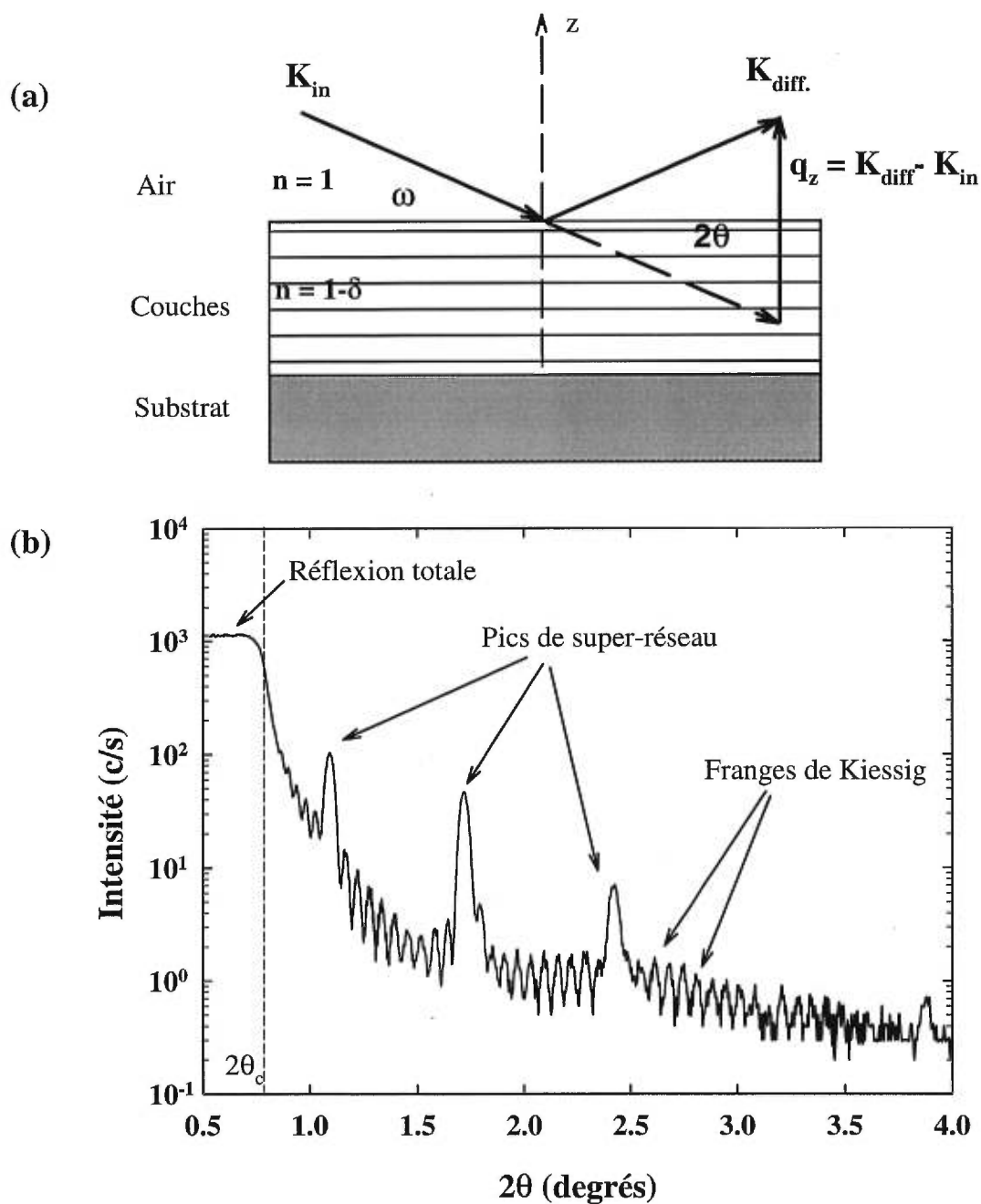
$$\bar{n} = 1 - \delta - i\beta \quad (2.7)$$

avec

$$\delta = \frac{\lambda^2 e^2}{2\pi mc^2} \rho (f_0 + \Delta f') \quad \text{et} \quad \beta = \frac{\lambda^2 e^2}{2\pi mc^2} \rho (\Delta f'') \quad (2.8)$$

où  $e^2/mc^2$  le rayon classique de l'électron,  $\rho$  la densité du matériau,  $f_0$  le facteur de diffusion atomique, et  $(\Delta f')$  et  $(\Delta f'')$  les parties réelle et imaginaire de la correction due à la diffusion anormale.

Pour les très faibles angles d'incidence, l'onde est totalement réfléchi par la surface jusqu'à un angle critique,  $\theta_c = \cos^{-1}(1 - \delta)$ , en général inférieur à  $0,5$  degrés. On observe alors un plateau de réflectivité. Lorsque les angles d'incidence deviennent supérieurs à  $\theta_c$ , les rayons X pénètrent dans la multicouche où l'absorption est non négligeable, et l'intensité réfléchi chute rapidement.



Par ailleurs une partie du faisceau incident est réfléchi par la surface de l'échantillon et une autre pénètre dans l'échantillon pour être réfléchi à l'interface substrat-couche et ressort parallèlement au faisceau incident. L'interférence entre les deux faisceaux donne lieu à un système de franges appelées franges de Kiessig [16]. Les positions de ces franges nous permettent de calculer la valeur de l'épaisseur totale du film. L'intensité de ces derniers est très sensible aux variations d'épaisseurs de la couche, c'est-à-dire aux rugosités de surface et de l'interface couche-substrat. Cette rugosité provoque une chute d'amplitude pour les franges d'ordres plus élevés, ce qui conduit à leur disparition quand l'angle d'incidence augmente.

Quand l'angle d'incidence augmente, le vecteur de diffraction croît à son tour et devient comparable à  $2\pi/\Lambda$ . Dans ces conditions, les rayons X deviennent sensibles à des périodicités comparables à la période  $\Lambda$  du super-réseau. Il apparaît alors des pics de diffraction de Bragg correspondant à la périodicité  $\Lambda$ . La position angulaire,  $\theta$ , de ces pics est reliée à la période  $\Lambda$  du super-réseau par une loi de Bragg modifiée [17]:

$$k\lambda = 2\Lambda \sin\theta \sqrt{1 + \frac{\bar{n}^2 - 1}{\sin^2\theta}} \quad (2.9)$$

où  $k$  est l'ordre de diffraction,  $\lambda$  est la longueur d'onde et  $\bar{n}$  est l'indice moyen de réfraction des rayons X, défini par l'équation (2.7).

Les pics de super-réseaux sont le résultat des interférences entre les rayons réfléchis aux interfaces et sont donc directement sensibles à l'état des interfaces. Leur nombre dépend de l'interdiffusion entre les couches, de la rugosité interfaciale et de l'écart de chaque couche autour de la valeur moyenne de la superpériode.

#### **2.3.1.4. Analyse quantitative des spectres de réflectivité de rayons X (RRX) aux petits angles.**

Pour extraire des informations quantitatives à partir des spectres RRX sur les épaisseurs des couches individuelles, la rugosité et l'épaisseur de l'interface et la rugosité de surface et du substrat, nous avons employé un programme de simulation basé sur le modèle optique. Ce programme, développé originalement par le groupe du professeur

Mark Sutton de l'Université McGill [3], utilise la méthode matricielle [18] pour calculer la réflectivité de la structure. Dans cette formulation, chaque couche individuelle est décrite par une matrice [2×2], appelée *la matrice du milieu*, dont les éléments dépendent de l'épaisseur de la couche ( $t$ ), de son indice de réfraction complexe ( $n$ ) ainsi que du vecteur d'onde du faisceau incident ( $k_i = 2\pi/\lambda$ ). Chaque interface est représentée par une multiplication de matrices décrivant le profil de composition qui caractérise la transition entre deux couches voisines. La matrice qui décrit la structure est obtenue par la multiplication des matrices individuelles de chaque couche.

La modulation de la composition chimique associée à la présence des interfaces entre deux couches A et B est décrite par une variation linéaire de la densité électronique  $\rho$  entre A et B le long de la direction de l'empilement. Pour introduire le profil linéaire de composition, l'interface est divisée en tranches d'une épaisseur de  $\sim 1 \text{ \AA}$ .

Pour déterminer les valeurs des paramètres qui caractérisent chaque multicouche, le programme de calcul est couplé à un programme d'ajustement permettant de déterminer les paramètres variables. Le programme d'ajustement utilise l'algorithme de Levenberg-Marquardt pour minimiser les moindres carrés définis comme suit:

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^N (R_i^m - R_i^c)^2 / \sigma_i^2 \quad (2.10)$$

où  $R_i^m$  et  $R_i^c$  sont les valeurs des intensités expérimentale et calculée respectivement, N le nombre total de points mesurés, et  $\sigma_i^2$ , une fonction de poids.

La méthode d'ajustement utilisé est la suivante : du fait d'un nombre important de minima locaux, l'utilisation du programme de fit n'est possible qu'après avoir approché suffisamment le profil de réflectivité expérimental. Cela se fait en variant manuellement les paramètres qui déterminent les caractéristiques du spectre de réflectivité: la position des pics de super-réseaux est déterminée par les épaisseurs de couches individuelles, et leur intensité par la rugosité et l'épaisseur de l'interface. Le profil de décroissance de la courbe de réflectivité est approché en faisant varier la rugosité de surface, la rugosité du substrat, et l'épaisseur et la densité électronique de la couche d'oxyde présente à la surface du film.

### 2.3.2. Microscopie Électronique à Transmission.

La microscopie électronique à transmission (TEM) est basée sur la diffraction des électrons accélérés à 100-300 keV, par les atomes du matériau étudié. Les deux principaux modes d'observation sont : *le mode diffraction* où l'on observe la figure de diffraction d'un objet au niveau du plan focal de l'objectif et *le mode image* qui donne une représentation physique de l'objet dans le plan image. L'observation des échantillons peut se faire en vue plane ou en section transversale.

Dans les images TEM des échantillons polycristallins en vue plane, l'intensité diffractée dépend de l'orientation des plans cristallins à l'intérieur de chaque grain. Comme cette orientation est légèrement différente pour des grains voisins, nous pouvons observer les grains individuellement et déterminer leur taille et même en déduire sa distribution. Ce type d'observation permet aussi de déterminer la texture de la couche mince ainsi que l'orientation préférentielle dans le plan de la couche.

Pour leur part, les observations TEM en section transverse sont très utiles pour étudier la qualité de l'empilement dans la direction de croissance. Ces observations nous permettent de connaître les épaisseurs des couches individuelles, d'étudier la qualité des interfaces et aussi de déterminer la taille des grains dans la direction de croissance.

Compte tenu des fortes interactions électron-matière, les échantillons destinés à l'observation TEM, doivent être suffisamment minces pour permettre la transmission des électrons. Les échantillons pour les observations en section transversale sont d'abord clivés en morceaux de  $2 \times 4 \text{ mm}^2$  et ensuite collés face à face. Des lames avec une épaisseur approximative de 0,4 mm sont ensuite coupées à l'aide d'une scie en diamant, collées sur un support en verre de pyrex et polies mécaniquement et perpendiculairement aux plans des couches pour affiner le film à 20–25  $\mu\text{m}$ . L'amincissement final, jusqu'à une épaisseur transparente pour les électrons ( $\sim 500 \text{ \AA}$ ) est effectué à l'aide d'un amincisseur ionique muni d'un porte-échantillon refroidi à l'azote liquide. Nous avons veillé à réduire progressivement l'angle d'incidence du faisceau d'ions  $\text{Ar}^+$  ainsi que leur énergie, de  $15^\circ$  à  $11^\circ$  et de 5 keV à 3,5 keV respectivement, et ce, pour minimiser les artefacts causés par l'irradiation. Les échantillons utilisés pour les vues planes sont

obtenus par polissage mécanique de la face arrière jusqu'à une épaisseur de 30  $\mu\text{m}$  suivi d'un amincissage ionique.

Les images TEM, en vue plane et en section transversale, présentées dans cette thèse, ont été effectuées sur un microscope Philips CM12 opérant à 120 kV.

## **2.4. Caractérisation des propriétés magnétiques et de transport.**

### **2.4.1 Mesures magnétiques**

Pour mesurer le moment magnétique total,  $\mu$ , d'un échantillon en fonction du champ magnétique appliqué et de la température, nous avons utilisé deux appareillages différents, selon les exigences spécifiques des expériences à effectuer. Les deux méthodes sont basées sur la mesure de la variation de flux  $\Delta\Phi$ , proportionnelle au moment magnétique  $\mu$ , provoquée par le déplacement périodique de l'échantillon.

#### **a) Magnétomètre à échantillon vibrant**

Le magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) est un instrument assez simple et très efficace pour la mesure des moments magnétiques. L'échantillon est fixé au bout d'un support rigide, non-magnétique, qui oscille verticalement au centre des bobines de détection (B), montées en série-opposition (Figure 2.5). La variation de flux est induite par les oscillations verticales ( $z(t) = z_0 \cos(\omega t)$ ) de l'échantillon avec une amplitude de 1,5 mm et une fréquence de 84 Hz. Le signal alternatif induit par les oscillations de l'échantillon aimanté est analysé à l'aide d'un amplificateur à détection synchrone dont la tension de référence est celle qui fait vibrer l'échantillon. Le moment,  $\mu$ , proportionnel à l'amplitude  $e_0 = \alpha \mu$  du signal induit, peut être ainsi déterminé.

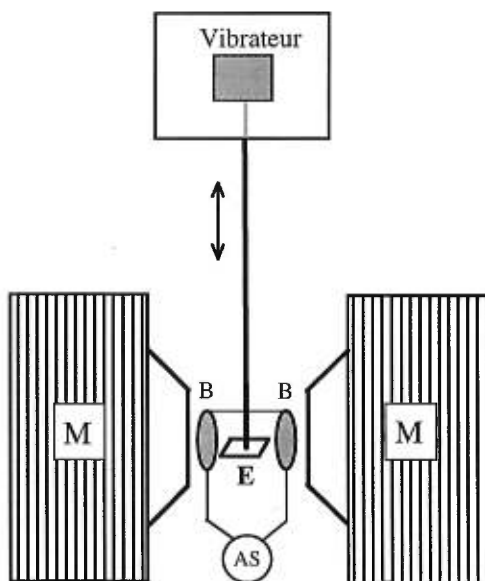
Le VSM utilisé pour ce travail utilise d'un vibreur de la compagnie Princeton Applied Research. Le champ maximal de 8 kOe et la sensibilité sur le moment mesuré est de  $10^{-5}$  uem. Le support de l'échantillon peut tourner de 360°, et le champ magnétique peut être appliqué à n'importe quel angle dans le plan de l'échantillon. L'expérience est pilotée par un ordinateur qui enregistre automatiquement le moment magnétique mesuré à chaque valeur du champ appliqué. Le cycle d'hystérésis ainsi obtenu, nous permet de



déterminer l'aimantation à la saturation  $M_s$ , l'aimantation rémanente  $M_r$  et le champ coercitif  $H_c$  (figure 2.6).

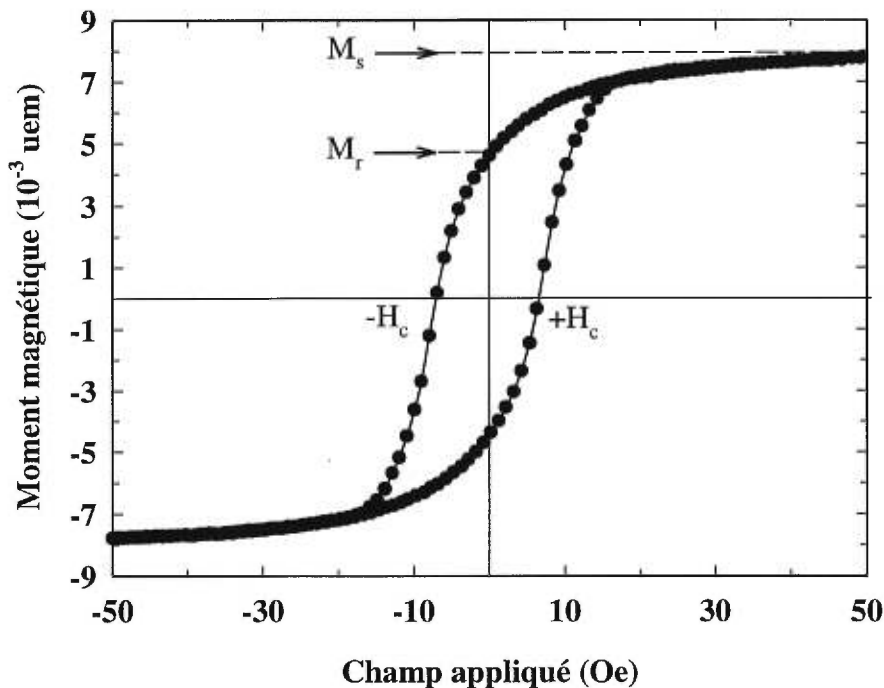
### b) Magnétomètre à extraction

Pour mettre en évidence les phénomènes de blocage superparamagnétique des particules de Co et déduire leur taille moyenne, nous avons fait des mesures d'aimantation en fonction de la température après refroidissement en absence de champ magnétique (ZFC) et en sa présence (FC) successivement. Pour cela, nous avons utilisé un magnétomètre couplé à une unité de mesure «Quantum Design Physical Property Measurement System». Cet appareil est basé sur la méthode d'extraction classique et il est conçu pour des mesures précises en champs faibles avec de très petits pas de variation en champ et en température. Il sert à la fois pour des mesures d'aimantation DC et de susceptibilité AC. Dans ce dispositif, l'échantillon aimanté est déplacé entre les centres d'un couple de bobines en série-opposition, de sorte que le flux total traversant la paire de bobines soit nul.



**Figure 2.5:** Schéma de principe du magnétomètre à échantillon vibrant. M représente l'électroaimant, B les bobines de détection, AS est l'amplificateur synchrone, et E l'échantillon.

Aux moins quatre extractions sont effectuées pour chaque valeur du champ appliqué. La température de mesure peut varier entre 1,9 K et 300 K, et le champ magnétique maximal disponible est de 9 T.

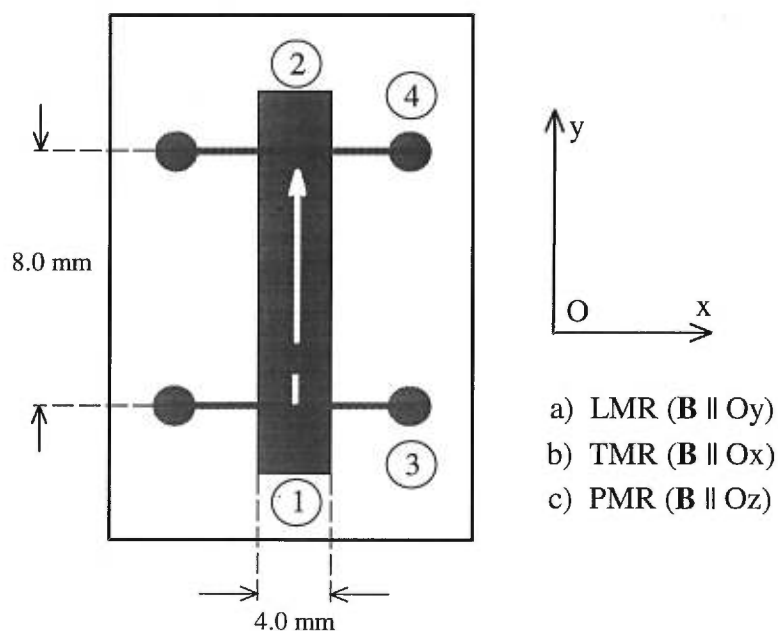


**Figure 2.6:** Courbe d'aimantation mesurée sur une bicouche [Fe(500Å)/Ni(500Å)]/SiO<sub>2</sub>

#### 2.4.2 Mesures de magnétorésistance

Les mesures de magnétorésistance sont effectuées sur un appareil développé au laboratoire [19] qui exploite de la technique classique de mesure en courant alternatif avec contacts en quatre pointes afin de s'affranchir de toute perturbation d'origine thermoélectrique. L'appareil permet la mesure des résistances entre  $10^{-2}$  et  $10^2 \Omega$  avec une sensibilité de  $5 \times 10^{-6} \Omega$ . Le champ magnétique, d'une valeur maximale de 15 kOe, est produit par un électroaimant ayant une base tournante pour permettre l'application du champ magnétique à n'importe quel angle par rapport à la direction du courant (Figure 2.7). Le courant est appliqué dans la direction Oy et la magnétorésistance est mesurée selon 3 configurations du champ: (a) dans le plan du film et parallèle au courant (magnétorésistance longitudinale LMR), (b) dans le plan du film et perpendiculaire au

courant (magnétorésistance transverse TMR), et (c) champ magnétique perpendiculaire au plan du film (magnétorésistance perpendiculaire PMR).



**Figure 2.7:** Représentation schématique des géométries utilisées pour les mesures de magnétorésistance et des dimensions des échantillons.

## Références

- [1] S.M. Rossnagel, dans *Thin Film Processes II*, edited by J.L. Vossen and W. Kern, (Academic Press, New York, 1991) p. 11, et R. Parsons., *ibid.* p. 177.
- [2] W.D. Westwood, *MRS Bull. B* **2**, 1282 (1970).
- [3] Y. Huai, Thèse de Doctorat, Université de Montréal, p. 9 (1992).
- [4] S. Matteson and M-A. Nicolet, *Mater. Res.Soc. Symp. Proc.*, **7**, 3 (1982).
- [5] M. Nastasi and J.W. Mayer, *Mater. Scie. Eng.*, **R 12**, No. 1 (1994).
- [6] P. Sigmund and A. Gras-Marti, *Nucl. Instrum. Meth.*, **182/183**, 25 (1981).
- [7] H. Westendrop, Z-L. Wang and F.W. Saris, *Nucl. Instrum. Meth.*, **194**, 543 (1982).

- 
- [8] Y.T. Cheng, M. Van Rossum, M-A. Nicolet and W. L. Johnson, *Appl. Phys. Lett.* **45**, 185 (1984).
- [9] M. van Rossum, Y.T. Cheng, M-A. Nicolet and W. L. Johnson, *Appl. Phys. Lett.* **46**, 610 (1985).
- [10] W. L. Johnson Y.T. Cheng, M. Van Rossum, and M-A. Nicolet, *Nucl. Instrum. Meth.*, **B7/8**, 657 (1985).
- [11] J.F. Ziegler and J.P. Biersack, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, Pergamon Press, New York, 1985.
- [12] M. Piecuch and L. Nevot, dans *Metallic Multilayers*, éditeurs: A. Chamberod et J. Hillairet, *Materials Science Forum*, 59-60 (1990).
- [13] B.E. Warren , *X-Ray Diffraction*, Addison-Wesley, (1969), p. 253.
- [14] F.J.Lamelas, H.D. He and R. Clarke, *Phys. Rev. B* **43**, 12296 (1991).
- [15] J.P. Locquet, D. Neerincq, L. Stockman, Y. Bruynseraede, and I.K. Schuller, *Phys. Rev. B* **39**, 13338 (1989).
- [16] H. Kiessig, *Ann. Physik*, **5**, 715 (1931).
- [17] B.K. Agravall, *X-ray Spectroscopy- An introduction* (Springer-Verlag, Berlin, 1979).
- [18] M. Born, and E. Wolf, *Principles of Optics* (Pergamon Press, Oxford, London, 1964), p. 57.
- [19] R.W. Cochrane, B.J. Kastner and W.B. Muir, *J. Phys. E* **15**, 425 (1982).

## **Partie II**

**L'étude des propriétés magnétiques et de transport des  
multicouches Ni/Fe**

## Présentation des articles

La deuxième partie de cette thèse est consacrée à l'étude des propriétés magnétiques et de transport des multicouches composées de matériaux ferromagnétiques uniquement. Dans les quatre articles (*Chapitres 3 à 6*) qui la composent, nous présenterons en détail les travaux que nous avons réalisés sur les multicouches et bicouches Ni/Fe.

**Article 1:** *Magnetic and magnetotransport properties of Ni/Fe multilayers.*

(J. Appl. Phys. **79** (8), 6289 (1996))

*Auteurs:* M.Cai, T.Veres, R.Morel, and R.W.Cochrane .

Cette étude a été menée pour évaluer l'importance relative des contributions volumiques et de l'interface sur la résistivité et l'AMR dans les multicouches Ni/Fe tel que déposés. Nous présentons dans *ce premier article* les résultats obtenus sur deux séries des multicouches Ni/Fe, et ce, en faisant varier le nombre des interfaces ainsi que l'épaisseur individuelle des couches de Ni et de Fe, tout en gardant constante l'épaisseur totale du film. Nous avons notamment pu montrer à l'aide d'un modèle semi-classique, dérivé du modèle de Caria et Suna, que les interfaces contribuent à la résistivité des multicouches.

Contribution de l'auteur: j'ai participé à la préparation des échantillons, à l'analyse et à la discussion des résultats ainsi qu'à la rédaction et la révision de l'article.

**Article 2:** *Deposition-temperature dependence of texture and magnetic properties of sputtered Ni/Fe multilayers* (J. Appl. Phys. **81** (8), 4758 (1997)).

*Auteurs:* T.Veres, M.Cai, R.Morel, and R.W.Cochrane,

L'influence de la température du substrat lors du dépôt sur la structure cristalline, les propriétés magnétiques et de transport est présentée dans le *deuxième article*. Nos résultats, obtenus sur une série de multicouches Ni/Fe, montrent un changement significatif dans la texture des films au-delà d'un certain seuil. Les mesures de réflectivité montrent qu'un processus d'intermixage progressif à l'interface Ni/Fe accompagne cette évolution. La résistivité et la coercivité ont une variation non

monotone due à une compétition entre la croissance des grains et l'intermixture à l'interface.

**Article 3:** *Ion-beam irradiation mixing of the Ni/Fe interface and their effect on the transport and magnetic properties in Ni/Fe multilayers.*

(Soumis à Thin Solid Films, septembre (1999))

*Auteurs:* T. Veres, M. Cai, R. W. Cochrane, M. Rouabhi, S. Roorda,  
and P. Desjardins,

Dans le *troisième article* nous présentons une étude systématique des effets de l'irradiation ionique à basses températures avec des ions de  $\text{Si}^+$  de 1 MeV, en fonction de la dose. Nous nous sommes particulièrement intéressés à la caractérisation quantitative des effets de l'irradiation sur la structure en multicouche à l'aide des mesures de réflectivité des rayons X (RRX) aux petits angles. L'analyse quantitative du patron de réflectivité à l'aide d'un modèle optique, nous a permis de suivre, avec une résolution *de quelques Angströms*, les changements structuraux induits par le bombardement ionique. Nous avons réussi à corréler l'évolution structurale des interfaces Ni/Fe avec l'évolution des propriétés magnétiques et de transport, mise en évidence par des mesures de résistivité, de magnéto-résistance et des mesures d'aimantation. De plus, nous avons mis en évidence des effets d'intermixture près des interfaces externes *substrat/film* et *film/air*. La complexité de la structure et l'effet des interfaces Ni/Fe nous ont empêchés cependant de clarifier l'influence spécifique des interfaces externes sur les propriétés magnétiques et de transport. Ceci a motivé l'étude des effets de l'irradiation sur un *système modèle* constitué d'une bicouche Ni(500Å)/Fe(500Å).

**Article 4:** *Structural modifications induced by 1 MeV  $\text{Si}^+$  ion-beam irradiation in Ni/Fe bilayers and their effects on the anisotropic magnetoresistance and magnetic properties* (Soumis à Thin Solid Films, septembre (1999)).

*Auteurs:* T. Veres, P. Desjardins, R.W. Cochrane, M. Cai, M. Rouabhi,  
L. Cheng, R. Abdouche and M. Sutton.

Cet article est né du besoin de mieux caractériser l'évolution des deux interfaces externes *substrat/film* et *film/air* ainsi que leurs effets sur le comportement magnétique. De plus, nous étions intéressés à quantifier l'évolution des grains, aussi observée dans les multicouches irradiées, notamment la croissance latérale et perpendiculaire.

Les expériences de diffraction de rayons X à grands et petits angles, corrélées aux observations TEM à haute résolution ont rendu possible une analyse précise de l'évolution structurale à divers stages du processus d'irradiation. Nous avons mis en évidence une forte augmentation de la taille latérale et perpendiculaire des grains, ainsi que la formation des couches d'oxydes près du substrat et de la surface du film. De plus nous avons mis en évidence l'influence marquante des interfaces externes sur les mécanismes d'aimantation.

*Contribution de l'auteur (articles 2, 3 et 4)*

Tout en bénéficiant de la supervision de mon directeur de thèse R.W. Cochrane, ainsi que de l'expertise de mes différents collaborateurs (discussions et analyses), j'ai préparé les multicouches, fait toutes les mesures expérimentales ainsi que l'analyse des courbes de réflectivité, de magnétorésistance et d'aimantation. Après quoi, j'ai rédigé les articles.

Pour l'article 4, j'ai pu bénéficier de l'aide de P. Desjardins qui a réalisé les observations et l'analyse des images TEM, ainsi que de L. Cheng et R. Abdouche qui ont effectué les mesures de diffraction et de réflectivité.



## **CHAPITRE 3**

### **Propriétés magnétiques et de transport des multicouches Ni/Fe**

M. Cai, T. Veres, R. Morel, and R.W. Cochrane

Publié dans *Journal of Applied Physics*, **79** (8), 6289-6291 (1996)

## **Magnetic and magnetotransport properties of Ni/Fe multilayers**

M. Cai, T. Veres, R. Morel, and R.W. Cochrane

*Groupe de recherche en physique et technologie des couches minces (GCM),  
Département de physique, Université de Montréal, CP 6128 succ. centre-ville, Montréal  
QC, H3C 3J7, Canada*

### ***ABSTRACT***

We present a study of sputtered Ni/Fe multilayers in order to examine the effect of interfacial mixing and interdiffusion on the magnetic and transport properties. The multilayer structure has been examined by low-angle X-ray reflectivity, which reveals interface mixing of about two monolayers. The magnetization measurements show differences in the anisotropy of multilayers where the ratio of nickel to iron is changed from 1:1 to 3:1. With the 1:1 composition, multilayers show high permeability with a longitudinal easy axis, while samples with 3:1 composition show lower permeability and a rotated easy axis. By fitting the resistivity and magnetoresistance thickness variation with a semi-classical model, we have determined an interface contribution to the resistivity and a possible contribution to the magnetoresistance.

## ***INTRODUCTION***

Since the discovery of new transport and magnetic properties in magnetic/non-magnetic multilayers, the study of modulated metallic nanostructures has become a very active field of research. On one hand, this interest is driven by the need to design materials with magnetic, magneto-optic and magnetotransport properties suited for high density magnetic recording. On the other hand, these artificially structured materials are also proving to be important for understanding the fundamental physics of interacting magnetic thin films. In multilayers where the individual layers are only a few atomic planes thick, one aspect which needs to be addressed is the nature and the role of the interfaces in the structural, magnetic and electronic properties of the ensemble. In addition, the structure and properties of individual layers within the multilayers are often different from those of bulk materials, which in turn leads to multilayer properties distinct from those of bulk alloys of the same constituents.

Recently, it has been found that in Ni/Co multilayers this combination of factors produces a relatively large anisotropic magnetoresistance with low saturation fields [1]. Moreover, recent results show oscillations of the magnetoresistance with cobalt and nickel thicknesses, probably due to a superlattice effect [2]. In the case of Ni/Fe multilayers, previous studies have found that for thicknesses below  $\sim 20$  Å the iron is in an fcc phase [3], and theoretical calculations predict that this phase may be anti-ferromagnetic [4]. In the same thickness range, Mössbauer spectroscopy on vacuum deposited Ni/Fe multilayers points to a ferromagnetic fcc iron phase, with an out-of-plane anisotropy [5]. As NiFe alloys are technologically very important due to their magnetoresistive and soft magnetic properties, it is of interest to look at how the magnetic and magnetoresistive properties are influenced by the layering of nickel and iron in a modulated structure.

## ***EXPERIMENTAL DETAILS***

We present magnetic and magnetoresistance measurements on  $(\text{Ni}_x\text{Fe}_y)_n$  multilayers deposited by RF magnetron sputtering, as described by Huai *et al* [6]. With a sputtering

pressure of 3 mtorr of argon gas (99.999%) and an RF power of 200 W, the deposition rates were 1.2 Å/s for Fe and 2.1 Å/s for Ni and, hence, the residence time of the substrate above the targets was used to control the layer thickness in the range from 12 Å to 110 Å. The number of periods was chosen so that the total thickness was kept constant at ~1200 Å. Since two films were deposited simultaneously, the first layer is alternatively iron or nickel. A mask over the substrate in the form of strips, 16 mm long and 4 mm wide with side-arms for electrical contacts defined the sample shape. Finally, pure nickel and iron layers of approximately the same thicknesses were deposited for comparison.

Nominal thicknesses were confirmed by DEKTAK and low-angle X-ray-reflectivity measurements. Coercive fields and remanences were measured at room temperature using a vibrating sample magnetometer. However, due to the large non-symmetric area of the samples, it was not possible to obtain an absolute measurement of the magnetization. Transport properties under magnetic field were also measured at room temperature, using a high-resolution AC bridge. In order to account for the history-dependent zero-field resistivity, the total anisotropic magnetoresistance (AMR) was measured as the difference in resistivity when the sample is rotated in a saturating field.

## ***RESULTS AND DISCUSSION***

Figure 1 shows low angle X-ray reflectivity spectra of a  $(\text{Ni}_{60}\text{Fe}_{30})_{11}$  multilayer. The spectra exhibit well-developed Bragg superlattice peaks up to the fifth order (not shown), indicating a sharply-defined composition modulation in the film growth direction. Note that, in the figure, the third order peak is suppressed, as expected for a 2:1 ratio of Ni and Fe. Also, finite size oscillations appear between the Bragg peaks due to the eleven bilayers present in the multilayer, suggesting the smooth nature of the films.

To estimate the interfacial mixing width, the experimental data are fitted using a standard optical model [6, 7], in which the X-ray reflectivity is calculated using a matrix method. In order to include interfacial mixing, a linear composition profile is

assumed at the interface. In addition, the global interface roughness and layer thickness fluctuations are included to simulate a real situation. Further details of the fitting procedure have been described elsewhere [6]. The resulting fitted curve is also presented in figure 1 and is clearly in good agreement with the experimental data. An interfacial width of 5 Å is obtained from this fitting, setting an upper limit on the interdiffusion in our samples.

Figure 2 shows magnetization curves for multilayers from two series, measured in longitudinal (along the long axis of the sample) applied field, where the magnetization values are normalized relative to the magnetization of a pure iron layer of equal thickness. On this relative scale, the nickel film gives a saturation magnetization of 0.25 which is slightly less than the ratio of the bulk values for Ni and Fe. Unfortunately, since the absolute values are unknown, it is not possible to determine from these measurements how the Ni and Fe magnetizations depart from their bulk values. Nevertheless, the magnetization of all the multilayers can be fully accounted for using an identical ratio of 0.25 between the magnetizations of the individual Ni and Fe layers. This ratio precludes the possibility of an antiferromagnetic iron phase, as suggested by Taylor *and al* [4].

The shape of the magnetization curves of figure 2 are reminiscent of those of the pure sputtered films in that the multilayers with greater Ni thicknesses ( $x = 3y$ ) have higher coercive fields  $H_c$  and reduced remanence  $M_r$  than samples with equal Ni and Fe thicknesses ( $x = y$ ). On the other hand, all multilayers show a smaller coercivity and remanence than the elemental films.

In figure 3 are presented the angular dependences of  $H_c$  and  $M_r$  for the multilayers of the previous figure. These curves, representative of all the multilayers within the same series, show that with equal thicknesses of Ni and Fe, the coercive field is almost constant and the remanence is higher when the saturating field is longitudinal, indicating an easy axis in that direction. However, in multilayers where  $x = 3y$ , both  $H_c$  and  $M_r$  show the presence of an easy axis at some direction varying between 120° and 150° to the sample axis.

The resistivity and magnetoresistance are presented in figure 4. The resistance is found to increase and the AMR to decrease as the Ni layer thickness decreases. In single layer thin films, this behaviour is expected when the thickness of the layer becomes of the order of the mean free path. In multilayers, the thickness variation of the resistivity also depends on the effect of the interface on the conduction electron scattering. To assess this contribution, the results were fitted with a semi-classical model, derived from Carcia and Suna [8], in which each layer is characterized by its mean free path  $\lambda$  while the interfaces are represented by an angle-dependent transmission coefficient  $T$  (details of the model will be presented elsewhere [9]). The fitted resistivity presented in figure 4 are obtained with  $\lambda_{\text{Ni}} = 37.5 \text{ \AA}$ ,  $\lambda_{\text{Fe}} = 15 \text{ \AA}$ , and  $T = 0.8$ ; these mean free paths correspond to bulk resistivities of  $16 \mu\Omega\text{cm}$  for nickel and  $40 \mu\Omega\text{cm}$  for iron, values very close to those measured for the pure films. Moreover, the fit is quite sensitive to the choice of the transmission parameter, which is indicative of the importance of the interface contribution to the resistivity.

In order to calculate the AMR we introduce an asymmetric mean free path in the form  $\lambda = \lambda_0(1 + a \cos^2\theta)$ , with  $a$ , the asymmetry parameter, and  $\theta$ , the angle between the electron velocity and the magnetization [10]. Because the bulk magnetoresistance of iron is ten times smaller than that of nickel, we assume that the anisotropy comes solely from the nickel layers. Also, no attempt was made to account for an interface contribution. As can be seen, the fit for AMR obtained with  $a = 0.05$  in the series with equal thicknesses and  $a = 0.04$  in the series with  $t_{\text{Ni}} = 3t_{\text{Fe}}$  is not as good as that for the resistivity. This observation points to a possible contribution from the interface which could be included in the calculation, for instance by considering for  $T$  a dependence on the angle between the electron velocity and the direction of the magnetization.

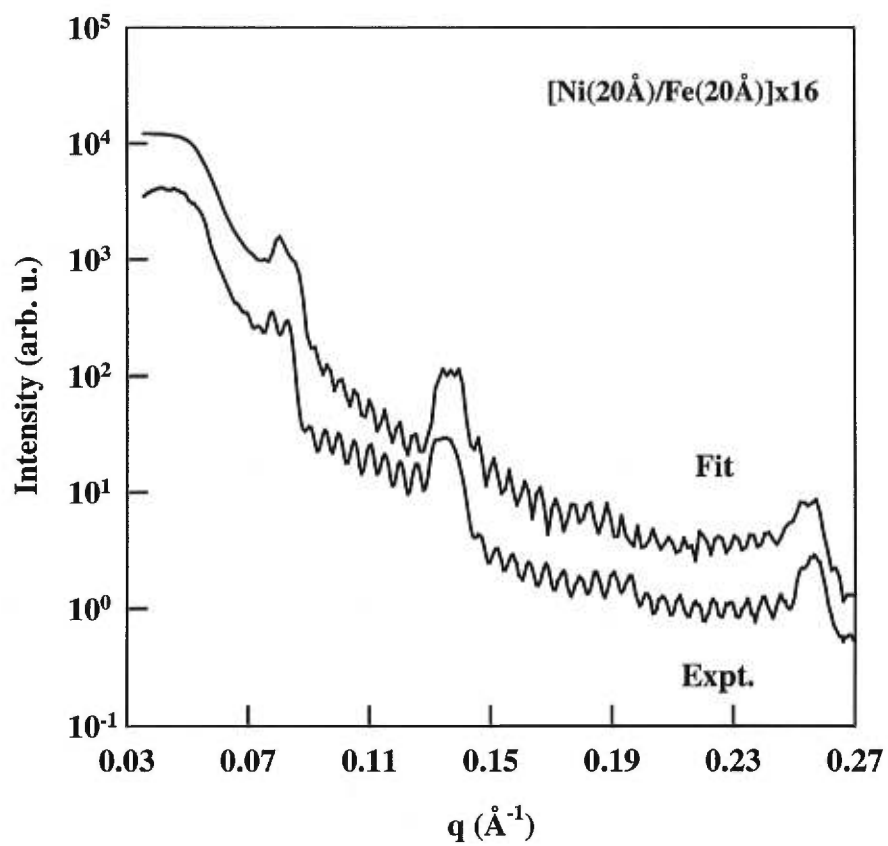
## ***CONCLUSION***

Low-angle X-ray reflectivity indicates that the sputtered Ni/Fe multilayers have good structural properties, with low roughness and an interface mixing of approximately 2 ML. The magnetization is well described by a simple average of the magnetizations of pure nickel and iron thin films; the remanence and coercivity are reduced from those of

the bulk materials, due possibly to the finite width of the interface region. The high permeability of these multilayers leads to an enhanced sensitivity of the magnetoresistance to small field changes (0.1%/Oe), comparable to that found in high sensitivity Ni/Co multilayers [2]. Furthermore, the analysis of the thickness dependence of the resistivity and AMR, based upon a semi-classical model, reveals that the increase in resistivity at low thicknesses and the variation in magnetoresistance can not be explained without an interface contribution.

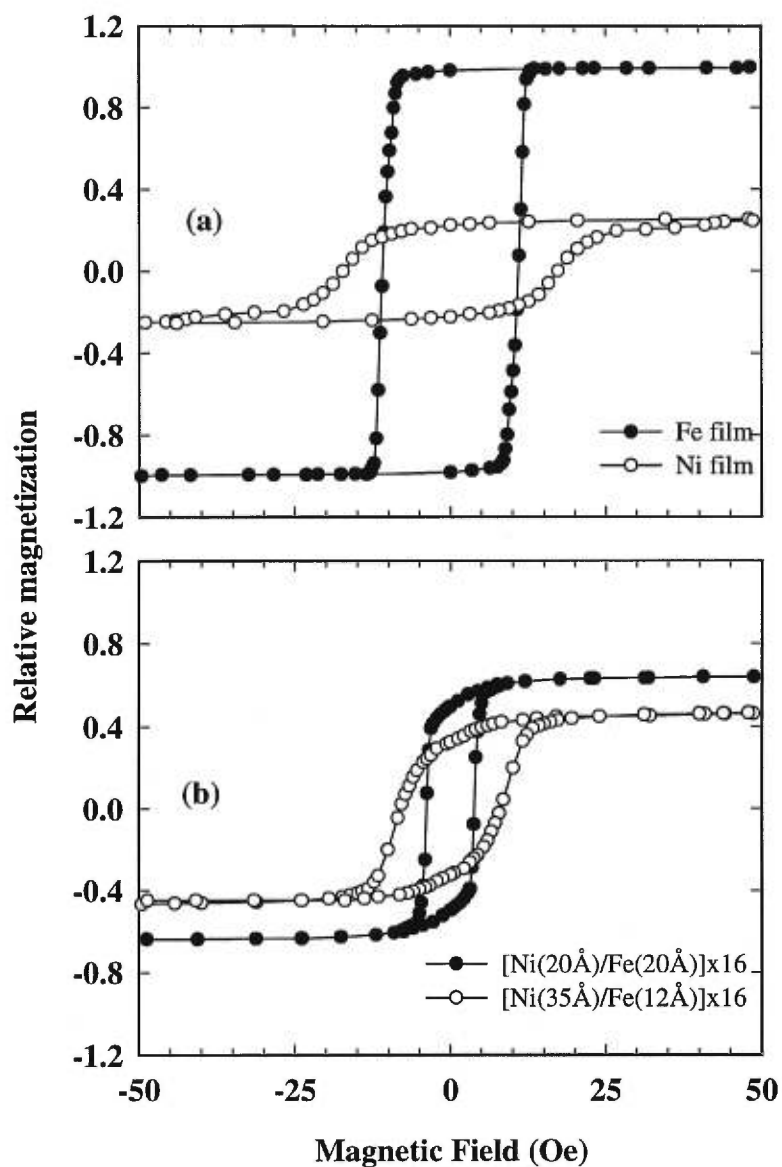
### **REFERENCES**

- [1] J.M. Gallego, D. Lederman, T.J. Moran, and I.K. Schuller, *Appl. Phys. Lett.* 64, 2590 (1994); J.M. Freitag, X. Bian, Z. Altounian, J.O. Ström-Olsen, and R.W. Cochrane, *MRS-Spring Meeting Proceedings* (1995).
- [2] J.M. Gallego, D. Lederman, S. Kim, and I.K. Schuller, *Phys. Rev. Lett.* 74, 4515 (1995).
- [3] N.M. Jennett and D.J. Dingley, *J. Magn. Magn. Mater.* 93, 472 (1991); R. Krishnan, H.O. Gupta, H. Lassri, C. Sella, and M. Kaabouchi, *J. Appl. Phys.* 70, 6421 (1991).
- [4] M.B. Taylor and B.L. Gyorffy, *J. Phys.: Condens. Matter* 3, 4971 (1991).
- [5] E. Colombo, O. Donzelli, G.B. Fratucello and F. Ronconi, *J. Magn. Magn. Mater.* 104-107, 1857 (1992).
- [6] Y. Huai, R.W. Cochrane, and M. Sutton, *Phys. Rev. B* 48, 2568 (1993).
- [7] M. Born and E. Wolf, *"Principles of optics"*, Pergamon Press, Oxford (1964).
- [8] P.F. Carcia, and A. Suna, *J. Appl. Phys.* 54, 2000 (1983); R.Q. Hood, and L.M. Falicov, *Phys. Rev. B* 46, 8287 (1992).
- [9] T. Veres, M. Cai, R. Morel, and R.W. Cochrane, to be published.
- [10] T.G.S.M. Rijks, R. Coehoorn, M.J.M. de Jong, and W.J.M. de Jonge, *Phys. Rev. B*, 51 (1995).

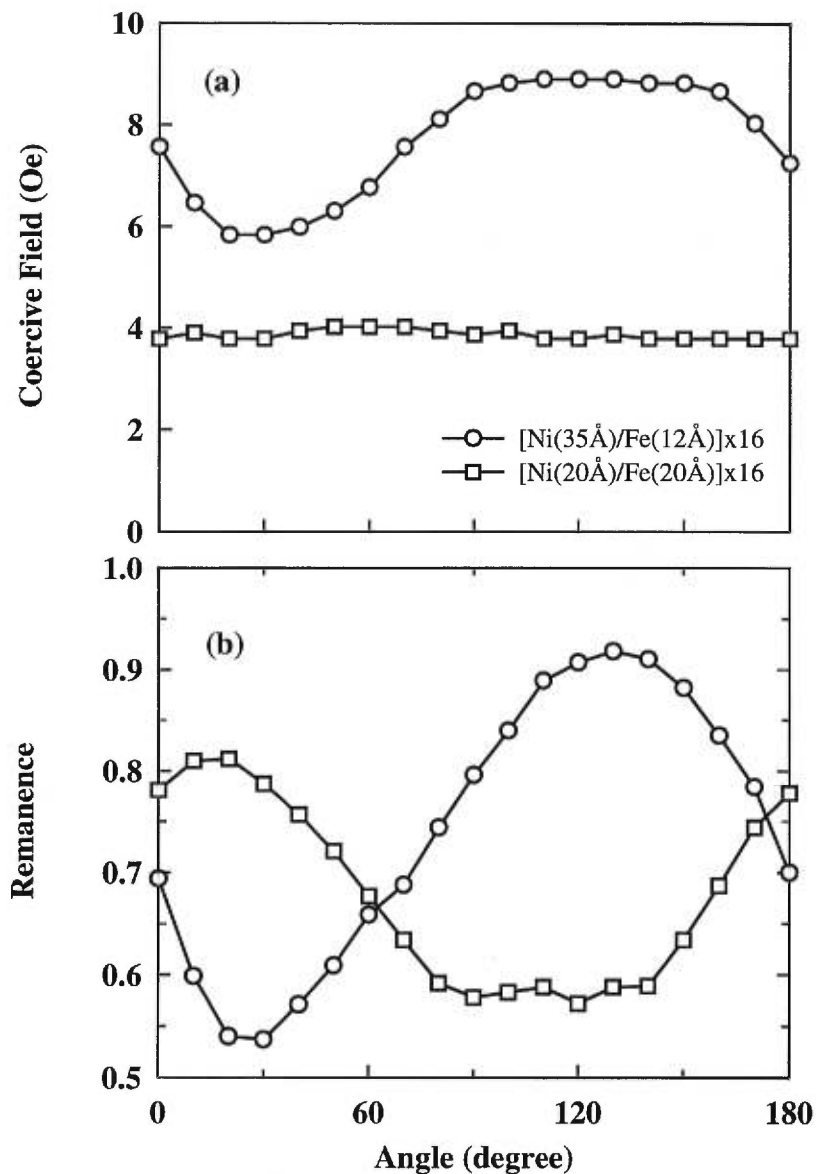


**Figure 1:** Low angle X-ray reflectivity spectra for  $(\text{Ni}_{60}/\text{Fe}_{30})_{11}$ . The lower curve is experimental while the upper curve, shifted for clarity, is the fit described in the text.

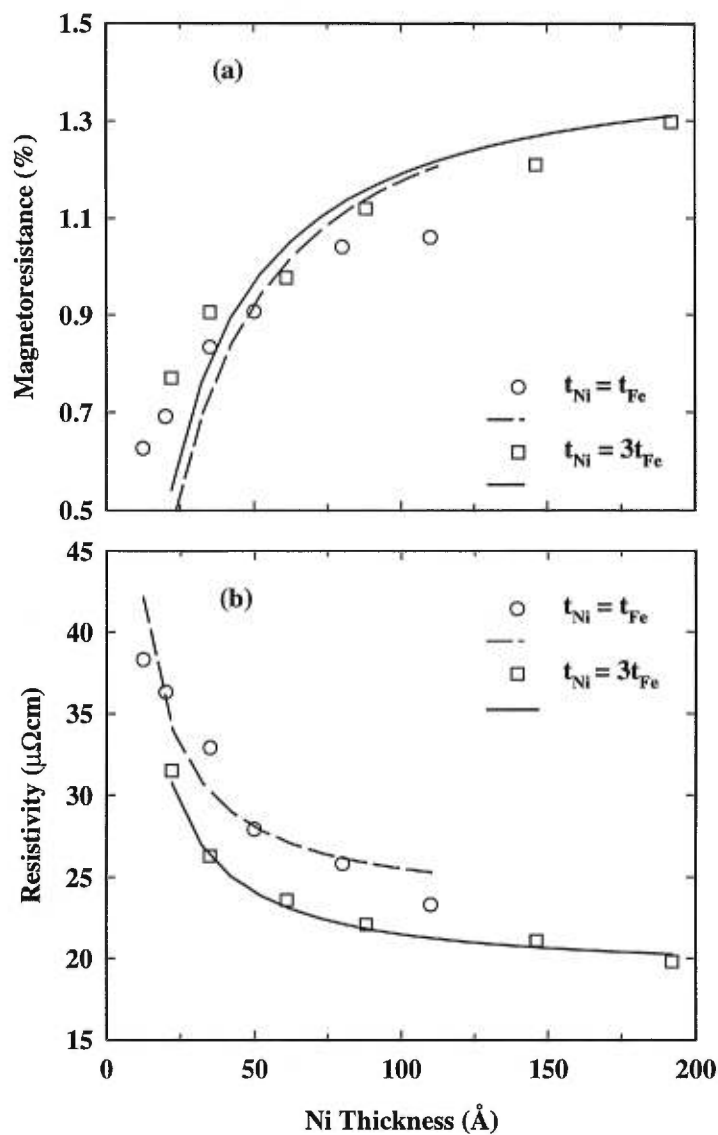




**Figure 2:** Magnetization of a) pure nickel and iron thin films and b)  $(\text{Ni}_{20}/\text{Fe}_{20})_{16}$  and  $(\text{Ni}_{35}/\text{Fe}_{12})_{16}$  multilayers. In all cases, the applied field is in the longitudinal direction and the magnetizations are normalized relative to that of an iron film of equal thickness.



**Figure 3:** Coercive field (a) and remanence (b) of  $(\text{Ni}_{20}/\text{Fe}_{20})_{16}$  and  $(\text{Ni}_{35}/\text{Fe}_{12})_{16}$  multilayers as a function of the angle between the applied field and the longitudinal direction of the multilayer strips.



**Figure 4:** (a) Anisotropic magnetoresistance (AMR) and (b) resistivity for Ni/Fe multilayers as a function of the nickel layer thickness. The lines have been calculated using the models and parameters described in text.

## **CHAPITRE 4**

### **L'évolution de la structure et des propriétés magnétiques des multicouches Ni/Fe en fonction de la température du substrat**

T. Veres, M. Cai, R. Morel, and R.W. Cochrane, R. Abdouche and M. Sutton

Publié dans Journal of Applied Physics, **81** (8), 4758-4760 (1997)

## **Deposition-temperature dependence of texture and magnetic properties of sputtered Ni/Fe multilayers**

T. Veres, M. Cai, R. Morel, and R.W. Cochrane

*Groupe de recherche en physique et technologie des couches minces (GCM),  
Département de physique, Université de Montréal, CP 6128 succ. centre-ville, Montréal  
QC, H3C 3J7, Canada*

R. Abdouche and M. Sutton

*Department of Physics, McGill University, Montreal QC, H3A 2T8, Canada*

### **Abstract**

We present the effect of deposition-temperature ( $T_s$ ) on the structural and magnetic properties of sputtered Ni/Fe multilayers. As  $T_s$  increases above room temperature, a systematic change in texture from (111) to (200) and an increase in grain size are observed. Superlattice modulations are clearly visible in low-angle x-ray reflectivity measurements for all the multilayers deposited up to 250 °C. However, superlattice peaks intensities decrease with increasing  $T_s$  indicating enhanced mixing of Ni and Fe across interfaces. Non-monotonic variations in electrical resistivity ( $\rho_s$ ) and coercivity ( $H_c$ ) with  $T_s$  are seen and explained in terms of the interplay between the increase in grain size and alloying at the interfaces. The total anisotropic magnetoresistance (AMR) as well as its field sensitivity increase with  $T_s$ .

## Introduction

Factors affecting structural properties of sputtered magnetic multilayers have attracted much attention in recent years. Among them, the deposition-temperature ( $T_s$ ) is thought to have a large influence on the structural properties of the film, such as interface perfection, grain size and crystallographic texture which, in turn, can influence significantly the magnetic and magnetotransport behavior. We have previously obtained good magnetoresistive properties for Ni/Fe multilayers [1] and, in this paper, extend our study to the effect of substrate temperature on this system. One aspect of particular interest is the crystalline structure of the Fe layers: for our multilayers only fcc structures are observed in which the Fe is fully magnetized.

## Experimental details

Multilayers with configuration  $(\text{Ni}86\text{\AA}/\text{Fe}29\text{\AA})_{11}$  were deposited onto Corning 7059 glass substrates at temperatures between room temperature and 300 °C in a cryopumped rf magnetron sputtering system [2]; base pressure before each deposition was less than  $2 \times 10^{-7}$  Torr. Deposition rates were 1.2 Å/s for Fe and 1.7 Å/s for Ni at an Ar (99.999%) pressure of 3 mTorr and an rf power of 200 W. Layer thicknesses were computer-controlled during deposition and subsequently verified by low-angle x-ray-reflectivity measurements performed using a high-resolution triple-crystal diffractometer. Crystallographic structures of the samples were investigated using an x-ray ( $\text{CuK}\alpha$ ) powder diffractometer at high-angles. Magnetotransport properties were measured by a standard 4-point method on a high-resolution ac bridge [3]. Magnetization curves were obtained on a vibrating sample magnetometer operating at 85 Hz with a resolution of better than  $5 \times 10^{-6}$  emu; the magnetic field was applied in the sample plane.

## Results and discussion

Figure 1 shows the high-angle X-ray diffraction data of all the multilayers. The sample deposited at ambient temperature is highly textured in the (111) direction. As  $T_s$  is raised to 200 °C, the texture of the film changes systematically from purely f.c.c. (111) to mostly f.c.c. (200) with a residual f.c.c. (111) component; further increase to

300 °C produces a texture with multiple fcc peaks. Another effect of increasing  $T_s$ , evident in Figure 1 is grain growth. The average grain size as determined from the x-ray peak widths using the Sherrer formula [4] is 120 Å for the sample deposited at room temperature growing to about 300 Å for that deposited at 300 °C. Similar grain growth with deposition-temperature has also been observed in other metallic thin films deposited by magnetron sputtering [5].

We note that in these Ni/Fe multilayers, no purely bcc lines are observed in any film; in all the samples the Fe layers crystallize in fcc structures and direct magnetic measurements show that the Fe layers are fully magnetized. This behaviour is consistent with the observation of Ehrlich *et al.* [6,7] that, in their Ni/Fe multilayers, Fe retains the fcc phase of Ni and also manifests a high magnetic moment which they ascribe to the stabilization of the Fe magnetization by its coupling to the Ni layers. Our results extend their conclusion to thicker Fe layers ( $> 20\text{Å}$ ). In fact, the stability of the fcc Fe phase and its magnetic behaviour are of longstanding interest and debate. For example, fcc iron layers as thick as 60 Å have been found in Ni/Fe bilayers but with significantly reduced Fe magnetic moments [8].

In a miscible system such as Ni/Fe, increasing  $T_s$  is expected to favor the mixing of the components across interfaces and, thus, the formation of alloy layers. Figure 2 shows the low-angle x-ray reflectivity spectra of several of the multilayers grown at substrate temperatures up to 300 °C. The sample deposited at room temperature shows well-defined superlattice peaks up to at least 6<sup>th</sup> order separated by clear-cut total thickness peaks, which confirm the sharp interfaces of the superlattices, as well as low global roughness of the film. At higher deposition temperatures, the intensities of the high-order superlattice peaks are systematically reduced as interdiffusion augments for films deposited up to 250 °C. Also plotted in this figure is a simulated reflectivity curve, based on an optical model for glancing angle x-ray reflection [2]. In order to reproduce the details of these spectra, it is necessary to include a mixed interface region which grows from about 5 Å at  $T_s = 20$  °C to 20 Å at 250 °C. At 300 °C, however, the complete loss of the superlattice peaks indicates the formation of a compositionally uniform alloy throughout the sample.

In parallel with the structural changes, both the transport and magnetic properties of the multilayers also change. Figure 3 plots the saturation resistivity  $\rho_s$  (in longitudinal geometry, with the applied field parallel to the current) as a function of  $T_s$ .  $\rho_s$  is determined by crystal imperfections such as grain boundaries and interface roughness and is therefore a reflection of the crystalline quality. As can be seen, it initially decreases with increasing  $T_s$  up to 200 °C which we associate with an increase in grain size and, hence, a reduction of electron scattering at grain boundaries. At higher  $T_s$ , alloying across the layers leads to an increase in  $\rho_s$ .

In Figure 4, the in-plane coercivity,  $H_c$ , is plotted versus  $T_s$ ; it initially increases with  $T_s$  up to 200 °C before falling rapidly as  $T_s$  is increased further to 300 °C. The change in  $H_c$  with  $T_s$  can also be associated with the structural modifications. Intergranular magnetic coupling can be reduced with an increase in grain size [9,10] which explains the initial increase of coercivity with  $T_s$  in our samples. The decrease in  $H_c$  as  $T_s$  is increased above 200 °C results from alloy formation at the interfaces. Indeed, the sample deposited at 300 °C has low coercivity and high remanence as is expected for a uniform near-permalloy alloy as implied by the x-ray data. At this stage, however, it is still not clear how the change of  $H_c$  is associated with crystallographic texture change.

Figure 5 shows the variation of anisotropic magnetoresistance ratio (AMR) with substrate temperature. The total AMR is measured as the normalized difference in resistivity ( $\Delta\rho_s/\rho_s$ ) for in-plane magnetic fields applied parallel and perpendicular to the current direction. As can be seen from the figure, the AMR ratio increases monotonically with increasing  $T_s$ . Up to 200 °C the AMR increases due to falling  $\rho_s$ ; at higher temperatures, both  $\Delta\rho_s$  and  $\rho_s$  increase with  $T_s$ . At the highest temperature the AMR approaches that found in uniform permalloy films. The variation of the MR with increasing  $T_s$  are easily understood. Higher deposition temperatures promote lateral grain growth which in turn, reduces bulk scattering at grain boundaries and, hence  $\rho_s$ . As interface alloying becomes more important for the samples deposited at higher  $T_s$ , there results an enhanced interface scattering and, eventually, the large AMR characteristic of Ni-Fe alloys [11]. Finally, the soft magnetic properties of the Ni-Fe alloy also lead to large MR field sensitivity of the multilayers. For example, the LMR



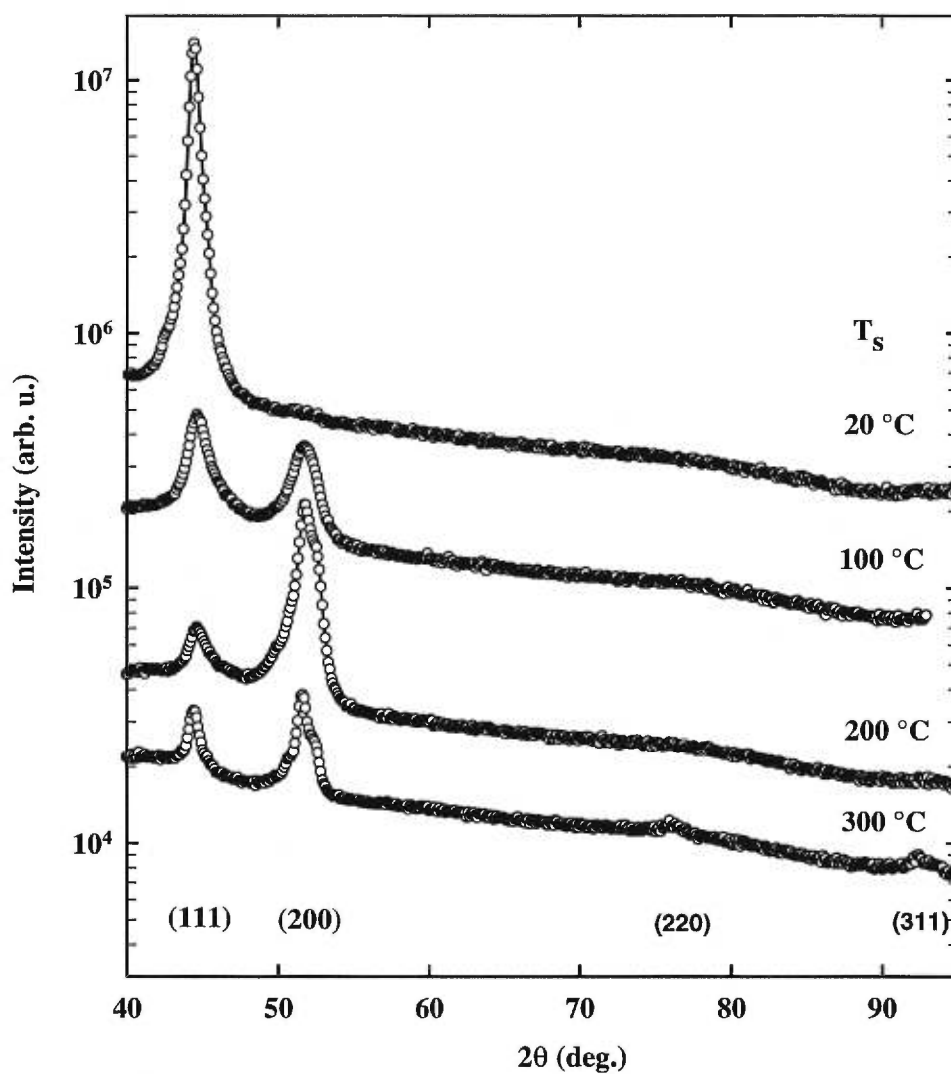
(field parallel to current) field-sensitivity is 0.14%/Oe for the multilayer deposited at 20 °C and 0.25%/Oe for that deposited at 300 °C. The corresponding values for TMR (field perpendicular to current) are 0.13%/Oe and 0.25%/Oe, respectively.

### Acknowledgments

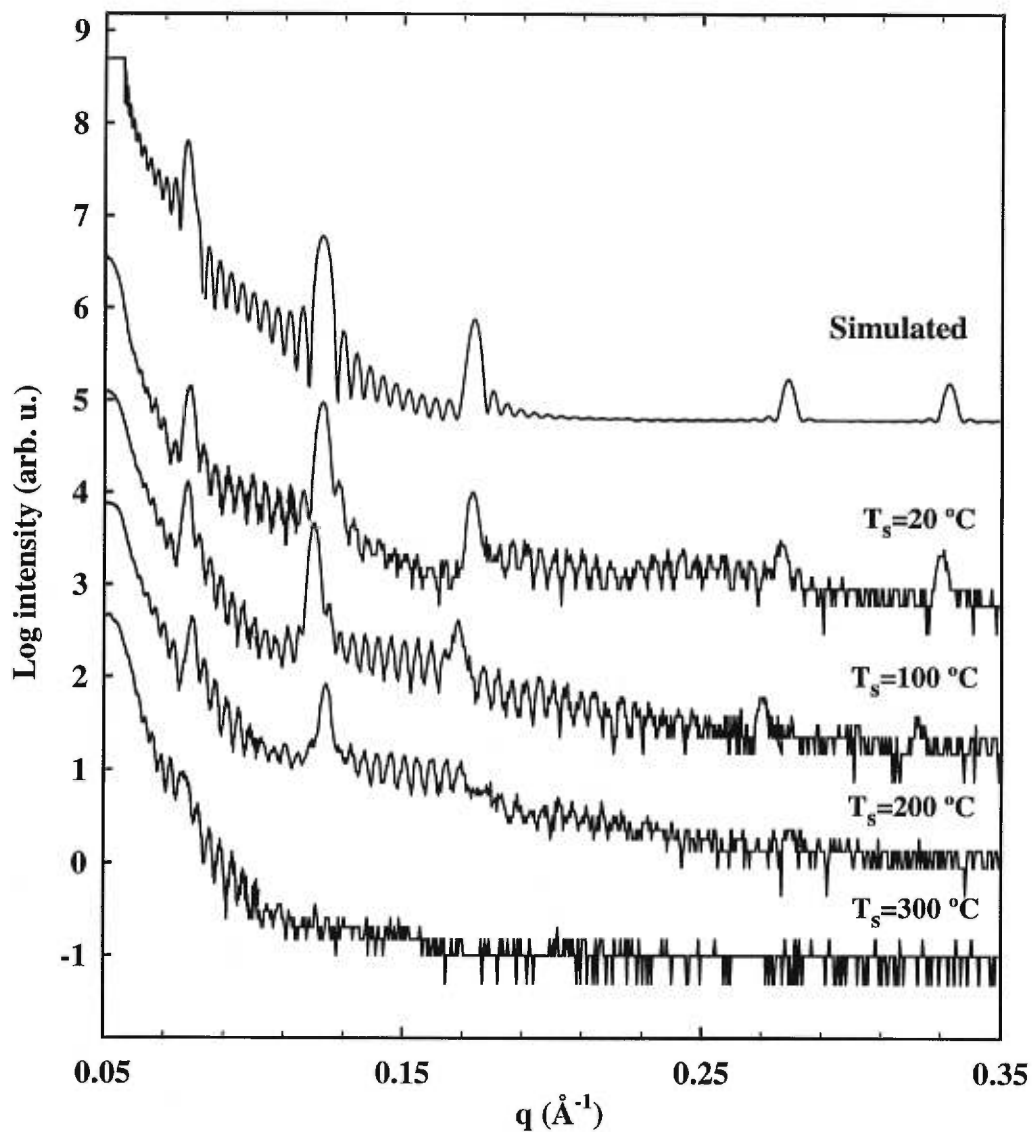
The authors would like to acknowledge J.M. Freitag and D.W. Lee for their help with the high-angle x-ray experiments and P.Desjardin for his assistance with the low-angle x-ray diffraction measurements.

### References:

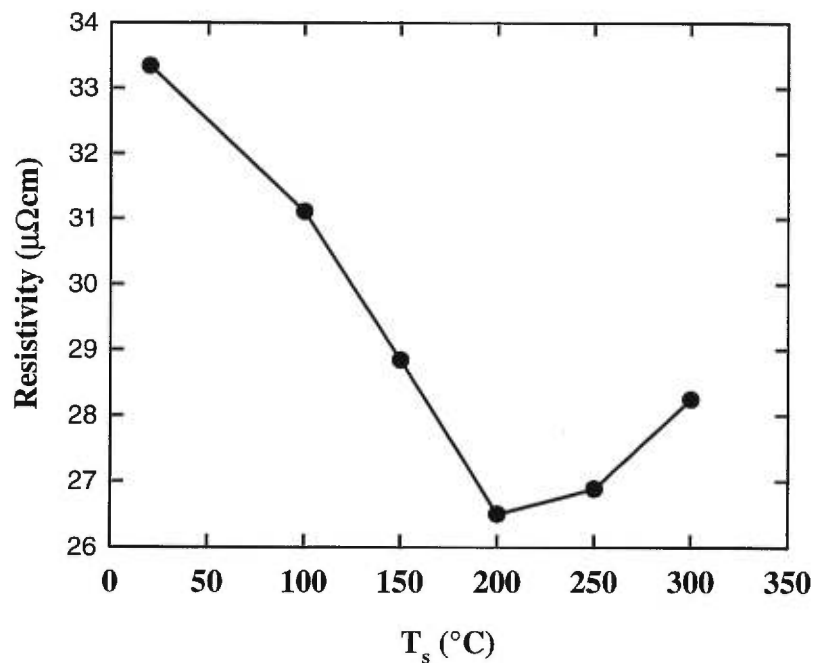
- [1]. M. Cai, T. Veres, R. Morel, and R. W. Cochrane, J. Appl. Phys. **79**, 6289 (1995).
- [2]. Y. Huai, R. W. Cochrane, and M. Sutton, Phys.Rev. **B48**, 2568 (1993).
- [3]. R. W. Cochrane, B.J. Kastner and W.B. Muir, J. Phys. **E15**, 425 (1982).
- [4]. M. S. Miller, F. E. Stageberg, Y. M. Chow, K. Rook, and L. H. Heuer, J. Appl. Phys. **75**, 5779 (1994).
- [5]. T. Chen and G.B. Charlen, J. Appl. Phys. **50**, 4285 (1979).
- [6]. A.C. Ehrlich, D.J. Gillespie, T.M. Tritt, C. Kim, A.S. Edelstein, and S.B. Qadri, J. Appl. Phys. **70**, 5819 (1991).
- [7]. A.S. Edlstein, C. Kim, S.B. Qadri, K.H. Kim, V. Browning, H.Y. Yu, B. Maruyama and R.K. Everett, Solid State Comm. **76**, 1379 (1990).
- [8]. Yi Li, C. Polaczyk, F. Klose, J. Kapor, H. Maletta, F. Mezei, and D. Riegel, Phys. Rev. **B53**, 5541 (1996).
- [9]. A. Guinier, *Theorie et Technique de la Radiocristallographie* (Dunod, Paris, 1964), p.462.
- [10]. J.G. Zhu and H.N. Bertran, J. Appl. Phys. **63**, 3248 (1988).
- [11]. T. R. McGuire and R. I. Potter, IEEE Transactions on Magnetism, Mag-11, **4**, 1019(1975).



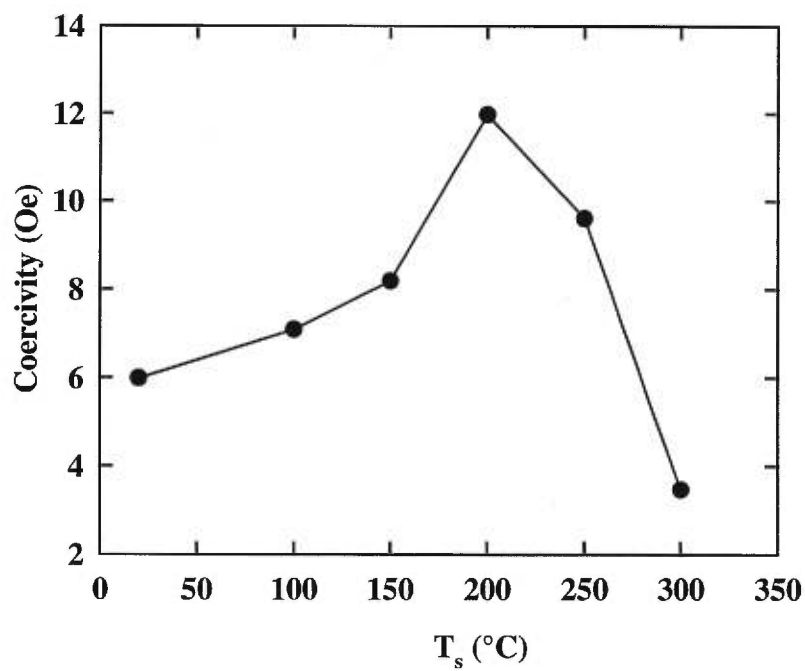
**Figure 1.** High-angle x-ray diffraction spectra for the  $(\text{Ni}86\text{\AA}/\text{Fe}29\text{\AA})\times 11$  multilayers deposited at various substrate temperatures ( $T_s$ ). Curves at different  $T_s$  are shifted for clarity.



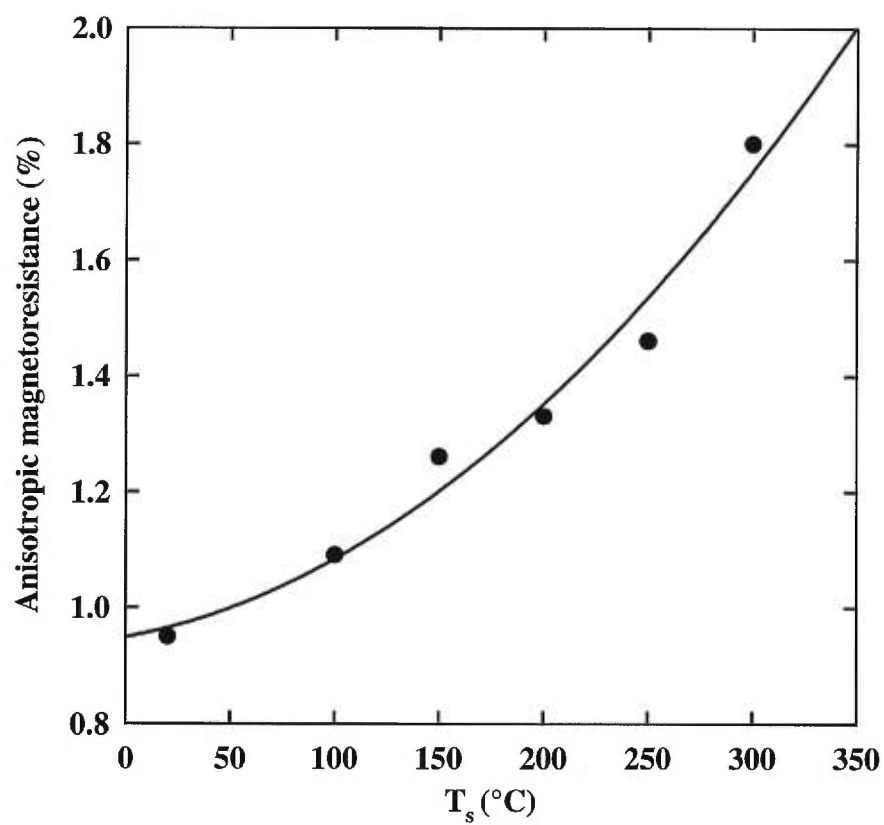
**Figure 2.** Low-angle x-ray reflectivity spectra for the  $(\text{Ni}86\text{\AA}/\text{Fe}29\text{\AA})_{11}$  multilayers deposited at various substrate temperatures ( $T_s$ ). Also shown is a simulated spectra for a multilayer with a 5  $\text{\AA}$  intermixed interface region. Individual spectra have been shifted for clarity



**Figure 3.** Resistivity of  $(\text{Ni}86\text{\AA}/\text{Fe}29\text{\AA})_{11}$  multilayers as a function of deposition temperature. The solid line is a guide to the eye.



**Figure 4.** In-plane coercive field of  $(\text{Ni}86\text{\AA}/\text{Fe}29\text{\AA})_{11}$  multilayers as a function of deposition temperature. The solid line is a guide to the eye.



**Figure 5.** Anisotropic magnetoresistance ratio of  $(\text{Ni}86\text{\AA}/\text{Fe}29\text{\AA})_{11}$  multilayers as a function of deposition temperature. The solid line is a guide to the eye.

# **CHAPITRE 5**

## **Les effets de l'irradiation ionique sur la structure et les propriétés magnétiques et de transport des multicouches Ni/Fe**

T. Veres, M. Cai, R.W. Cochrane, M. Rouabhi, S. Roorda, P. Desjardins

Soumis pour publication à Thin Solid Films

Reçu le 12 septembre 1999

**MeV Si<sup>+</sup> irradiation of Ni/Fe multilayers:  
Structural, transport and magnetic properties**

T. Veres, M. Cai, R.W. Cochrane, M. Rouabhi, S. Roorda

*Département de physique and Groupe de recherche en physique et technologie des couches minces, Université de Montréal, C.P. 6128, Succ. Centre-ville, Montréal, Québec H3C 3J7, Canada*

P. Desjardins

*Materials Science and Engineering Department, Coordinated Science Laboratory, Materials Research Laboratory, University of Illinois at Urbana-Champaign, 1101 W. Springfield, Urbana, IL 61801*

***Abstract***

The modification of the structural, transport and magnetic properties of Fe(28Å)/Ni(85Å) multilayers on 1 MeV Si<sup>+</sup> irradiation at low-temperature (77 K) has been studied as a function of dose. The as-deposited multilayers exhibit strong Ni(111)/Fe(110) texture with sharp interfaces. Upon irradiation, progressive intermixing at the interfaces is clearly observed in the low-angle X-ray reflectivity and quantified by fitting the data with a standard optical model incorporating interface roughness, intermixing and individual layer thickness fluctuations. Simultaneously, the average grain size gradually increases from ~ 170Å to ~ 250Å with increasing ion dose up to  $3 \times 10^{16}$  ions·cm<sup>-2</sup>. These changes lead to an increase of the anisotropic magnetoresistance from ~ 1.4% in the as-deposited sample to ~ 1.8% after irradiation with a dose of  $10^{16}$  ions·cm<sup>-2</sup>, and to the establishment of an in-plane easy-axis for the magnetization. The effect of ion bombardment on the transport properties are explained using a model based on the Boltzmann equation incorporating the intermixing characteristics determined from the quantitative X-ray analyses.

## 1. Introduction

Magnetic thin films and multilayers are currently of interest for use as low-field magnetic sensors due to their unique magnetic and transport properties. A considerable effort is being deployed in order to understand and to optimize the giant magnetoresistance (GMR) and the anisotropic magnetoresistance (AMR) of multilayer systems combining ferromagnetic (F) layers with non-magnetic (N) or other ferromagnetic (F) ones. A strong driving force behind these studies can be found in the technological potential of these materials arising from their large sensitivities to magnetic fields.

Recently, a large AMR field sensitivity ( $\sim 0.18\%/Oe$ ) at room temperature was reported for Ni(42Å)/Co(48Å) multilayers grown on sapphire substrates by molecular beam epitaxy [1]. Theoretical work by Smit [2], and Potter [3] has shown that the spin-orbit interaction of the conduction electrons in a ferromagnetic metal gives rise to an anisotropic scattering potential leading to a dependence of the resistivity on the angle between the current and the sample magnetization. Experimental investigations by McGuire and Potter [4] and Jaoul et al.[5] demonstrated that ferromagnetic alloys based on Co, Ni, and Fe exhibit a large AMR with possible applications for magnetic recording. They found that the most suitable candidates for sensor applications are *bulk* NiFe alloys with compositions in the permalloy region near Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> (AMR  $\approx 4\%$  at room temperature); these alloys have the additional benefits of low coercivity and very small magnetostriction. In thin film samples, however, the value of the AMR is limited to about 2% due to the strong scattering at the outer surface [6].

The advantage of multilayered structures is the flexibility to tailor the transport and magnetic properties in order to obtain high saturation magnetization, low coercivity and small magnetostriction. The magnetic properties of the multilayers, in particular the magnetostriction and the AMR, depend strongly on the crystalline quality and the roughness at the interfaces between layers. For example, Gallego et al. [7] found strong superlattice effects in Ni/Co multilayers with at least eight periods in which resistivity and AMR oscillations are observed as a function of layer thickness. Theoretical and



experimental results [8] also indicate that a large interfacial anisotropy can occur in [111] fcc polycrystalline Co/Ni multilayers composed of thin (4-12 Å) layers; this anisotropy can lead to perpendicular magnetization and a larger saturation moment than obtained in Co/X (X= Pd, Pt, Au) F/N multilayers.

Among F/F systems, Ni/Fe bilayers and multilayers are particularly attractive due to the soft magnetic behaviour (low coercivity and magnetostriction, high remanence and low saturation fields) that can be achieved by controlling the atomic and magnetic structure in the interfacial region during growth or through subsequent interdiffusion process steps. The effects of interdiffusion and layer thicknesses on the magnetostriction in Ni/Fe multilayers have been previously reported [9]. It was found that a very small magnetostriction can be achieved via the interplay of the magnetostrictions of the Ni, Fe, and Ni-Fe intermixed layers. Ehrlich et al. [10] have shown that multilayered polycrystalline Ni/Fe samples with individual layer thicknesses large enough to retain the bulk crystal structure ( $> 30$  Å) possess transport properties similar to those of the bulk ferromagnetic films. Fe layers thinner than  $\sim 30$  Å, however, could be grown in an fcc phase stabilized by the Ni underlayers, causing such samples to exhibit a more complicated magnetic structure due to changes in the magnetic anisotropy in the interfacial regions.

Ion beam irradiation (IBI) can modify the interfacial regions of multilayer structures in a controlled fashion as a result of ion-solid interactions. While electronic interactions transfer energy to bound and free electrons, nuclear collisions can lead to permanent atomic displacements from the original lattice positions. Thus, significant ion-induced interfacial mixing can occur in multilayers. The fractional energy losses via electronic and nuclear processes are determined by the masses of the incident and target atoms [11]. In addition to these ballistic parameters, thermodynamic properties, such as heat of mixing and cohesive energy, as well as external variables, such as temperature, can also influence the mixing efficiency [12].

In this paper, we concentrate on the evolution of the structural, magnetic, and transport properties of a Ni/Fe multilayer with average atomic composition in the permalloy region induced by bombardment with 1 MeV  $\text{Si}^+$  ions. Progressive

intermixing at the interfaces as the ion dose is increased from  $10^{13}$  to  $3 \times 10^{16}$  ions-cm<sup>-2</sup> is quantified using specular X-ray reflectivity (XRR) and diffraction (XRD) analyses. The evolution of the transport properties, in particular the resistivity and the AMR, is modeled using a charge transport model based on the Boltzmann equation incorporating the exact multilayer characteristics determined from the structural analysis.

## 2. *Experimental details*

Multilayer samples with the configuration [Fe(28Å)/Ni(85Å)]<sub>11</sub> were deposited on thermally oxidized Si (100) wafers by rf triode sputtering [13]. In order to simplify the notation, these multilayers are hereafter referred to as Fe<sub>28</sub>/Ni<sub>85</sub>. During deposition, the substrate was maintained at  $20 \pm 3$  °C and sputtering was carried out at an rf power of 200 W and an Ar pressure of 3 mTorr, resulting in deposition rates of 0.9 and 1.2 Å s<sup>-1</sup> for Fe and Ni, respectively. A rectangular sample geometry, 4 mm × 15 mm with thin side-arms on each side distanced 8 mm apart, was defined by deposition through a contact mask.

XRR measurements were performed in a Philips system with a 4-crystal Bartels Ge monochromator in the 220 configuration and Cu- $K_{\alpha 1}$  radiation ( $\lambda = 1.540597$  Å); XRD analyses were carried out with an automated Nicolet-Stöe L11 powder diffractometer using Cu- $K_{\alpha}$  radiation. The magnetization was measured at room temperature using a vibrating sample magnetometer operating at 85 Hz with a resolution of better than  $10^{-5}$  e.m.u. Transport properties (resistivity and anisotropic magnetoresistance) were determined using a standard 4-point method on a high-resolution ac-bridge. For both magnetic and magnetotransport measurements, the external field was applied in the sample plane. In the following, by *longitudinal* and *transverse* we denote either magnetoresistance or magnetization measurements with the magnetic field oriented along the length of the sample and perpendicular to this direction respectively.

Normal incidence IBI was performed at a pressure near  $10^{-7}$  Torr with 1 MeV Si<sup>+</sup> ions rastered over an area of  $2.5 \times 2.5$  cm<sup>2</sup> using the Université de Montréal Tandatron accelerator. To avoid sample heating during irradiation, the beam current

was kept below  $50 \text{ nA}\cdot\text{cm}^{-2}$  and the samples were placed in thermal contact with a copper block maintained at 77 K. The dose  $\Phi$  was systematically increased from an initial value of  $10^{13} \text{ cm}^{-2}$  to a final value of  $3 \times 10^{16} \text{ cm}^{-2}$ . At each stage, the irradiation was performed simultaneously on the  $\text{Fe}_{28}/\text{Ni}_{85}$  multilayer and on reference 1000 Å Fe and 1500 Å Ni films, also deposited on oxidized Si (100) substrates. The ion energy of 1 MeV was selected such that the projected ion range was much larger than the total film thickness (1200 Å); consequently, a uniform mixing profile throughout the multilayer is expected. TRIM simulations [14] give a projected ion range of 1.5  $\mu\text{m}$  and indicate that only a very small fraction ( $< 0.1\%$ ) of the implanted ions remain within the magnetic films, the rest being transmitted or backscattered.

### 3. Results and discussion

#### 3.1. High angle x-ray diffraction

Fig. 1 presents selected XRD curves for  $\text{Fe}_{28}/\text{Ni}_{85}$  as a function ion dose. The curve for the as-deposited multilayer exhibits a strong peak located at  $2\theta = 44.5^\circ$ , very close to the expected positions for the (111) fcc Ni ( $2\theta = 44.60^\circ$ ) and (110) bcc Fe ( $2\theta = 44.66^\circ$ ) reflections but characterized by a slightly larger interplane separation perpendicular to the film surface than the equilibrium structures of either element. No other fcc or bcc peaks are visible in the interval up to  $65^\circ$ ; in particular the fcc (200) peak around  $52^\circ$  is absent. Combining these results with earlier studies [15] leads to the conclusion that the film is strongly Ni(111)/Fe(110) textured in the growth direction. Superlattice diffraction peaks are visible around the principal Ni/Fe peak indicating that the crystalline coherence length in the growth direction is larger than the superlattice period  $\Lambda_h$ . A number of other peaks that arise from the interaction of the Ni and Fe with the substrate or the atmosphere are also observed.

Several effects of ion bombardment should be noted from Fig. 1. The first is the shift of the (111/110) peak position toward lower angles upon irradiation indicating that the average lattice parameter in the growth direction  $a_\perp$ , increases with dose. Assuming an fcc structure for the crystals, the lattice parameter of the as-deposited sample equals 3.525 Å, somewhat larger than that of bulk fcc Ni (3.517 Å), a fact which might indicate

the presence of a small in-plane compressive strain. No significant changes in the lattice parameter are apparent for doses up to  $5 \times 10^{13}$  ions·cm<sup>-2</sup>. At higher doses,  $a_{\perp}$  increases monotonically to reach a value of 3.565 Å at the maximum dose of  $3 \times 10^{16}$  ions·cm<sup>-2</sup> as a result of progressive intermixing of the two elements driven by a negative enthalpy of mixing. This variation is consistent with the measured lattice-parameters of fcc Ni-Fe alloys which rise linearly from 3.517 Å for Ni to a maximum of 3.589 Å at 39 at. % Ni [16, 17, 18] before decreasing again in the invar region of the Fe-rich fcc alloys.

The multilayer period  $\Lambda_h$  has been calculated from the spacing between superlattice peaks using the relationship

$$\frac{2\sin\theta}{\lambda_{Cu}} = \frac{1}{d} \pm \frac{n}{\Lambda_h} \quad (1)$$

where  $n$  is the order of the satellite around the main Bragg peak ( $n = 0$ ) and  $d$  is the interatomic layer spacing between (111) planes.  $\Lambda_h$  values calculated from the XRD data are summarized in Table I along with those determined from XRR measurements (see section 3.2).

The second effect attributed to IBI is grain coarsening which results in a decrease of the linewidth of the Bragg peaks as the dose increases (Fig. 1). Fig. 2 presents the evolution of the grain size  $D$  in the growth direction, obtained using the Scherrer formula [19].  $D$  remains approximately constant at  $\sim 170$  Å, slightly larger than the multilayer period, for  $\Phi$  up to  $5 \times 10^{14}$  ions·cm<sup>-2</sup> and, thereafter, increases continuously by almost 50% to reach  $\sim 250$  Å at maximum dose. Such grain growth has been previously reported in thin Ni films bombarded with different ions (Ag<sup>+</sup>, Ar<sup>+</sup>, Kr<sup>+</sup>, Xe<sup>+</sup>) at energies ranging from 240 keV to 560 keV [20,21]. We have also observed such coarsening in cross-sectional and plan-view transmission electron microscopy (TEM) images on a series of Ni(500Å)/Fe(500Å) bilayers irradiated under similar conditions [22]. As suggested by Liu and Mayer [23], IBI-induced grain growth can be understood in a manner similar to grain boundary migration in a deformed metal during recrystallization. In their picture, relatively undamaged grains act as nucleation sites for

growth into the damaged region. Since the probability of damaging an entire grain is high for small grains, the larger grains consume the smaller and the average grain size increases.

Additional reflections appear as the dose increases, in particular, a small intensity peak near  $2\theta = 38^\circ$  becomes visible after the initial dose of  $10^{13}$  ions·cm<sup>-2</sup> and grows systematically with further irradiation. This peak is close to the expected position for fcc NiO (111). Since its presence is clearly established well before Ni completely mixes into the top Fe layer ( $> 6 \times 10^{15}$  ions·cm<sup>-2</sup>), the initial formation of this NiO layer must occur at the substrate/Ni interface. The minor peak around  $40^\circ$  in all the curves can be associated with Ni<sub>2</sub>Si (132) at the same interface. Finally, the oxidation of the Fe cap layer after irradiation with  $3 \times 10^{16}$  ions·cm<sup>-2</sup> is evidenced by the presence of small FeO (200) ( $2\theta = 42.1^\circ$ ) and Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> (224) ( $2\theta = 53.2^\circ$ ) peaks.

### 3.2. *Specular low-angle X-ray reflectivity*

Low-angle XRR measurements of the Fe<sub>28</sub>Ni<sub>85</sub> multilayer are shown in Fig. 3 at various stages of ion bombardment. Beyond the critical wave vector ( $Q$ ) for total reflection, the intensity falls off abruptly ( $\sim Q^{-4}$ ) with a series of finite-thickness interference fringes and superlattice peaks superimposed on the falling background. The amplitudes and persistence of both sets of oscillations are functions of the electron-density contrast and the sharpness of the individual layers.

For the as-deposited multilayer, superlattice peaks are observed up to the fifth order, confirming that the Ni/Fe interfaces are flat and parallel to substrate surface and that the bilayer thickness is reasonably uniform throughout the multilayer. The absence of the fourth-order peak is expected for a 3:1 thickness ratio between the Ni and Fe sublayers. A low-amplitude long-wavelength oscillation is superimposed on the overall profile of the curves and can be attributed to a thin layer of surface oxide formed during exposure of the sample to the atmosphere after deposition. The intensities of the superlattice peaks in Fig. 3 are progressively reduced as the ion dose increases. However, even at the maximum dose of  $3 \times 10^{16}$  ions·cm<sup>-2</sup>, a weak first-order peak can still be observed revealing that a compositionally modulated structure persists to some

extent. In addition, the total-thickness peaks are also visible from which it can be concluded that an abrupt interface between the multilayer and the SiO<sub>2</sub> substrate is preserved even though the Fe and Ni layers have been substantially mixed.

The effects of IBI on the multilayer structure and interfaces have been quantified by fitting the XRR data using a standard optical model [24] based on the recursive theory of Parratt [25]. In this model, the multilayer is considered to consist of a stack of individual layers each having a constant electron density, and the reflectivity for the whole heterostructure is calculated using a matrix method [26]. In order to include interfacial mixing, each interface is treated as a sequence of slices ( $\sim 1$  monolayer thick) with a linear variation of the electron density and the absorption coefficient from one side of the interface to the other. Roughnesses at the top surface and at each interface are modeled as Gaussian distributions of the interface position and are directly incorporated into the calculation by multiplying a Debye-Waller factor  $\exp(-\sigma_i^2 Q^2)$  into the appropriate multilayer reflectivity.  $\sigma_i$  measures the rms roughness. Model calculations were fitted to the data using the non-linear least-squares procedure described in reference [26].

Although many parameters are involved in the fitting procedure, convergence to a unique set is obtained in each case. Since the positions and intensities of the superlattice peaks are very sensitive to the parameters characterizing the interface, namely the individual layer thicknesses ( $t_{Ni}$  and  $t_{Fe}$ ), the width of the linearly graded interfacial region ( $W$ ) and the gaussian interface roughness ( $\sigma_i$ ), the fitting procedure provides well-defined values for them. Parameters, such as the oxide thickness ( $t_{oxide}$ ) and its roughness ( $\sigma_{ov}$ ) as well as the substrate roughness ( $\sigma_s$ ), influence the overall profile of the reflectivity curves but have little effect on the intensities of superlattice peaks. Increasing  $\sigma_{ov}$  and  $\sigma_s$  leads to a faster decrease of the reflected intensity and to a reduction of the amplitude of the total thickness fringes as the scattering wave vector increases. As well, the presence of an oxide overlayer introduces extra oscillatory features for which the wavelength is inversely proportional to the layer thickness. As shown in Fig. 3, such an oscillation is evident near the second order superlattice peak after irradiation at  $3 \times 10^{15}$  ions cm<sup>-2</sup>. At this dose,  $t_{oxide}$  is calculated as  $45 \pm 3$  Å; it

evolves towards 73 Å at the maximum dose.

The calculated curves are shown as solid lines in Fig. 3 where it is seen that the agreement between experimental and calculated curves with respect to both the position and the intensity of the peaks is excellent for all ion doses. The principal fitting parameters are presented in Table I for the as-deposited and irradiated samples. Upon irradiation, the intermixing width  $W$  increases from 7 Å for the as-deposited sample to 26 Å at a dose of  $3 \times 10^{15}$  ions·cm<sup>-2</sup> at which point the entire Fe layer is mixed and the multilayer consists of only Ni and NiFe alloy regions. At maximum dose, the intermixing width reaches half of the modulation wavelength (~55 Å) and the pure Ni layer is completely consumed. The sample has become a compositionally modulated alloy structure.

Fig. 4 shows that the square of the irradiation-induced intermixing width  $W_{ion}^2 = W^2 - W_0^2$ , where  $W_0$  is the zero-dose width, varies linearly with ion dose, as predicted by the cascade model of ion beam mixing [27]. A value of about 300 Å<sup>4</sup> is obtained for the ion beam mixing efficiency  $d(W_{ion}^2)/d\Phi$  which can be compared with that calculated from the theory of collisional mixing developed by Sigmund and Gras-Marti for ballistic ion beam mixing [28]:

$$\frac{d(W_{ion}^2)}{d\Phi} = \frac{2}{3} \Gamma_0 \xi \frac{F_D R_c^2}{\rho E_d} \quad (2)$$

where  $\Gamma_0 = 0.608$  is a dimensionless parameter,  $\xi$  is a mass-sensitive kinematic factor given by  $[4M_1M_2/(M_1+M_2)^2]^{1/2}$  where  $M_1$  and  $M_2$  are the masses of the atoms involved in collisions,  $R_c^2$ , is the mean squared range of a displaced atom taken here to be 100 Å<sup>2</sup> [29].  $E_d$  is the threshold displacement energy,  $\rho$  is the average atomic density and  $F_D$  is the energy deposited per unit length due to nuclear collisions. Typical values for the pertinent parameters are  $E_d = 20$  eV (the average for Ni and Fe [30]),  $F_D = 25$  eV/Å (obtained from TRIM simulation), and a kinetic factor averaged for the composition of the multilayer ( $\xi = x\xi_{Ni} + (1-x)\xi_{Fe}$ ),  $x$  being the Ni fraction. Using these values, Eq.(2) gives a mixing efficiency of 540 Å<sup>4</sup>. The difference between theoretical and experimental values of mixing efficiency is attributed to finite thickness effects related

to the multilayer structure which are not accounted for in the simple model. For example, intermixing initially occurs between Ni and Fe layers and subsequently between Ni and a Ni-Fe mixture. The linear relationship between  $W_{ion}^2$  and  $\Phi$  in Fig. 4, however, confirms that ballistic mixing is the dominant mechanism during IBI of Ni/Fe multilayers at low temperature.

### 3.3. *Magnetic properties*

The magnetization of the as-deposited  $Fe_{28}Ni_{85}$  multilayer is isotropic within the plane of the sample as indicated by the very similar magnetization-field curves measured in the longitudinal and transverse configurations (Fig. 5a). The magnetic moment saturates in relatively low fields ( $\sim 15$  Oe) with a coercivity in both directions of about 8 Oe and a remanent magnetization  $M_r$  of approximately 80% of the saturation value  $M_s$ . IBI has several effects on the magnetic behaviour of this sample, the most noticeable being the development of an easy axis in the transverse direction. Fig. 5(b) shows the magnetization curves after an ion dose of  $6 \times 10^{15}$  ions $\cdot$ cm $^{-2}$ . At this point, the longitudinal magnetization requires a much higher field for saturation ( $\sim 30$  Oe) while its remanence has dropped to about 45 % of  $M_s$ . In the transverse direction, the saturation field has fallen to  $\sim 10$  Oe and the remanence has grown to  $\sim 95$  % of  $M_s$ . Since the presence of NiO, which is antiferromagnetic, has been detected in the sample after irradiation, coupling between antiferromagnetic NiO and ferromagnetic Ni-Fe is a possible mechanism for the establishment of the easy axis.

In parallel with the changes outlined above, the coercivity,  $H_c$ , decreases from  $\sim 8.2$  Oe in the as-deposited multilayer to  $\sim 2$  Oe after irradiation at  $6 \times 10^{15}$  ions $\cdot$ cm $^{-2}$  (Fig. 5). The variation of  $H_c$  with ion dose is detailed in Fig. 6 along with the behaviour of pure Ni and Fe films irradiated simultaneously. This figure clearly demonstrates that the normalized coercivity  $H_c/H_c(0)$ ,  $H_c(0)$  being the coercivity at zero-dose, decreases more rapidly for the multilayer than the pure films. A decrease in  $H_c$  with increasing grain size, approximately following a  $H_c \sim 1/D$  dependence, was observed in polycrystalline NiFe and CoFe alloys [31] and was explained by domain-wall pinning at grain boundaries that become progressively less efficient as the volume fraction of grain



boundaries decreases. However, this effect should be similar for multilayers and the pure Ni and Fe films. The more pronounced decrease of  $H_c/H_c(0)$  in the multilayered sample can be attributed to a progressive intermixing at the interfaces which leads to the formation of an NiFe alloy magnetically softer than the individual elements.

### 3.4. *Transport properties*

#### 3.4.1 *Experimental results*

The AMR of Fe<sub>28</sub>Ni<sub>85</sub>, as-deposited and after irradiation at  $10^{16}$  ions·cm<sup>-2</sup>, are illustrated in Fig. 7(a). These curves are obtained by rotating the magnetic field at saturation between longitudinal and transverse orientations. Since the magnetization lies in the film plane, only one direction of the magnetization perpendicular to the current is allowed so that the average resistivity is defined as  $\rho_0 = (\rho_{||} + \rho_{\perp})/2$ . As for most ferromagnetic films, including NiFe alloys [4], the total anisotropic magnetoresistivity  $\Delta\rho = \rho_{||} - \rho_{\perp}$ , calculated at saturation, is positive; its amplitude does not depend on the magnetic domain structure or the mechanisms involved in the magnetization process [32]. However, usefulness as a magnetic sensor is determined by the variation of  $\Delta\rho_{||}$  and  $\Delta\rho_{\perp}$  with fields below saturation and, hence on the mechanisms (wall-displacements, coherent rotations) involved in the magnetization process. Large amplitudes for  $\Delta\rho_{||}$  and  $\Delta\rho_{\perp}$  can be expected in samples in which the magnetization process is dominated by in-plane rotations of the magnetic moments.

For the as-deposited sample presented in Fig. 7(a), the amplitudes of both the parallel ( $\Delta\rho_{||} \sim 0.23 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ) and perpendicular magnetoresistivities ( $\Delta\rho_{\perp} \sim 0.27 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ) are comparable to the total anisotropic magnetoresistivity  $\Delta\rho$  ( $\sim 0.32 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ) demonstrating that the magnetization process for both field orientations is dominated by in-plane rotations of the magnetic moments rather than domain-wall displacements. The  $\rho_{||}(H)$  and  $\rho_{\perp}(H)$  values saturate in fields comparable to those of the magnetization and peaks appear in both curves at fields identical with the corresponding coercivity ( $\sim 8$  Oe). After irradiation,  $\Delta\rho_{||}$  is much larger than  $\Delta\rho_{\perp}$ , confirming the presence of an easy axis in the transverse direction. During the field sweep in the longitudinal direction, the magnetization actually rotates 90° into the transverse direction at small

fields. However, for the field oriented in the transverse direction, the magnetization process is controlled by domain wall displacements with little moment rotation and thus little change in the resistivity. Fig. 7(b) shows the evolution of this phenomenon with ion dose and reveals a threshold dose of order  $10^{14}$  and a saturation near  $10^{15}$  ions·cm<sup>-2</sup>. The field sensitivity, defined as  $[(\Delta\rho_V/\rho_0)/(\Delta H)]$ ,  $\Delta H$  being the full width at half-maximum for the MR peak, at maximum dose is 0.18 %/Oe, comparable with that reported for Ni/Co multilayers by Gallego *et al* [1].

Fig. 8 shows  $\rho$  and the AMR as functions of  $\Phi$  for the multilayer as well as for the single-layer Ni and Fe films. While the resistivities of neither Ni nor Fe change with ion dose, that of the multilayer increases progressively from 23.3  $\mu\Omega\cdot\text{cm}$  to 28.6  $\mu\Omega\cdot\text{cm}$ . Consequently, the increase in multilayer resistivity can be associated with mixing at the Ni/Fe interfaces [4] rather than to bulk defects produced by ion-irradiation. As noted in section 3.1, the grain size increases from 170 Å to 250 Å upon irradiation. On the one hand, this increase leads to a decrease in the film resistivity through a diminution of the number of grain-boundary scattering events. On the other, it is offset by the significant increase of scattering from impurity atoms (Ni in Fe or Fe in Ni) in the interface region since the grain size ( $D \sim 150$  Å) is much larger than electron mean free-paths in both the Ni ( $\lambda_{\text{Ni}} \sim 35$  Å) and the Fe ( $\lambda_{\text{Fe}} \sim 15$  Å) layers.

Finally, the AMR for the as-deposited Fe and Ni films are  $\sim 0.15$  % and  $\sim 1.5$  %, respectively, in agreement with previously reported values [4]. While these values remain almost unchanged upon irradiation, the AMR of the multilayer rises to  $\sim 1.8$  % at a dose of  $10^{16}$  ions·cm<sup>-2</sup>. This behaviour underscores the formation of NiFe alloys which are known to have an AMR larger than those of the two constituents. Indeed, the AMR attains its maximum value for this alloy system in the permalloy region [4,33].

### 3.4.2 Model calculations

In order to obtain quantitative information about electron scattering in the interfacial regions created by the IBI, we adopt a semi-classical model based on the Boltzmann transport equation as proposed by Carcia and Suna [34]. The multilayer is described as a repeated structure of two ferromagnetic layers with thicknesses  $t_1$  and  $t_2$ .

The electric field  $\mathbf{E}$  is applied in the film plane along the longitudinal ( $x$ ) direction and the current is determined within each layer by the spin-dependent electron distribution function  $f_{i\sigma}(\vec{v}, z)$  ( $i=1,2$ ) which depends only on the coordinate perpendicular to the film ( $z$ ) and the velocity  $v$ :

$$f_{i\sigma}(\vec{v}, z) = f_{i\sigma}^0(\vec{v}, z) + g_{i\sigma}(\vec{v}, z). \quad (3)$$

Here  $f_{i\sigma}^0(\vec{v}, z)$  is the equilibrium (zero-field) distribution function and  $g_{i\sigma}(\vec{v}, z)$  the deviation from equilibrium due to the applied field. Following the general method [34,35], we divide  $g$  into two parts:  $g_{i\sigma}^+(\vec{v}, z)$  for electrons with  $v_z > 0$ , and  $g_{i\sigma}^-(\vec{v}, z)$  for those with  $v_z < 0$ . The general solution of the Boltzmann equation in the relaxation time approximation takes the form:

$$g_{i\sigma}^{\pm} = \frac{|e|E}{m} \cdot \frac{\partial f_{i\sigma}^0(\vec{v})}{\partial z} \left\{ 1 + F_{i\sigma}^{\pm}(\vec{v}) \exp \left[ \mp \frac{z}{\tau_i |v_z|} \right] \right\} \quad (4)$$

in which  $\tau_{i\sigma}$  is the relaxation time in layer  $i$  for spin  $\sigma$ ,  $e$  and  $m$  are the electron charge and mass, respectively. The functional form of  $F_{i\sigma}^{\pm}$  is obtained by requiring the electron distribution function to satisfy the boundary conditions, which are written, for  $v_z > 0$ , as:

$$g_{1\sigma}^+(0^+) = T g_{2\sigma}^+(0^-) \quad , \text{ at } z = 0 \quad (5)$$

$$g_{2\sigma}^+(t_1^+) = T g_{1\sigma}^+(t_1^-) \quad , \text{ at } z = t_1 \quad (6)$$

where  $T$  is the transmission coefficient which depends on the incident angle ( $\varphi$ ) of the electron at the interface according to

$$T = T_0 \cos(\varphi). \quad (7)$$

In order to calculate the AMR, we assume a cosine squared dependence of the mean free path ( $\lambda_{i\sigma}$ ,  $i = \text{Ni or Fe}$ ,  $\sigma$ , spin) on the angle  $\theta$  between the electron velocity  $v$  and the magnetization  $M_s$  [36] according to:

$$\lambda_{i\sigma} = \lambda_{i\sigma}^0 [1 + \alpha_{i\sigma} \cdot \cos^2(\theta)] \quad (8)$$

with anisotropic scattering factors  $\alpha_{i\sigma}$ . The current density ( $J$ ) along the electric field in each layer is found by integrating the solution of the Boltzmann equation over the velocity space to yield:

$$J_{x,i\sigma}(z) = -|e| \left[ \frac{m}{h} \right]^3 \int v_x g_{i\sigma}(\vec{v}, z) d^3\vec{v} \quad (9)$$

in which  $h$  is Planck's constant. The effective conductivity is found by averaging over the whole film according to

$$\sigma = \frac{1}{E(t_1 + t_2)} \sum_{i=1}^2 \sum_{\sigma=\uparrow\downarrow} \int J_{x,i\sigma}(z) dz. \quad (10)$$

For simplicity in the numerical calculations, the spin-up and spin-down electrons are treated equivalently using average values of the mean free path and the asymmetry scattering factor for the two spin channels of each magnetic layer. By fitting the thickness dependence for  $\rho$  and AMR using the model described above, we have obtained the mean free paths and the anisotropic scattering factors for Ni and Fe in the as-deposited samples. Since the bulk magnetoresistance of Ni is ten times larger than that for Fe, the anisotropic electron scattering is assumed to arise solely from the Ni layers and  $\alpha_{Fe}$  is set to zero in the subsequent analysis.

In Fig. 9 are presented the resistivity  $\rho$  and AMR for a series of non-irradiated multilayers with a fixed 3:1 ratio between the Ni and Fe layer thicknesses; the total thickness was fixed by varying the number of periods of the multilayer. The fitted results presented as solid lines in the figure were calculated with  $\lambda_{Ni} = (37 \pm 2) \text{ \AA}$ ,  $\lambda_{Fe} = (15 \pm 2) \text{ \AA}$ ,  $T_0 = 0.8 \pm 0.1$  and  $\alpha_{Ni} = 0.040 \pm 0.005$  [15]. These values of the mean free paths are close to values found from fitting the thickness dependence of the resistivities of the pure film. Only the first three parameters are needed to determine the thickness dependence of the resistivity of the multilayers, the fit depending very sensitively on  $T_0$ . Once these parameters are determined, the AMR is fitted with  $\alpha_{Ni}$  as the only free parameter. Using these parameters the resistivity and AMR of the as-deposited  $\text{Fe}_{28}\text{Ni}_{85}$  multilayer are calculated to be  $23.25 \text{ \mu}\Omega\cdot\text{cm}$  and  $1.43 \%$  respectively, in excellent

agreement with the experimental values of  $23.32 \mu\Omega\cdot\text{cm}$  and  $1.40 \%$ .

The threshold for significant changes in  $\rho$  and AMR with ion dose around  $10^{14}$  ions $\cdot\text{cm}^{-2}$ , (see Fig. 8) occurs near the point where the XRR data indicate that the interface width  $W$  exceeds the Fe-layer thickness so that no pure Fe layers remain. In order to fit the transport model to the data for these irradiated multilayers, we replace the Fe-layers with NiFe intermixed layers and make corresponding changes in the model parameters: specifically,  $\lambda_{\text{NiFe}}$  replaces  $\lambda_{\text{Fe}}$ , and  $\alpha_{\text{NiFe}}$  is not fixed at zero as was  $\alpha_{\text{Fe}}$ . All Ni-related parameters are taken to be independent of dose.  $\lambda_{\text{NiFe}}$  and  $\alpha_{\text{NiFe}}$  are then determined using equation (10) and the data of Fig. 8 following each irradiation. The resultant parameters are listed in Table II where it is noted that both  $\lambda_{\text{NiFe}}$  and  $\alpha_{\text{NiFe}}$  increase about 15 to 20 % with ion dose.

Empirically, McGuire and Potter [4] point out that the AMR increases when Fe is alloyed into Ni to a maximum near the composition  $\text{Ni}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$ . In this context, the increase in  $\alpha_{\text{NiFe}}$  with ion bombardment is consistent with the assumption of alloy formation which is the basis of the present analysis. However, they have emphasized that the microscopic treatment of AMR involves a complicated combination of elements including crystal symmetry, band structure, intrinsic parameters, such as the spin-orbit interaction and band splitting energies as well as extrinsic ones such as grain sizes and film thicknesses. As a result, it is not possible to assign a specific mechanism for the variation of the AMR within the NiFe alloy system.

#### 4. *Conclusion*

XRR, XRD, magnetization, and magnetotransport measurements all give a consistent picture of the evolution of the structural and magnetic properties of Fe/Ni multilayers irradiated with 1 MeV  $\text{Si}^+$  ions. As deposited, the multilayers have a high degree of texture which is largely preserved under ion bombardment. The principal effect of IBI is to mix the layers progressively from a clearly delineated superlattice up to the point of being almost a uniformly mixed alloy. Not surprisingly, the resulting magnetization and magnetoresistance tend systematically towards those characteristic of the uniform alloy. By constructing a semi-classical model for the electrical transport in

multilayers consistent with the structural data, we have been able to parameterize the evolution of the resistivity and the anisotropic magnetoresistance during this transformation.

### *Acknowledgements*

The authors would like to thank R. Morel (CEA Grenoble) for helpful discussions on magnetotransport modeling, M. Sutton (McGill) for valuable assistance with the modeling of the XRR data, L. Cheng (McGill) for help with x-ray diffraction measurements and F. Schiettekatte for his assistance with the ion-beam experiments. This research has received financial support from the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada and the Fonds pour la formation de chercheurs et l'aide à la recherche du Quebec.

**TABLE I.**

Structural parameters as a function of ion dose: the superlattice period  $\Lambda_h$  determined from the XRD superlattice peaks and the superlattice period  $\Lambda_l$  obtained from the XRR simulations as well as the intermixing width  $W$ , the interface roughness  $\sigma_i$ , the surface oxide layer thickness  $t_{oxide}$ , and the substrate roughness  $\sigma_s$ .

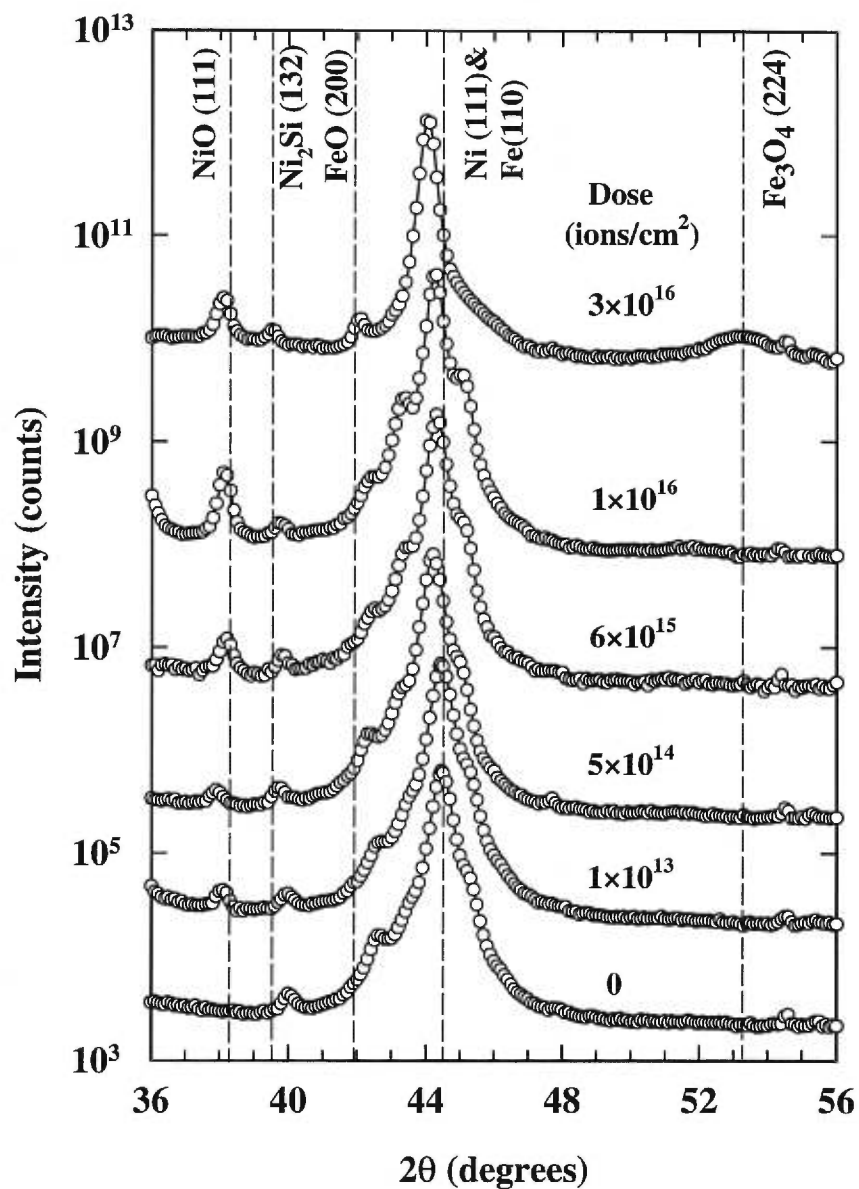
Dose $\Phi$ ( $10^{14}$ ions·cm $^{-2}$ )	$\Lambda_h$ (Å) ( $\pm 2$ )	$\Lambda_l$ (Å)	$W$ (Å)	$\sigma_i$ (Å)	$t_{oxide}$ (Å)	$\sigma_s$ (Å)
0	112	$111.6 \pm 0.4$	$6.6 \pm 0.2$	$3.7 \pm 0.2$	$28.1 \pm 0.3$	$3.6 \pm 0.2$
0.1	112	$111.8 \pm 0.5$	$10.3 \pm 0.2$	$3.7 \pm 0.1$	$27.8 \pm 0.4$	$3.5 \pm 0.2$
0.5	--	$112.3 \pm 0.6$	$12.3 \pm 0.3$	$4.1 \pm 0.2$	$28.7 \pm 0.3$	$5.0 \pm 0.2$
1.0	113	$112.1 \pm 0.6$	$16.7 \pm 0.2$	$6.9 \pm 0.2$	$28.8 \pm 0.3$	$4.7 \pm 0.2$
5.0	113	$112.4 \pm 0.8$	$20.9 \pm 0.3$	$6.3 \pm 0.2$	$38.5 \pm 0.4$	$4.9 \pm 0.4$
30	--	$112.7 \pm 0.6$	$26.1 \pm 0.2$	$5.8 \pm 0.2$	$42.6 \pm 0.6$	$7.6 \pm 0.2$
60	113	$112.9 \pm 0.5$	$32.9 \pm 0.3$	$6.1 \pm 0.4$	$45.3 \pm 0.4$	$9.0 \pm 0.1$
100	112	$111.3 \pm 1.3$	$38.8 \pm 0.9$	$11.0 \pm 0.7$	$51.4 \pm 0.5$	$11.8 \pm 0.2$
300	--	$110.9 \pm 2.4$	$55.2 \pm 2.2$	$19.9 \pm 2.5$	$72.5 \pm 0.4$	$9.3 \pm 0.1$

**TABLE II.**

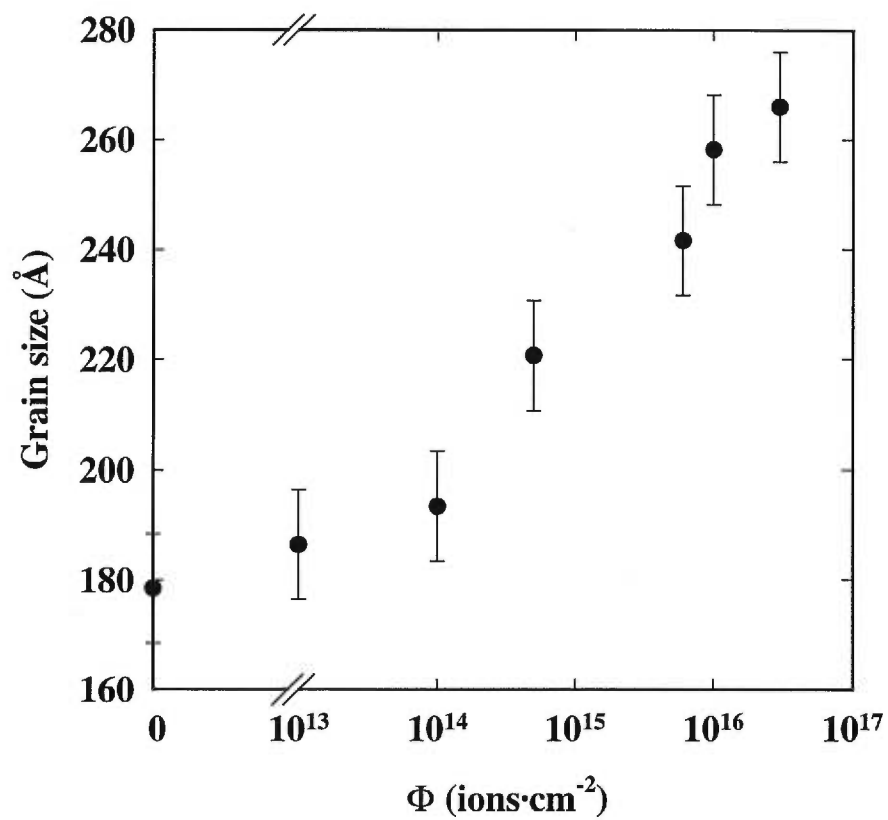
Anisotropic scattering parameter ( $\alpha_{NiFe}$ ) and the electron mean-free path  $\lambda_{NiFe}$  for the intermixed region obtained from the measured values for the resistivity ( $\rho$ ) and anisotropic magnetoresistance ratio  $\Delta\rho/\rho_0$  using the semi-classical model.  $\lambda_{Ni}$  and  $\alpha_{Ni}$  are the electron mean-free path and the scattering parameter for the Ni layer.

Dose $\Phi$ ( $10^{14}$ ions-cm $^{-2}$ )	$\lambda_{Ni}$ ( $\pm 2$ Å)	$\alpha_{Ni}$ $\pm 0.002$	$\lambda_{NiFe}$ ( $\pm 2$ Å)	$\alpha_{NiFe}$ ( $\pm 0.002$ )
0	38	0.040	--	
30			18	0.042
60			19	0.047
100			21	0.052

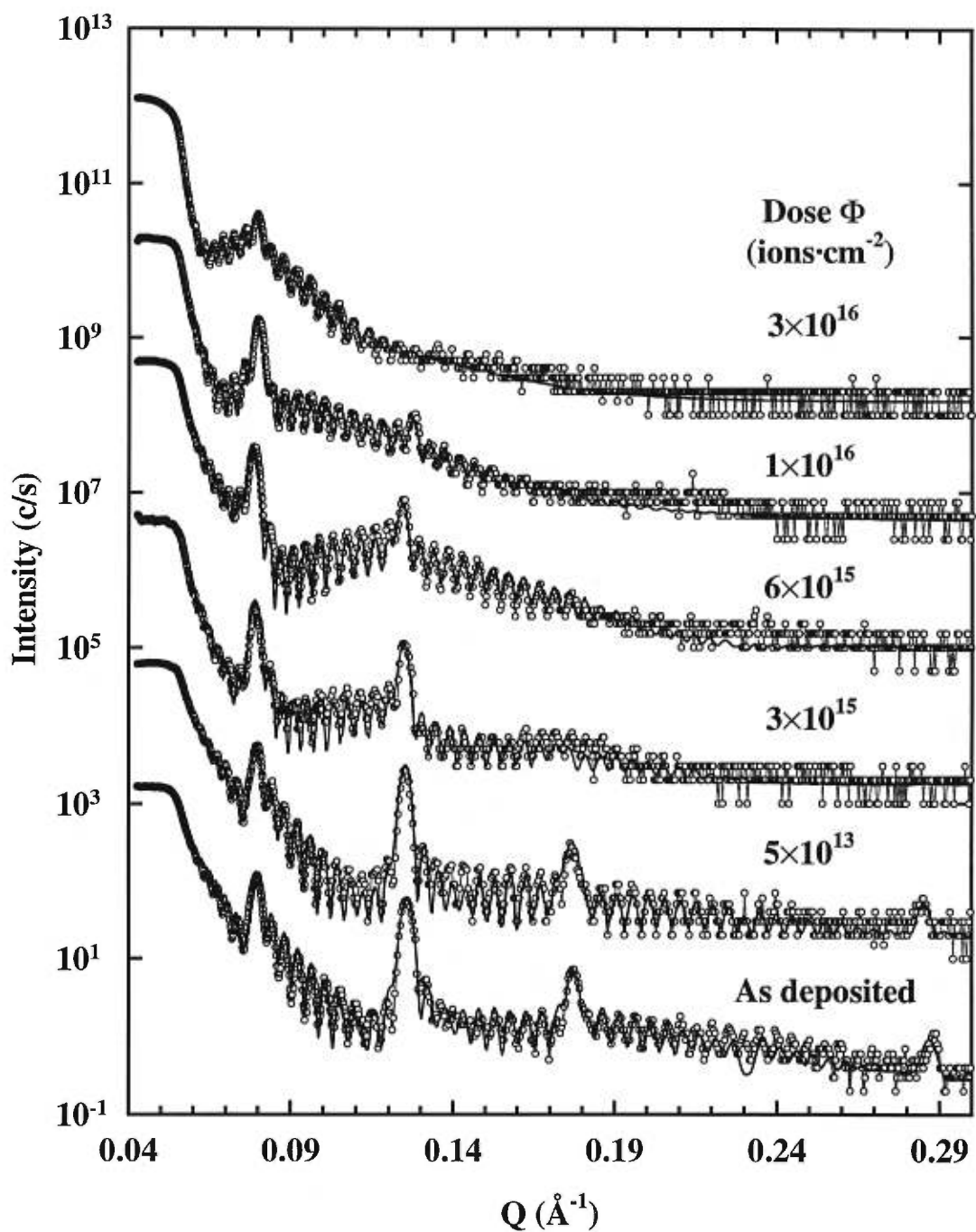




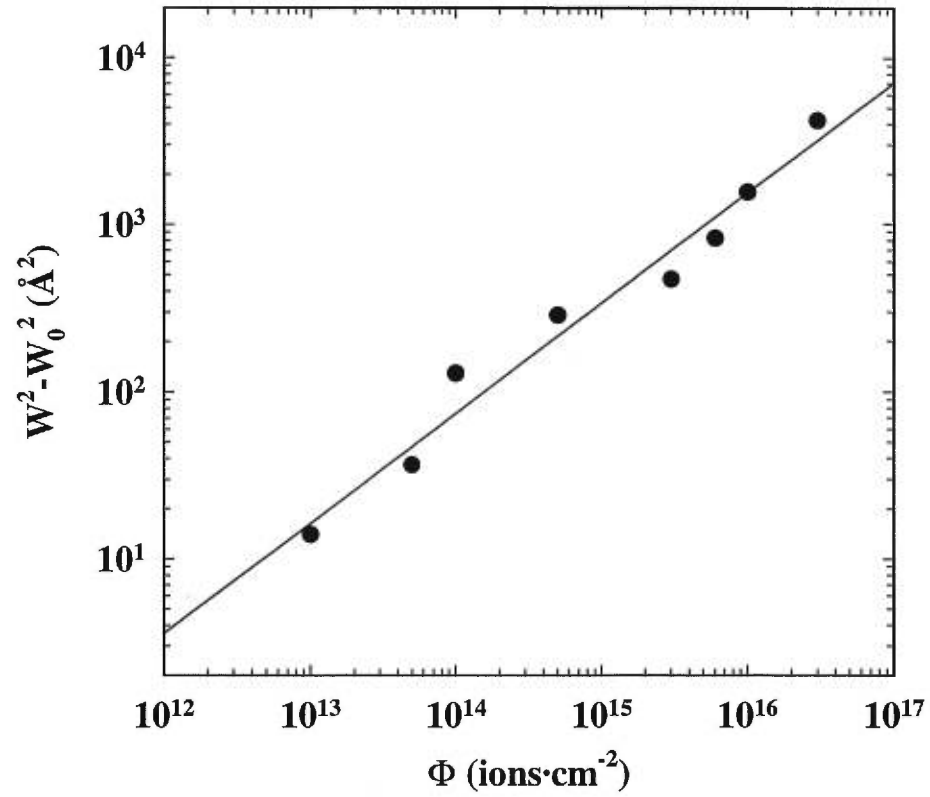
**Figure 1:** High-angle  $\theta$ - $2\theta$  XRD curves for the Fe<sub>28</sub>/Ni<sub>85</sub> multilayer as a function of ion dose  $\Phi$ . The bottom curve is the from the substrate. The acquisition time per step was 80 s. Successive curves have been shifted vertically for clarity.



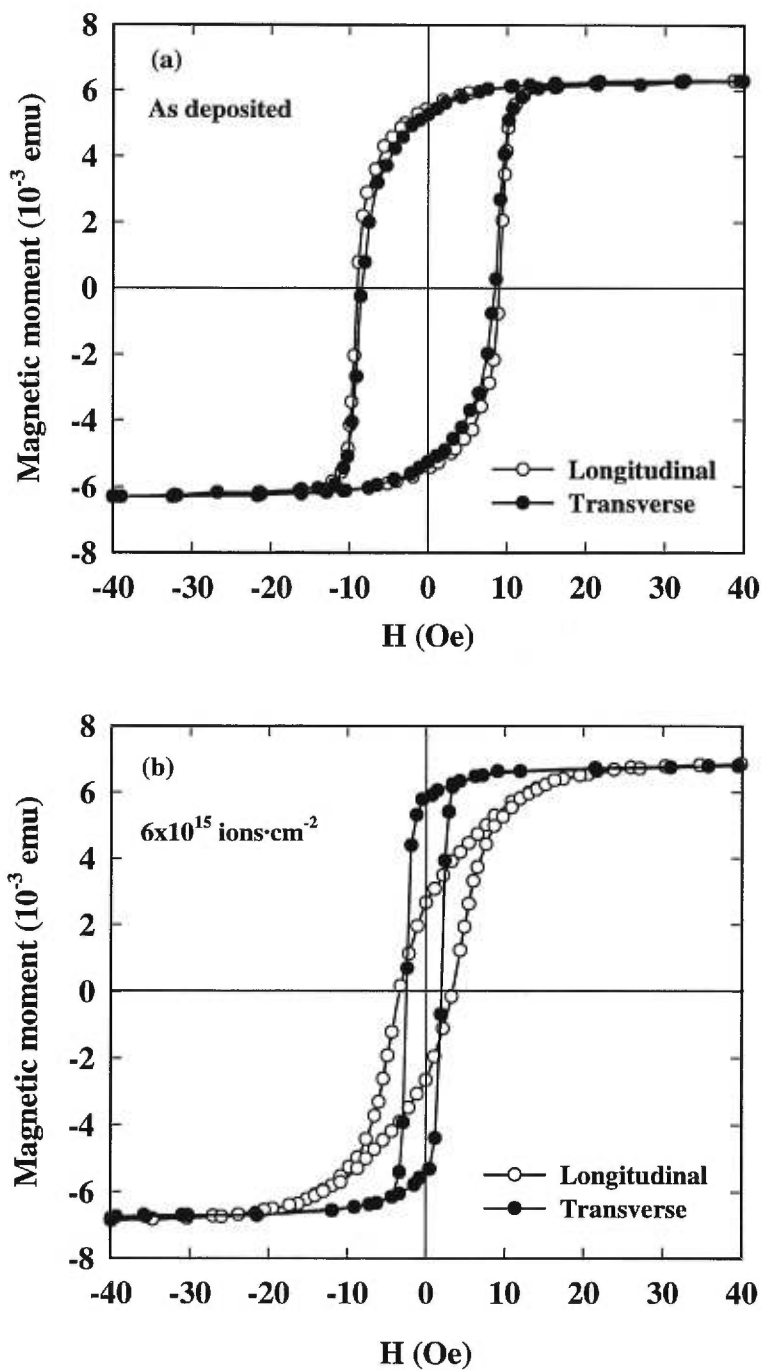
**Figure 2:** Average grain size in the growth direction as a function of the ion dose  $\Phi$  as calculated from the high-angle XRD curves using the Scherrer formula.



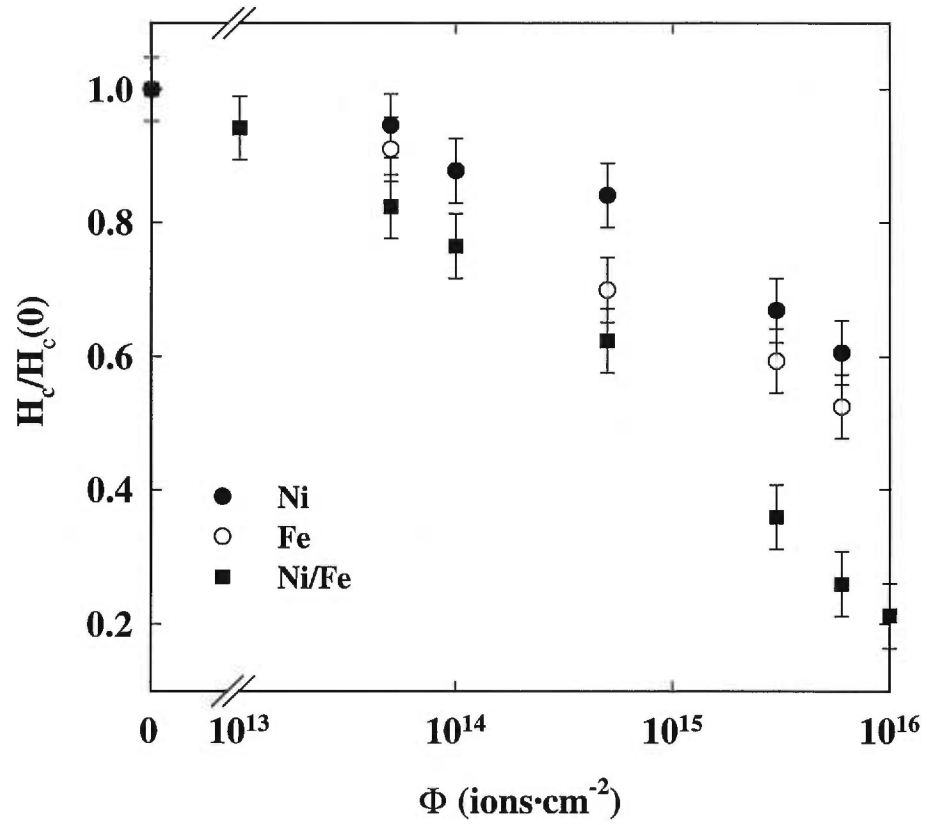
**Figure 3:** XRR curves for the Fe<sub>28</sub>/Ni<sub>85</sub> multilayer as function of the ion dose  $\Phi$ . The open circles are experimental data while the solid lines are fitted curves. Successive curves have been shifted vertically by one decade for clarity.



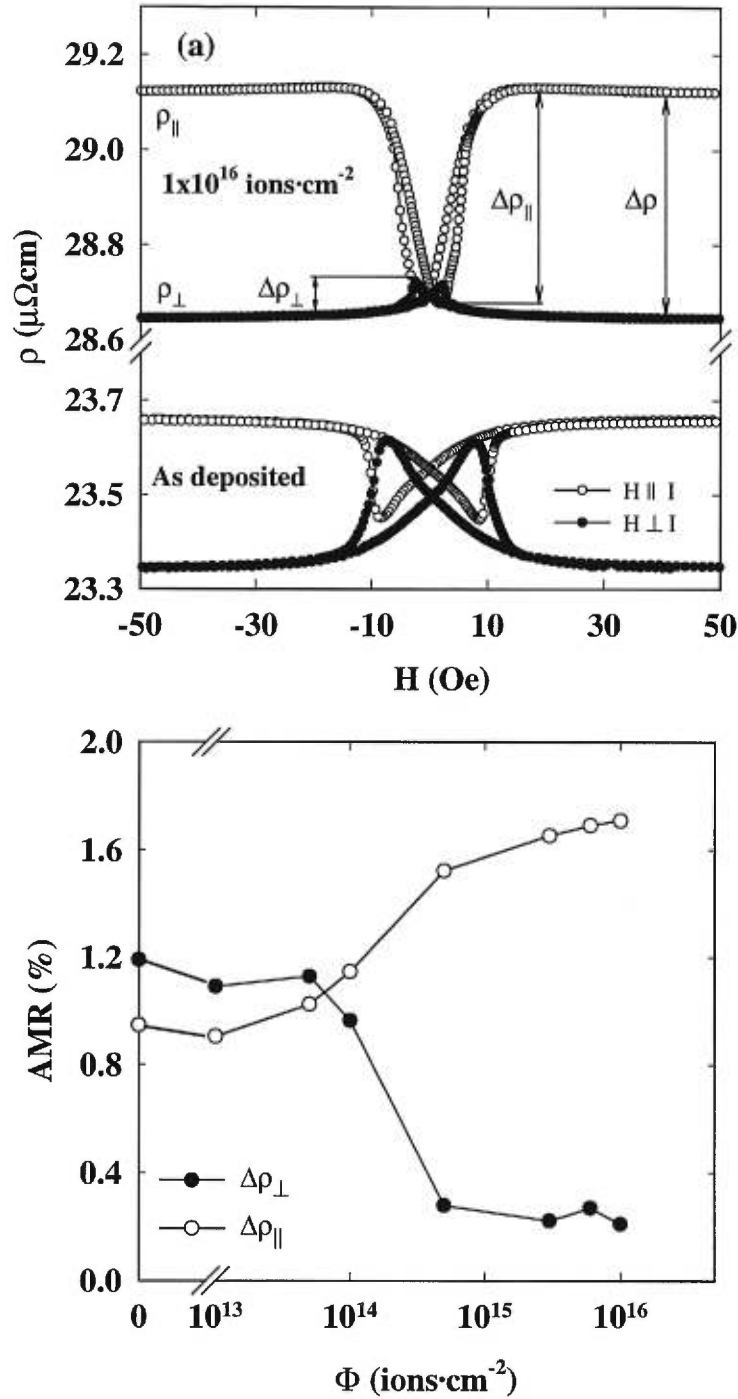
**Figure 4:** The square of the irradiation-induced intermixing width  $W^2_{Ion} - W^2_0$ , obtained from fitting of the XRR curves, as a function of the ion dose  $\Phi$ .



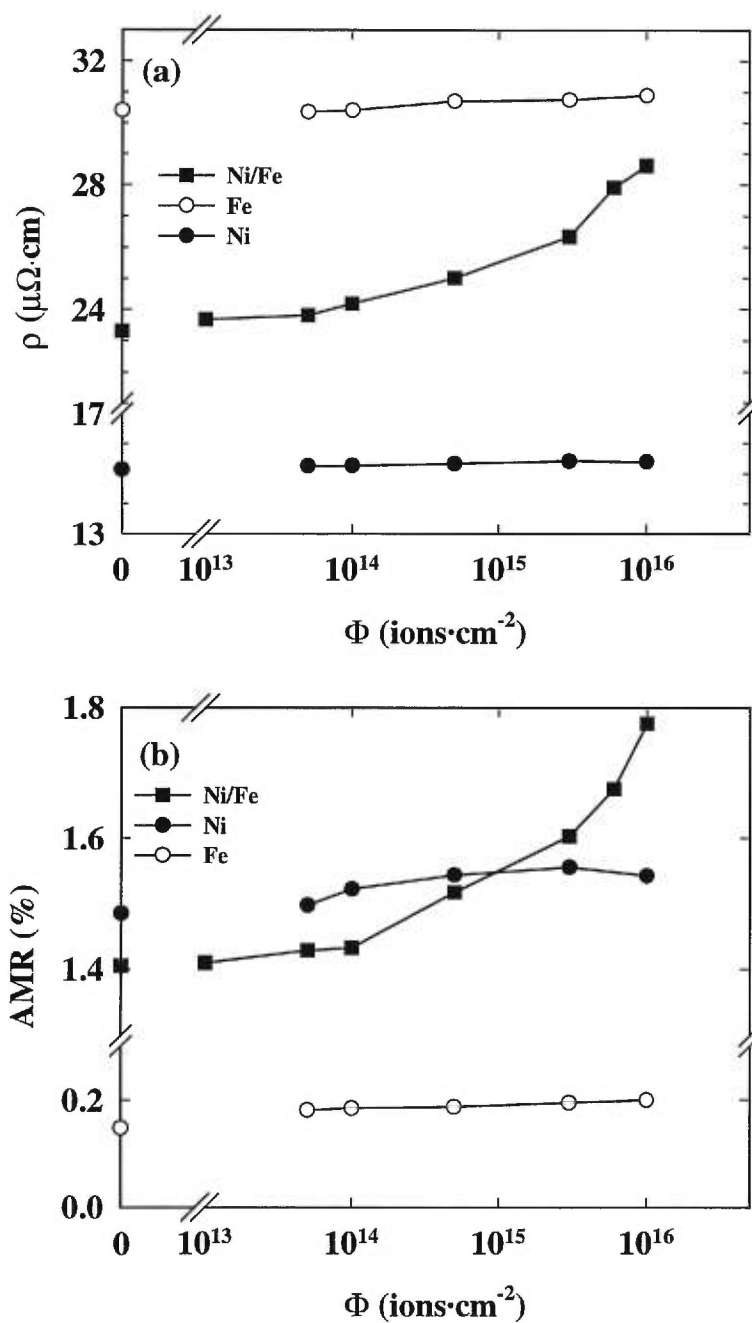
**Figure 5:** Magnetization curves for the  $\text{Fe}_{28}/\text{Ni}_{85}$  multilayer, measured at 300 K, in longitudinal (○) and transverse (●) geometries for (a) the as-deposited sample and (b) after irradiation with  $\Phi = 6 \times 10^{15}$  ions  $\text{cm}^{-2}$ .



**Figure 6:** Longitudinal coercivity for the Fe<sub>28</sub>/Ni<sub>85</sub> multilayer and for 1000 Å Fe and 1500 Å Ni single layer films as a function of the ion dose  $\Phi$ .

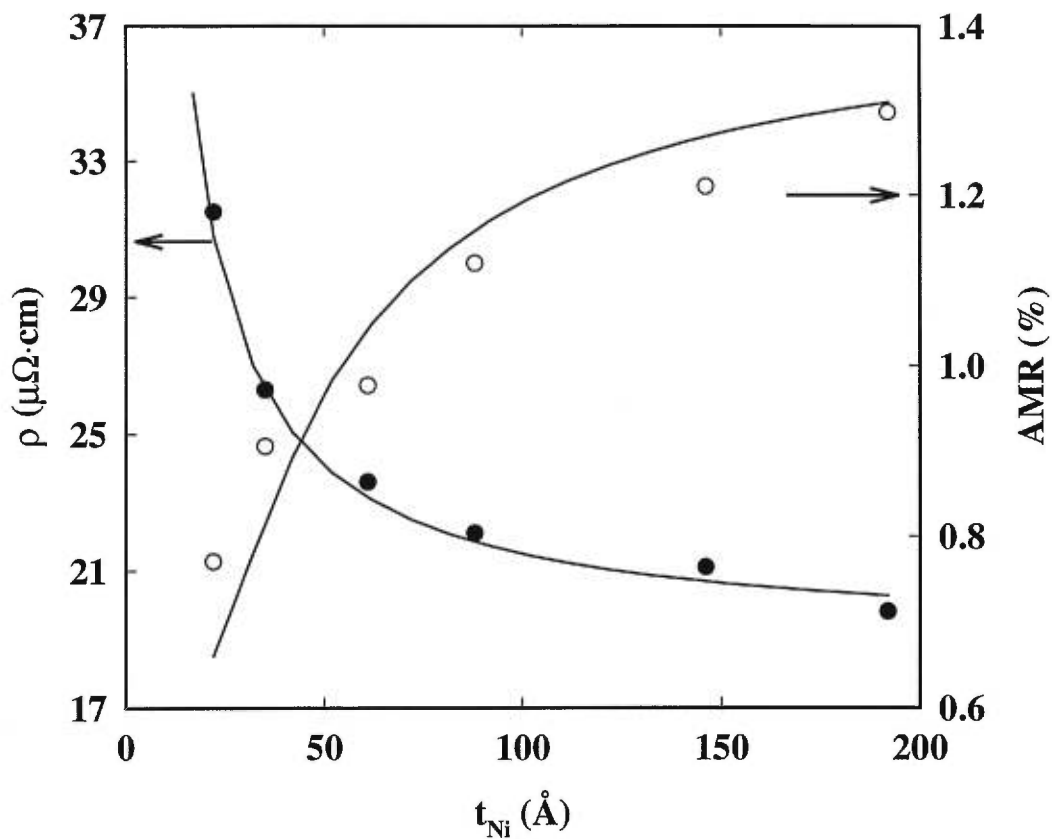


**Figure 7:** (a) Resistivity at 300 K for the  $\text{Fe}_{28}/\text{Ni}_{85}$  multilayer as a function of the intensity of the magnetic field  $H$  applied parallel ( $\rho_{\parallel}$ ) and perpendicular ( $\rho_{\perp}$ ) to the current, before irradiation and after irradiation with  $\Phi = 6 \times 10^{15} \text{ ions}\cdot\text{cm}^{-2}$ ; (b) the variation of the parallel  $\Delta\rho_{\parallel}/\rho_0$  and perpendicular  $\Delta\rho_{\perp}/\rho_0$  AMR ratios as function of the ion dose  $\Phi$ .



**Figure 8:** (a) Resistivity and (b) AMR ratio measured at 300 K as a function of ion dose  $\Phi$  for the  $\text{Fe}_{28}/\text{Ni}_{85}$  multilayer, as well as for 1000 Å Fe and 1500 Å Ni single layer films.





**Figure 9:** Anisotropic magnetoresistance ratio ( $\Delta\rho_{\perp}/\rho_0$ ) and resistivity ( $\rho$ ) as a function of the Ni layer thickness for a series of  $[\text{Fe}(x \text{ \AA})/\text{Ni}(y \text{ \AA})]_{11}$  multilayers ( $y = 3x$ ) deposited on oxidized Si (100). The solid lines have been calculated using the semi-classical model with the parameters described in the text.

## References

---

- [1] J.M. Gallego, D. Lederman, T.J. Moran and Ivan K. Schuller, *Appl. Phys. Lett.* **64**, 2590 (1994).
- [2] J. Smit, *Physica* **16**, 612 (1951).
- [3] R.I. Potter, *Phys. Rev. B* **10**, 4626 (1974).
- [4] T.R. McGuire and R.I. Potter, *IEEE Trans. MAG-11*, 1018 (1975).
- [5] O. Jaoul, I.A. Campbell and J. Fert, *J. Magn. Magn. Mater.* **5**, 23 (1977).
- [6] A.F. Mayadas, J.F. Janak and A. Gangulee, *J. Appl. Phys.* **45**, 2780 (1974).
- [7] J.M. Gallego, D. Lederman, S. Kim and Ivan K. Schuller, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 4515 (1995).
- [8] G.H. Daalderop, P.J. Kelly and F.J.A. den Broeder, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 682 (1992).
- [9] Y. Nagai, M. Senda and T. Thosima, *J. Appl. Phys.* **63**, 1136 (1988).
- [10] A.C. Ehrlich, D. J. Gillespie, T.M. Tritt, C. Kim, A. S. Edelestein and S.B. Qadri, *J. Appl. Phys.* **70**, 5819 (1991).
- [11] M. Nastasi and J.W. Mayer, *Materials Science and Engineering*, **R12**, No.1 (1994).
- [12] W.L. Johnson, Y.-T. Cheng, M. Van Rossum and M.-A. Nicolet, *Nucl. Instrum. Meth.* **B59/60**, 509 (1991).
- [13] Y. Huai, PhD. Thesis, Université de Montréal, p. 9 (1992).
- [14] J.F. Ziegler and J.P. Biersack, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, Pergamon Press, New York, 1985.
- [15] M. Cai, T. Veres, R. Morel and R.W. Cochrane, *J. Appl. Phys.* **79**, 6289 (1996); T. Veres, M. Cai, R. Morel, R.W. Cochrane, R. Abdouche and M. Sutton, *ibid* **81**, 4758 (1997).

- 
- [16] E. A. Owen, E. L. Yates and A. H. Sully, Proc. Phys. Soc. (London) **49**, 315 (1937).
- [17] L. W. McKeehan, Phys. Rev. **21**, 402 (1923).
- [18] A. J. Bradley, A. H. Jay and A. Taylor, Phil. Mag. **23**, 5456 (1937).
- [19] B.E. Warren , *X-Ray Diffraction*, Addison-Wesley, p. 253, 1969.
- [20] C. V. Thompson, J. Appl. Phys. **58**, 763 (1985).
- [21] P. Wang, D. A. Thompson and W. W. Smeltzer, Nucl. Instrum. Meth. B **7/8**, 97 (1986); P. Wang, D. A. Thompson and W. W. Smeltzer, *ibid* B **16**, 288 (1986).
- [22] T. Veres, P. Desjardins, R.W. Cochrane, M. Cai, M. Rouabhi, L. Cheng, R. Abdouche, and M. Sutton. (Submitted to Thin Solid Films)
- [23] J.C. Liu and J.W. Mayer, Nucl. Instrum. Meth. B **19/20**, 538 (1987).
- [24] M. Born and E.Wolf, *Principles of Optics*, Pergamon, Oxford, p.57, 1964.
- [25] L.G. Parratt, Phys.Rev. **95**, 359 (1954).
- [26] Y. Huai, R.W. Cochrane and M. Sutton, Phys. Rev. B **48**, 2568 (1993).
- [27] H.H Anderson, Appl. Phys., **18**, 131 (1979).
- [28] P. Sigmund and A. Gras-Marti, Nucl. Instrum. Methods **182-183**, 25 (1981).
- [29] F. Besenbacher, J. Bøttiger, S. K. Nielsen and H. J. Whitlow, Appl. Phys. A **29**, 141 (1982).
- [30] H.H. Andersen, Appl. Phys. **18**, 131 (1979).
- [31] F. Pfeifer and C. Radloff, J. Magn. Magn. Mater. **19**, 190 (1980).
- [32] D. Lederman, J.M. Gallego, S. Kim and I.K. Schuller, J. Magn. Magn. Mater. **183**, 261 (1997).
- [33] R.M. Bozorth, Phys. Rev. **70**, 923 (1946).
- [34] P.F. Carcia and A. Suna, J.Appl. Phys. **54**, 2000 (1983); R.Q. Hood and L.M.

---

Falicov, Phys. Rev. B **46**, 8227 (1992).

[35] J. Barnas, A.Fuss, R.E. Camely, P. Grünberg and W. Zinn, Phys. Rev. B **42**, 8110 (1990).

[36] Th. G.S.M. Rijks, R. Coehoorn, M.J.M. de Jong and W.J.M. de Jonge, Phys. Rev. B **51**, 283(1995).

## **CHAPITRE 6**

### **Irradiation des bicouches Ni/Fe: Effets de la microstructure et des interfaces sur les propriétés magnétiques**

T. Veres, P. Desjardins, R.W. Cochrane, M. Cai, M. Rouabhi, L. Cheng, R. Abdouche,  
et M. Sutton

A soumettre pour publication à Thin Solid Films

## **MeV Si<sup>+</sup> irradiation of Fe/Ni bilayers on SiO<sub>2</sub>/Si(001): Effects of microstructural changes and interfacial reactions on magnetic properties**

T. Veres,<sup>a</sup> P. Desjardins,<sup>b</sup> R.W. Cochrane,<sup>a</sup> M. Cai,<sup>a</sup> M. Rouabhi,<sup>c</sup> L. Cheng,<sup>c</sup> R. Abdouche,<sup>c</sup> and M. Sutton<sup>c</sup>

<sup>a</sup>*Département de physique and Groupe de Recherche en Physique et Technologie des Couches Minces, Université de Montréal, C.P. 6128, Succursale A, Montréal, QC H3C 3J7, Canada*

<sup>b</sup>*Materials Science and Engineering Department, the Coordinated Science Laboratory, and the Materials Research Laboratory, University of Illinois at Urbana-Champaign, 1101 W. Springfield, Urbana, IL 61801*

<sup>c</sup>*Department of Physics, McGill University, Montreal QC H3A 2T8, Canada*

### **Abstract**

The effects of microstructural changes and interfacial reactions during low-temperature (77 K) MeV Si<sup>+</sup> ion beam irradiation on the magnetic properties of Fe(500 Å)/Ni(500 Å) bilayers on SiO<sub>2</sub>/Si have been studied as a function of dose. The as-deposited films exhibit strong Ni(111)/Fe(011) texture with sharp interfaces. Upon irradiation, progressive grain size increase and interfacial mixing are observed. The resistivity and the anisotropic magnetoresistance ratio are virtually unchanged by irradiation up to  $1 \times 10^{16}$  ions cm<sup>-2</sup>. Higher doses, however, lead to an in-plane unidirectional anisotropy which translates into asymmetric magnetoresistance and magnetization curves. The anisotropy originates from the exchange interaction between the ferromagnetic Ni layer and an antiferromagnetic NiO layer formed at the Ni/SiO<sub>2</sub> interface as a result of ion irradiation.

## 1. Introduction

Magnetic multilayers are of increasing interest for use as sensors and recording elements. Large anisotropic magnetoresistance (AMR) field sensitivities at room temperature have been reported in ferromagnetic/ferromagnetic Ni/Co<sup>1</sup> and Fe/Ni<sup>2</sup> multilayers. The magnetic properties of these multilayers, however, strongly depend on the film microstructure as well as on the quality of the interfaces.<sup>3,4,5</sup> The magnetic behaviour of these structures is also affected by interfacial interactions between layers and with the substrate. For example, the exchange coupling at the interface between a ferromagnetic (F) and an antiferromagnetic (AF) layer can enhance magnetoresistance sensitivity.<sup>6</sup>

Ferromagnetic Fe/Ni multilayers are particularly attractive for their soft magnetic properties. Large AMR field sensitivities can be obtained following interfacial mixing through annealing<sup>7</sup> or ion beam irradiation (IBI).<sup>2</sup> We have recently reported the introduction of an in-plane easy-axis and an increase in AMR ratio from 1.4 to 1.8% following irradiation with  $1 \times 10^{16}$  ions·cm<sup>-2</sup> 1 MeV Si<sup>+</sup> of an 11-period Fe(28 Å)/Ni(85 Å) multilayer. We explained the changes in physical properties as a function of ion dose using a model of charge transport based on the Boltzmann equation which incorporates the intermixing characteristics determined from high-resolution low-angle specular x-ray reflectivity (XRR) measurements.

The present experiments were undertaken in order to examine the detailed effects of IBI on the microstructure and interfaces of Fe/Ni multilayers on SiO<sub>2</sub>/Si and the related changes in magnetic properties. We chose an Fe(500 Å)/Ni(500 Å) polycrystalline bilayer as a model system in order to directly probe the evolution of the film microstructure, surface roughness, and intermixing using a combination of plane-view and cross-sectional transmission electron microscopy (TEM and XTEM), XRR, and x-ray diffraction (XRD). The choice of the simple structure with only two layers of equal thicknesses facilitates direct observation of the detailed microstructural changes and interfacial reactions by TEM and XTEM while decreasing the number of fitting parameters in the analysis of the XRR curves.

Our results show that 1 MeV Si<sup>+</sup> ion-beam irradiation of Fe/Ni bilayers deposited on SiO<sub>2</sub>/Si(001) leads to progressive interfacial mixing and grain growth with

increasing ion dose from  $2 \times 10^{15}$  to  $1 \times 10^{17}$  ions·cm<sup>-2</sup>. For the highest dose investigated, we also observe the formation of a  $\sim 40$  Å thick antiferromagnetic NiO layer at the bilayer/substrate interface. Exchange coupling at the NiO/Ni interface induces a uniaxial in-plane anisotropy which, leads to an asymmetric magnetization process.

## 2. Experimental details

The Fe(500 Å)/Ni(500 Å) bilayers were deposited on thermally oxidized Si(100) wafers by rf triode sputtering.<sup>8</sup> The substrate temperature was maintained at  $40 \pm 3$  °C during deposition and sputtering was carried out at an rf power of 200 W and an Ar pressure of 3 mTorr, resulting in deposition rates of 0.8 and 1.2 Å s<sup>-1</sup> for Fe and Ni, respectively. A rectangular sample geometry (4 mm × 15 mm) with thin side-arms on each side distanced 8 mm apart was defined during deposition through a contact mask.

XRR measurements were performed in a high-resolution triple-crystal x-ray diffractometer using Cu  $K_{\alpha 1}$  radiation ( $\lambda = 1.54056$  Å) from a Ge(111) monochromator and a Ge(111) analyzer with an intrinsic width of typically  $10^{-5}$  radians. High-angle XRD analyses were carried out using an automated Nicolet-Stöe L11 powder diffractometer with Cu  $K_{\alpha}$  radiation. A Philips CM12 microscope with a LaB<sub>6</sub> filament operated at 120 kV was used for the TEM and XTEM analyses. Specimens were prepared using mechanical grinding to a thickness of  $\sim 30$  μm followed by Ar<sup>+</sup> ion milling in a liquid-N<sub>2</sub>-cooled stage. The incident beam angle and energy were progressively reduced from 15 to 11 deg. and 5 keV to 3.5 keV in order to minimize radiation damage artifacts and to obtain samples with relatively even thickness distributions.

The magnetic properties were measured at room temperature using a vibrating sample magnetometer operating at 85 Hz with a resolution of better than  $5 \times 10^{-6}$  e.m.u. Transport properties (resistivity and anisotropic magnetoresistance) were determined by a standard 4-point-probe method on a high-resolution ac-bridge. For both magnetic and magnetotransport measurements the external field was applied in the sample plane. In the following, by *longitudinal* and *transverse* we denote either magnetoresistance or magnetization curves measured with the magnetic field oriented along the length of the sample and perpendicular to this direction, respectively.



Normal incidence IBI was performed at a pressure of near  $10^{-7}$  Torr with 1 MeV  $\text{Si}^+$  ions rastered over an area of  $2.5 \times 2.5 \text{ cm}^2$  using the Université de Montréal Tandetron accelerator. To avoid sample heating during irradiation, the beam current was kept below  $50 \text{ nA}\cdot\text{cm}^{-2}$  and the samples were placed in thermal contact with a copper block maintained at 77 K. The ion energy of 1 MeV was selected such that the projected ion range was much larger than the total film thickness ( $1000 \text{ \AA}$ ); consequently, a uniform mixing profile throughout the multilayer is expected. TRIM simulations<sup>9</sup> give a projected ion range of  $1.5 \text{ }\mu\text{m}$  and indicate that only a very small fraction ( $< 0.1\%$ ) of the implanted ions remain within the magnetic films, the rest being transmitted or backscattered.

### 3. Results and discussion

#### 3.1. Microstructure

The Fe/Ni bilayers are polycrystalline as shown by the presence of very strong Ni(111)/Fe(110) and much weaker Ni(200), Fe(211) and Ni(222)/Fe(220) XRD Bragg peaks over the  $2\theta$  range between  $30^\circ$  and  $100^\circ$ . Figure 1 presents narrow-region scans, obtained in  $\theta$ - $2\theta$  geometry, before and after irradiation to increasing doses up to  $\Phi = 1 \times 10^{17} \text{ ions}\cdot\text{cm}^{-2}$ . The peak located at  $2\theta = 44.5^\circ$  is very close to the bulk positions for fcc Ni(111) ( $2\theta = 44.60^\circ$ ) and bcc Fe(110) ( $2\theta = 44.66^\circ$ ). For both the as-deposited and the ion-irradiated samples, the integrated intensity of this main peak is approximately 50 times larger than that for the other crystalline orientations which indicates a strong texture with (111) fcc Ni and (110) bcc Fe planes parallel to the substrate surface. The low intensity peak near  $42.6^\circ$ , whose intensity increases with  $\Phi$ , is attributed to a surface iron oxide as discussed below.

The film average interplanar distance in the growth direction  $d_\perp$  equals  $2.041 \text{ \AA}$  for the as-deposited sample, somewhat larger than that of bulk fcc Ni ( $2.030 \text{ \AA}$ ) and bcc Fe ( $2.027 \text{ \AA}$ ) which indicates the presence of a small in-plane compressive strain. Ion irradiation gradually causes the Ni(111)/Fe(011) Bragg peak to shift towards larger  $2\theta$  values, close to the expected position for an unstrained film. Such strain relaxation has been previously reported for 70 - 300 keV Kr IBI of Cu/W multilayers and attributed to atomic rearrangements in the individual layers rather than interfacial mixing<sup>10</sup>. In parallel with the angular shift, the Ni(111)/Fe(011) Bragg peak becomes

progressively more intense and sharper as  $\Phi$  increases. This is a consequence of an overall reduction of structural disorder by the formation of larger grains, in agreement with the results of TEM analyses presented below. The average grain size in the growth direction  $L$  calculated using the Scherrer formula<sup>11</sup> from the full width at half-maximum (FWHM) intensity of the Ni(111)/Fe(011) Bragg peak increases from  $\sim 140$  Å for the as-deposited to  $\sim 305$  Å after irradiation with  $\Phi = 1 \times 10^{17}$  ions  $\text{cm}^{-2}$ .

Typical XTEM images from as-deposited and ion-irradiated samples are presented in Fig. 2. The layers appear fully-dense with no evidence of either inter- or intragrain porosity. Ni and Fe layer thicknesses determined from the micrographs are 485 and 515 Å, respectively, in agreement with values obtained from deposition rate calibrations and XRR measurements. The grain size gradually increases in both the in-plane and the out-of-plane directions following irradiation, from  $\sim 120$  and  $\sim 160$  Å, respectively, in the as-deposited sample to  $\sim 470$  and  $\sim 450$  Å for Ni and 440 and 405 Å for Fe after  $1 \times 10^{17}$  ions  $\text{cm}^{-2}$ . The values for the out-of-plane grain sizes obtained by XTEM are in reasonable agreement with those calculated from the XRD curves. We also observe in Fig. 2 that the interface between the Fe and Ni layers remains sharp upon irradiation. Finally, we note the presence of a thin surface layer which, we attribute to an iron oxide (see below). The thickness of this layer increases continuously with  $\Phi$ , from  $\sim 30$  Å in the as-deposited sample to  $\sim 100$  Å after  $1 \times 10^{17}$  ions  $\text{cm}^{-2}$ .

Figure 3 shows plane-view TEM images obtained in bright-field conditions together with selected-area electron diffraction patterns (SAED). The layers are fully dense in agreement with the XTEM images shown above. The average in-plane grain size increases from about 125 Å for the as-deposited sample to  $\sim 350$  Å after irradiation at  $\Phi = 1 \times 10^{17}$  ions  $\text{cm}^{-2}$ , in good agreement with the values measured in XTEM micrographs. The diffraction rings in the SAED patterns have circumferentially uniform intensities indicating no in-plane texture. In agreement with the XRD results, the most intense diffraction ring corresponds to the Fe(011)/Ni(111) peak. No changes in the relative intensities of the various rings were detected following IBI. The diffraction rings gradually become composed of discrete spots as the ion-dose increases due to significant grain growth as mentioned above. Such increases in grain sizes upon ion irradiation have been reported previously for Ni films as well as Ni/Fe multilayers and

attributed to grain boundary migration during recrystallization of small damaged grains on adjacent grains of larger dimension. In this process, the thermal contributions to grain coarsening mechanisms are negligible.<sup>12</sup>

We also note in Fig. 3b the appearance of two additional rings near the center of the diffraction pattern. These rings are identified as the (222) and (113) peaks of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> and attributed to the formation of a thin layer of surface oxide. Irradiation doses of  $\Phi = 1 \times 10^{17}$  ions cm<sup>-2</sup> lead to the formation of an additional layer at the Ni/SiO<sub>2</sub> interface as shown in the XTEM image of Fig. 4a. Further evidence for interfacial reaction between the Ni layer and the SiO<sub>2</sub> substrate is provided in the XRD  $\theta$ - $2\theta$  diffraction curve of Fig. 4b which exhibits a peak at  $2\theta = 38.2^\circ$ , close to the expected position for NiO(111).

XRR measurements were performed to quantify ion-induced mixing at the Fe/Ni interface. Figure 5 shows the experimental (open dots) and calculated (solid line) XRR curves, plotted on a logarithmic scale, as a function of the scattering wave vector  $Q$ . Beyond the critical  $Q$  vector for total external reflection, the intensity falls off rapidly ( $\sim Q^4$ ) with a series of finite-thickness interference fringes superimposed on the falling background. The long wavelength fringes that become more apparent as  $\Phi$  increases are due to the presence of the surface iron oxide layer.

The XRR curves were fitted using a standard optical model<sup>13</sup> based on the recursive theory of Parratt.<sup>14</sup> In this model, the structure is considered to consist of a stack of individual layers each having a constant electron density, and the reflectivity for the whole heterostructure is calculated using a matrix method.<sup>15</sup> Any single layer in the structure is characterized by a (2×2) matrix which accounts for the layer thickness, the complex refractive index, and the wave vector of the incident beam. Roughnesses and interfacial mixing are modeled as Gaussian distributions of the interface position and directly incorporated into the calculation. Calculated curves are fitted to the data using a non-linear least-squares procedure describe in ref.<sup>16</sup> The main fitting parameters are the individual layer thicknesses ( $t_{\text{Ni}}$  and  $t_{\text{Fe}}$ ), the Ni/Fe interface roughness ( $\sigma_{\text{int}}$ ) and the substrate roughness ( $\sigma_{\text{sub}}$ ). The thickness ( $t_{\text{oxide}}$ ), roughness ( $\sigma_{\text{oxide}}$ ) and electron density ( $\rho_{\text{e,oxide}}$ ) of the surface iron oxide layer were determined from the period and amplitude of the long-wavelength oscillations.

The results of the fits are shown as solid lines in Fig. 5 while the main fitting parameters are summarized in Table I. The agreement between the experimental and calculated curves with respect to both the position and the intensity of the peaks is excellent for all samples. The interface roughness  $\sigma_{\text{int}}$  increases from 19 Å for the as-deposited sample to 35 Å at  $\Phi = 1 \times 10^{17}$  ions  $\text{cm}^{-2}$ . The XRR curves also reveal the growth of a surface oxide with increasing  $\Phi$  (see table I). For the as-deposited sample,  $t_{\text{oxide}} = 27$  Å while  $\rho_{\text{e,oxide}} \sim 0.6$  Å<sup>-3</sup>. Ion-beam irradiation leads to increasing  $t_{\text{oxide}}$  values while the electron density of the oxide layer changes from approximately that of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ( $\rho_{\text{e}} \sim 0.507$  Å<sup>-3</sup>) in the as-deposited sample to become closer to that of Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> ( $\rho_{\text{e}} \sim 0.722$  Å<sup>-3</sup>) after irradiation. This latter result agrees well with the position of the additional rings observed in the SAED patterns of Figure 3b. The XRR analyses also indicate the formation of a 42-Å-thick NiO layer at the bilayer/substrate interface when  $\Phi$  reaches  $1 \times 10^{17}$  ions  $\text{cm}^{-2}$ , as expected from Fig. 4a.

### 3.2 Magnetic properties

Fig. 6 presents the normalized magnetization loops from the bilayers as a function of the direction of the in-plane magnetic field ( $\alpha = 0$  corresponds to the longitudinal direction). All curves for the as-deposited sample are *symmetric* about  $H = 0$  and saturate in relatively low fields ( $\sim 15$  Oe). The as-deposited sample shows no sign of in-plane anisotropy as the coercive field  $H_c$  and the remanent magnetization  $M_r$  are nearly identical for the longitudinal ( $\alpha = 0^\circ$ ,  $H_c \sim 6.5$  Oe,  $M_r \sim 0.85$ ) and transverse directions ( $\alpha = 90^\circ$ ,  $H_c \sim 7.5$  Oe,  $M_r \sim 0.89$ ). A small increase in  $H_c$  and  $M_r$  is observed near  $\alpha = 40^\circ$  ( $H_c \sim 9$  Oe,  $M_r \sim 0.94$ ). Irradiation doses up to  $2 \times 10^{16}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  only lead to a small decrease ( $\sim 2$  Oe) in the coercivity while the remanent magnetization and saturation fields remain unchanged.

After irradiation with  $1 \times 10^{17}$  ions $\cdot\text{cm}^{-2}$ , the magnetization loops exhibit an asymmetric behavior which is most pronounced near  $\alpha = 40^\circ$  (Fig. 6). The orientation of the magnetization gradually switches as the field is swept from the positive ( $+H_s$ ) to negative ( $-H_s$ ) saturation fields. In contrast, the magnetization is reversed abruptly at coercivity when going from negative to positive fields. This demonstrates that the time-

reversal symmetry is no longer preserved in the magnetization process, and indicates *unidirectional anisotropy*. Such an exchange coupling has been reported for materials systems containing antiferromagnetic/ferromagnetic<sup>17,18</sup> and ferrimagnetic/ferromagnetic<sup>19,20</sup> interfaces as the exchange interaction at the interface shifts the hysteresis loop of the FM layer away from the zero-field.<sup>21</sup> Since this behavior is only observed in our samples after irradiation to the highest dose, we attribute it to an exchange coupling between the Ni and NiO layers. The absence of shift of the hysteresis loop is presumably related to the small thickness and considerable roughness of the NiO layer which does not allow for a strong interface exchange coupling. This is supported by recent studies that have shown that the coupling strength decreases abruptly with decreasing antiferromagnetic layer thickness to become zero for nanometer-thick layer,<sup>22</sup> is roughly inversely proportional to the thickness of the ferromagnetic layers,<sup>23,24</sup> and decreases with increasing interface roughness.<sup>25</sup>

Figure 7(a) shows the MR curves measured in transverse ( $\rho_{\perp}$ ) and parallel ( $\rho_{\parallel}$ ) directions for the as-deposited Ni/Fe bilayer. These curves, obtained by rotating the magnetic field at saturation between longitudinal and transverse orientations, are symmetric with comparable amplitudes for the parallel ( $\Delta\rho_{\parallel} \sim 0.16 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ) and perpendicular magnetoresistivities ( $\Delta\rho_{\perp} \sim 0.14 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ) and saturate for low H values ( $\sim 30$  Oe).  $\Delta\rho_{\parallel}$  and  $\Delta\rho_{\perp}$  are smaller than the total anisotropic magnetoresistivity  $\Delta\rho = \rho_{\parallel} - \rho_{\perp}$  ( $\sim 0.24 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ), indicating that both rotations and domain-wall displacements contribute to the magnetization process in the as-deposited samples. The AMR ratio, defined as  $\Delta\rho/\rho_0$  where  $\rho_0 = (\rho_{\parallel} + \rho_{\perp})/2$  is the average resistivity, is  $\sim 1.0\%$  in the as-deposited bilayers. This value is smaller than that measured for 1000-Å-thick Ni films (1.5%). We attribute this difference to a larger average resistivity of the Ni/Fe bilayer samples ( $\sim 24 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ) compared with that of the Ni films ( $\sim 15 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ). Irradiation doses up to  $2 \times 10^{16}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  lead to negligible changes in  $\rho$  and AMR.

The magnetoresistance curves for the samples irradiated with  $1 \times 10^{17}$  ions  $\text{cm}^{-2}$  exhibit a very unusual field dependence for  $\rho_{\perp}$  and  $\rho_{\parallel}$  (Fig. 7b). For both  $\rho_{\perp}$  and  $\rho_{\parallel}$ , sweeping the magnetic field between  $+H_s$  and  $-H_s$  results in a large increase of one of the magnetoresistance peaks ( $\sim 0.19 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ) at the expense of the other ( $\sim 0.07 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ),

the former value being comparable to the total anisotropic magnetoresistivity  $\Delta\rho$  ( $\sim 0.21 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ). This asymmetric behaviour agrees well with the picture suggested by the magnetization curves which indicate that the magnetization process is dominated by in-plane rotations when the field is switched from  $+H_s$  to  $-H_s$  and by wall displacements when the field direction is reversed. The small decrease in average resistivity ( $\sim 0.9 \mu\Omega\cdot\text{cm}$ ) is related to the enhanced crystalline quality of the bilayer as the grain size increased considerably upon irradiation. As expected, no significant changes were observed in the AMR amplitude for the irradiated bilayers since effect at the *only one* Ni/Fe interface is negligible and the AMR effects come solely from the Ni layer.

#### 4. Conclusion

A combination of TEM, XRD and XRR analyses has been used to study the effects of MeV  $\text{Si}^+$  IBI on the structural properties and interfacial reactions in highly textured Fe(110)/Ni(111) bilayers deposited on  $\text{SiO}_2$ . Progressive interfacial mixing and grain growth is observed with increasing dose. For the highest dose investigated, we also note the formation of a  $\sim 40 \text{ \AA}$  thick antiferromagnetic NiO layer at the Ni/ $\text{SiO}_2$  interface. Exchange coupling at that interface induces a uniaxial in-plane anisotropy which leads to an asymmetric magnetization process dominated by in-plane rotations when the field is switched from  $+H_s$  to  $-H_s$  and by wall displacements when the field direction is reversed.

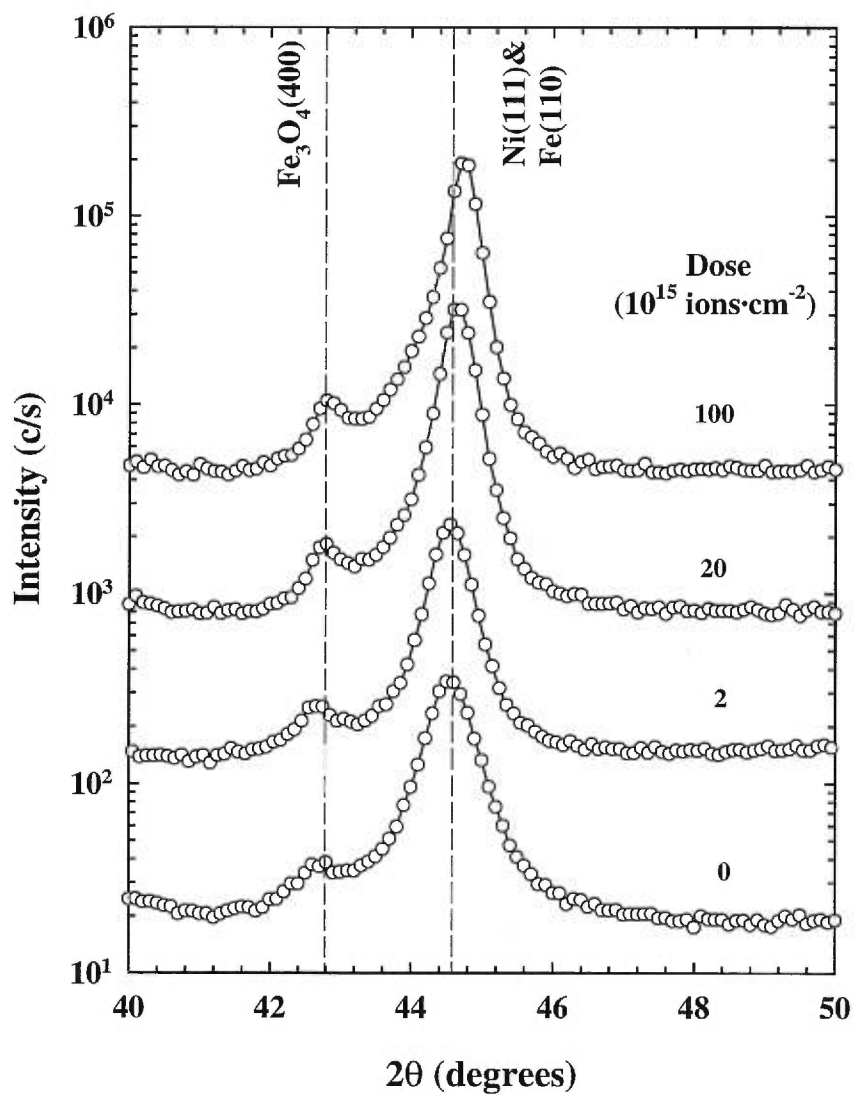
#### Acknowledgements

The authors would like to thank R. Morel (CEA Grenoble) for helpful discussions on magnetotransport modeling, S. Roorda for valuable discussions about ion-beam irradiation and F. Schiettekatte for his assistance with the ion-beam experiments. This work was supported by the Natural Sciences and Engineering Research Council of Canada and the Fonds pour la formation de chercheurs et l'aide à la recherche of Québec. We also appreciate the use of the Center for Microanalysis of Materials, partially supported by the Department of Energy, at the Frederick Seitz Materials Research Laboratory (University of Illinois).

**Table I**

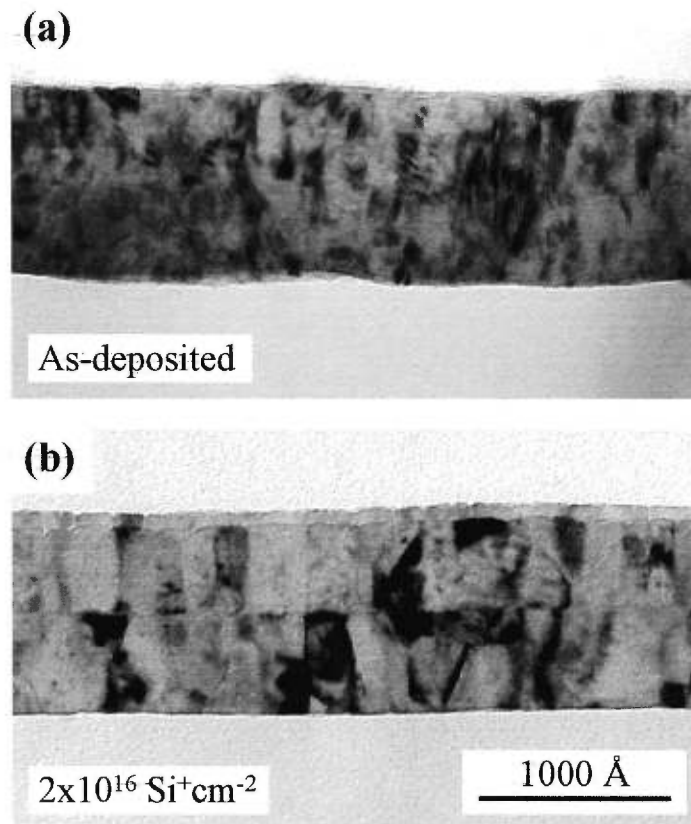
Structural parameters determined from XRR analyses as a function of ion dose  $\Phi$ : the Ni/Fe interface roughness ( $\sigma_{\text{int}}$ ), the substrate roughness ( $\sigma_{\text{sub}}$ ), the overlayer thickness ( $t_{\text{oxide}}$ ), the surface roughness ( $\sigma_{\text{surface}}$ ), and the overlayer electron density ( $\rho_{\text{e,oxide}}$ ).

Dose $\Phi$ ( $10^{15} \text{ Si}^+ \text{ cm}^{-2}$ )	$\sigma_{\text{int}}$ ( $\text{\AA}$ )	$\sigma_{\text{sub}}$ ( $\text{\AA}$ )	$t_{\text{oxide}}$ ( $\text{\AA}$ )	$\sigma_{\text{surface}}$ ( $\text{\AA}$ )	$\rho_{\text{e,oxide}}$ ( $\text{\AA}^{-3}$ )
0	$19 \pm 1.5$	$23.6 \pm 0.7$	$27.3 \pm 1.2$	$12.9 \pm 0.4$	$0.60 \pm 0.2$
2	$16 \pm 1.2$	$8.3 \pm 0.1$	$29.1 \pm 0.5$	$18.4 \pm 0.6$	$0.74 \pm 0.1$
20	$20 \pm 2.4$	$9.3 \pm 0.8$	$69.4 \pm 2.5$	$12.5 \pm 0.4$	$0.98 \pm 0.1$
100	$35 \pm 3.5$	$24.1 \pm 1.4$	$88.9 \pm 2.9$	$28.9 \pm 2.9$	$0.91 \pm 0.2$

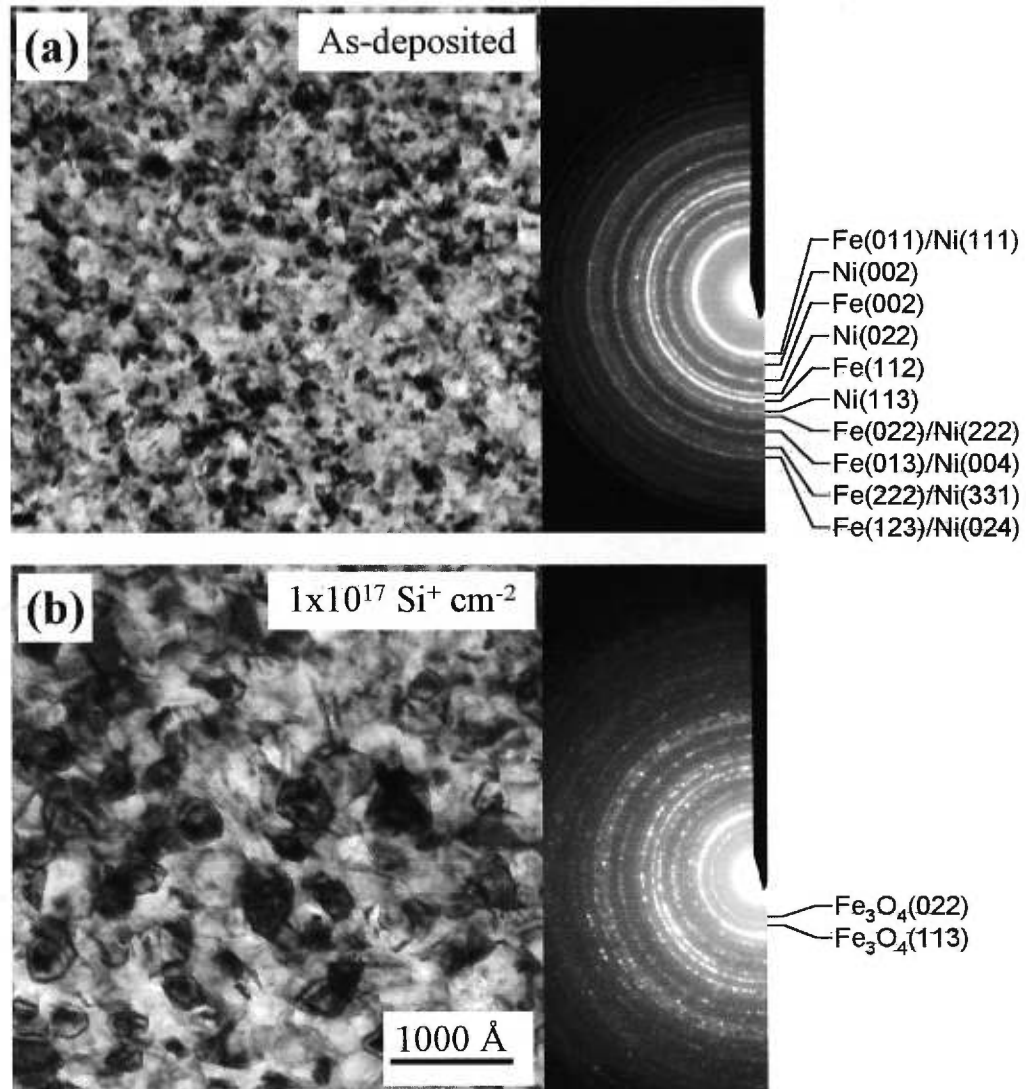


**Figure 1:** High-angle  $\theta$ - $2\theta$  XRD curves from the Fe/Ni bilayer as a function of ion dose  $\Phi$ .

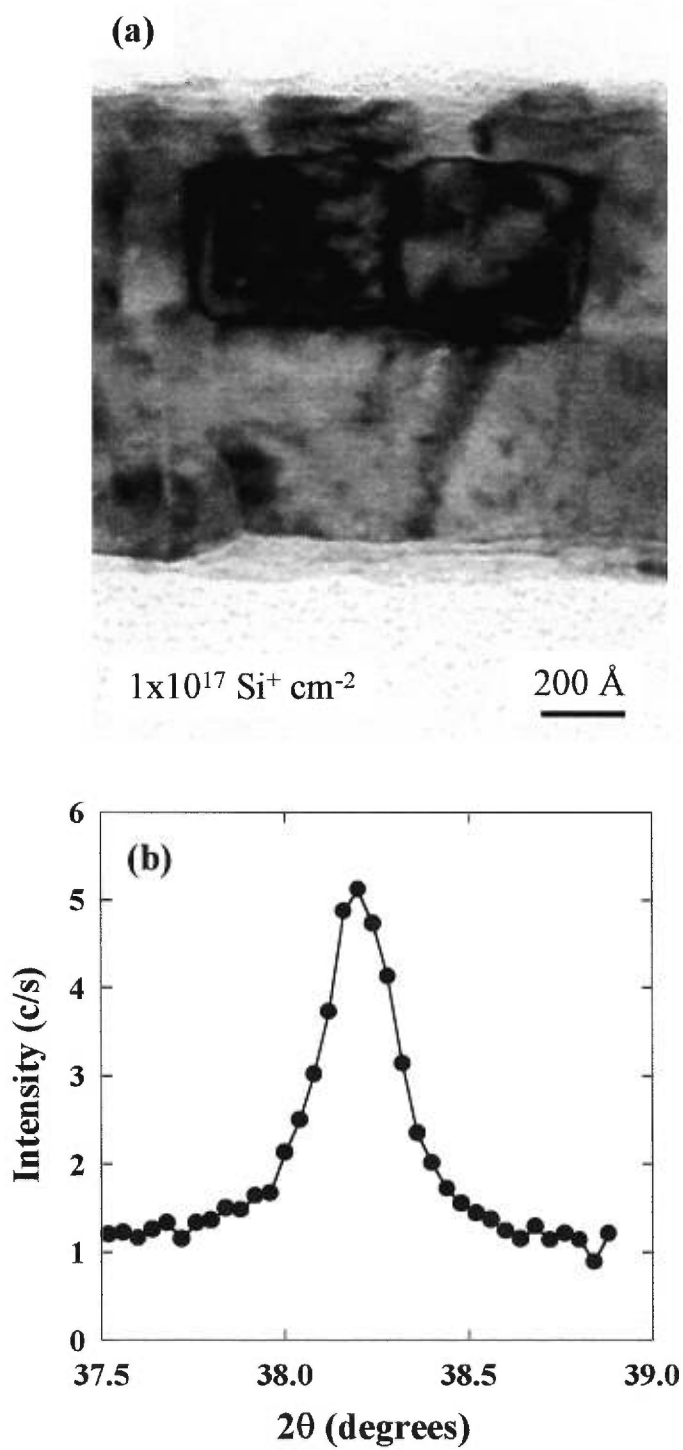




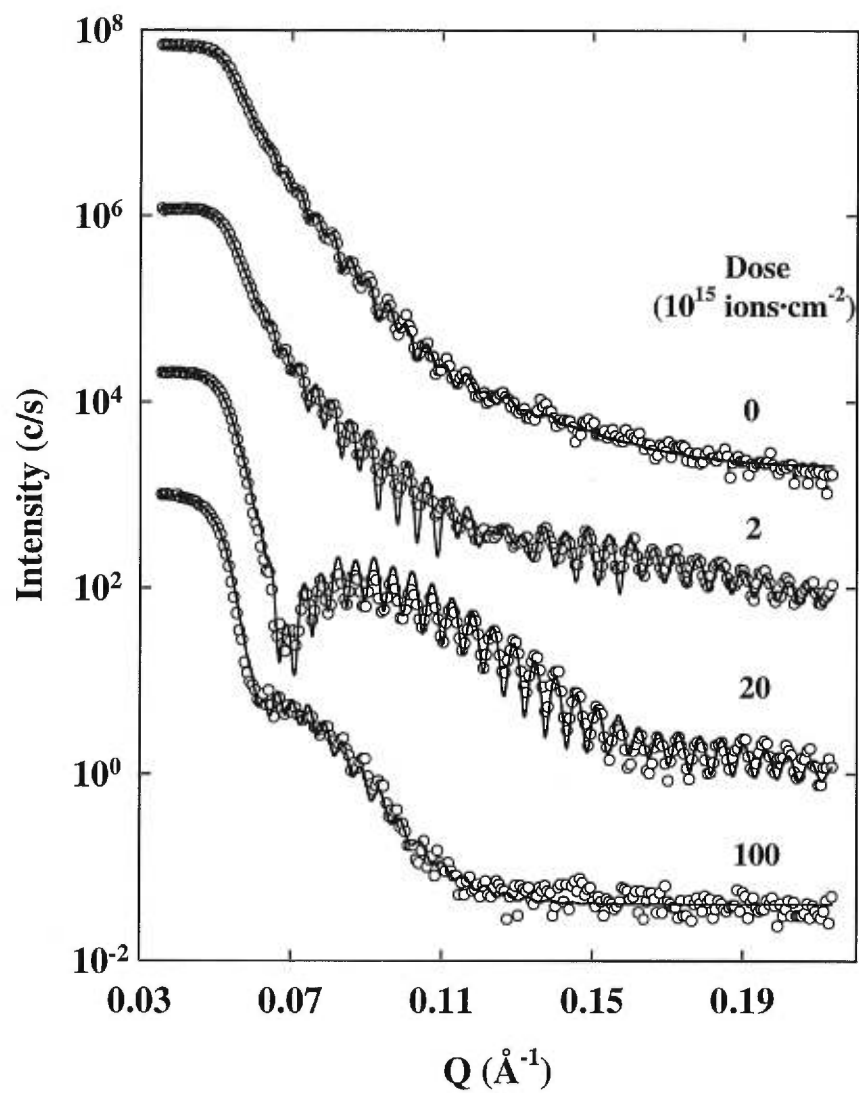
**Figure 2:** Bright-field XTEM micrographs from (a) the as-deposited Fe/Ni bilayer and (b) after irradiation with  $\Phi = 2 \times 10^{16} \text{ ions cm}^{-2}$ .



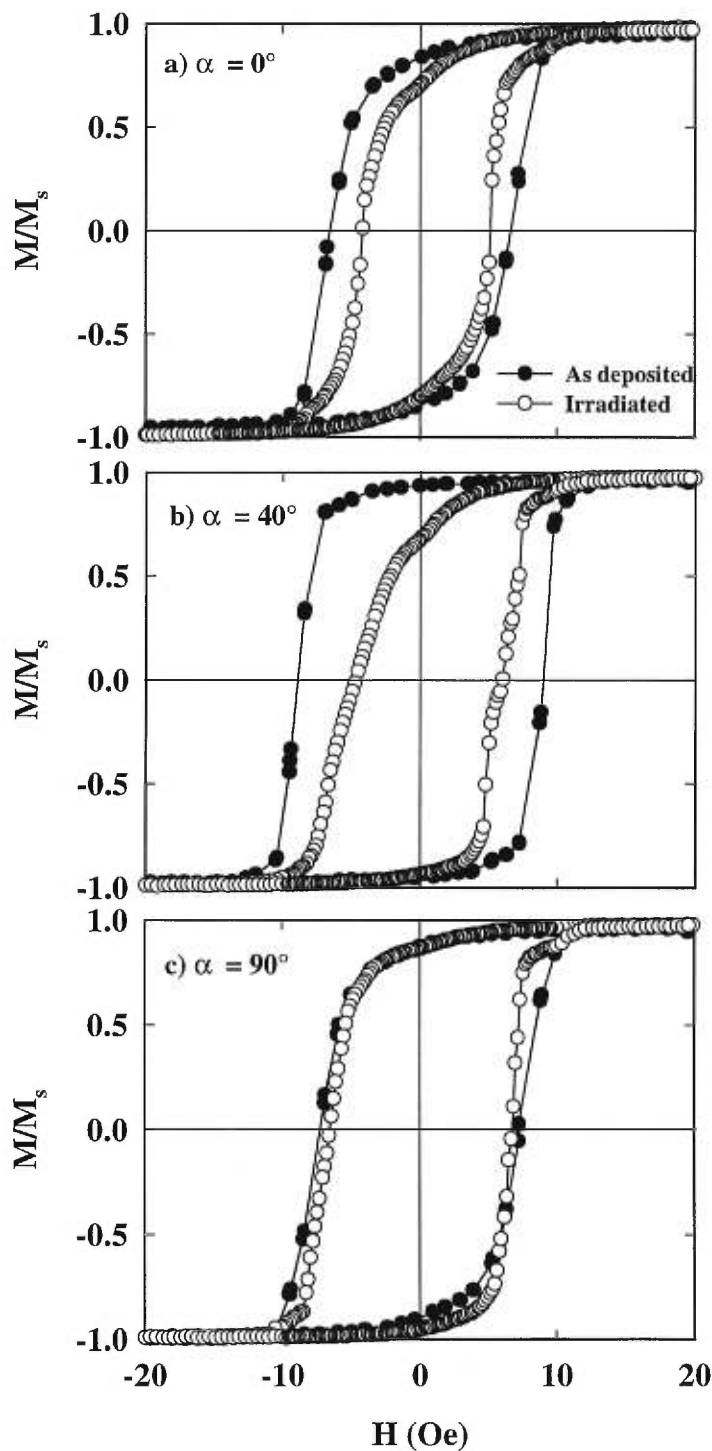
**Figure 3:** Bright-field plan-view TEM micrographs and corresponding SAED patterns from (a) the as-deposited Fe/Ni bilayer and (b) after irradiation with  $\Phi = 2 \times 10^{16} \text{ ions cm}^{-2}$ .



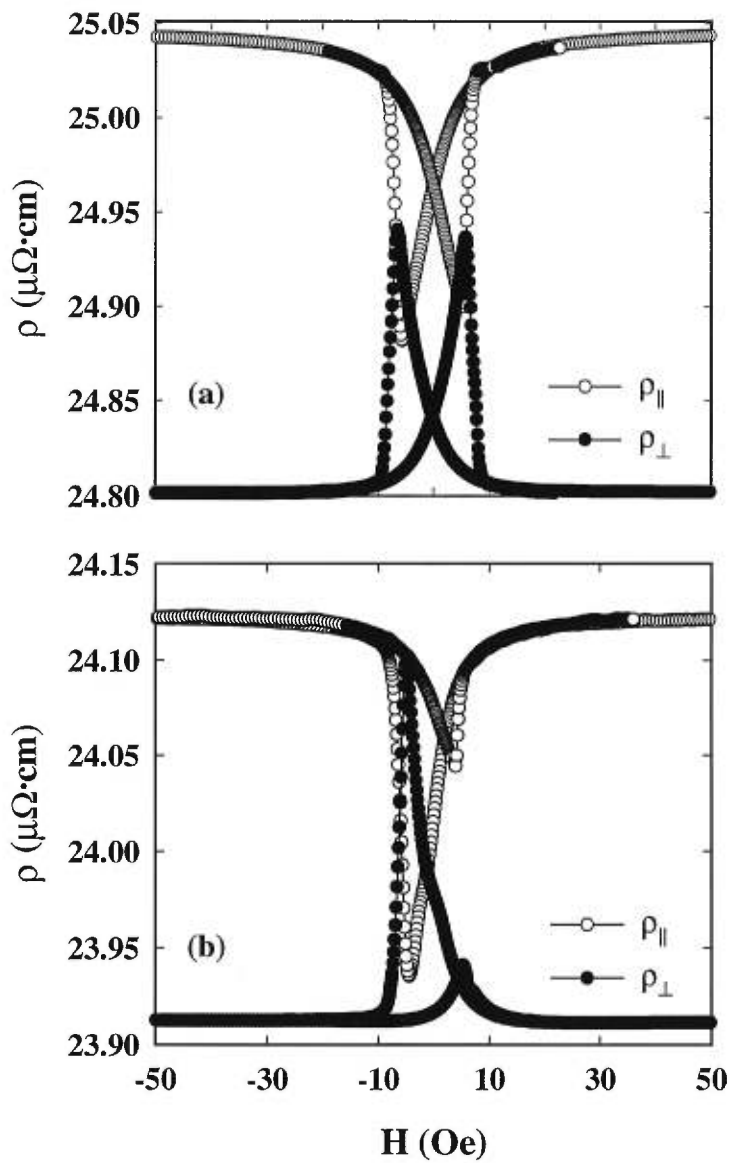
**Figure 4:** (a) Bright-field XTEM micrograph and (b)  $\theta$ - $2\theta$  XRD curve near  $2\theta = 38^\circ$  from the Fe/Ni bilayer irradiated with  $\Phi = 1 \times 10^{17}$  ions  $\text{cm}^{-2}$ .



**Figure 5:** XRR curves from the Fe/Ni bilayers as a function of dose  $\Phi$ . The open circles are experimental data while the solid lines are fitted curves. Successive curves have been shifted vertically by one decade for clarity.



**Figure 6:** Normalized magnetization curves for the as-deposited ( $\bullet$ ) and irradiated ( $\Phi = 1 \times 10^{17}$  ions  $\text{cm}^{-2}$ ) ( $\circ$ ) Fe/Ni bilayers, measured at 300 K, for (a)  $\alpha = 0^\circ$ , (b)  $\alpha = 40^\circ$  and (c)  $\alpha = 90^\circ$ .  $M_s$  is the saturation magnetic moment.



**Figure 7:** Resistivity at 300 K for the Fe/Ni bilayer as a function of the intensity of the magnetic field  $H$  applied parallel ( $\rho_{||}$ ) and perpendicular ( $\rho_{\perp}$ ) to the current (a) before irradiation and (b) after irradiation with  $\Phi = 1 \times 10^{17}$  ions·cm<sup>-2</sup>.

## References

---

- <sup>1</sup> J.M. Gallego, D. Lederman, T.J. Moran, and Ivan K. Schuller, *Appl. Phys. Lett.* **64** (19) 2590 (1994).
- <sup>2</sup> T. Veres, M. Cai, R.W. Cochrane, M. Rouabhi, S. Roorda, and P. Desjardins, *Thin Solid Films*, (submitted)
- <sup>3</sup> G.H. Daalderop, P.J. Kelly, and F.J.A. den Broeder, *Phys. Rev. Lett.* **68** (5), 682 (1992).
- <sup>4</sup> Y. Nagai, M. Senda and T. Thosima, *J. Appl. Phys.* **63**, 1136 (1988).
- <sup>5</sup> C. Prados, D.V. Dimitrov, G.C. Hadjipanayis, and A. Hernando, *J. Magn. Magn. Mater.* **177-181**, 1293 (1998).
- <sup>6</sup> B. Dieny, *J. Magn. Magn. Mater.* **136**, 335 (1994).
- <sup>7</sup> T. Veres, R.W. Cochrane, P. Desjardins (unpublished).
- <sup>8</sup> Y. Huai, PhD. Thesis, Université de Montréal, p. 9 (1992).
- [9] J.F. Ziegler and J.P. Biersack, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, Pergamon Press, New York, 1985.
- <sup>10</sup> K.F. Badawi, Ph. Goudeau, J. Pacaud, C. Jaouen, J. Delafond, A. Naudon and G. Gladyszewski, *Nucl. Instr. and Meth.* B80/81, 404 (1993).
- <sup>11</sup> B.E. Warren, *X-Ray Diffraction*, Addison-Wesley, (1969) p. 253.
- <sup>12</sup> H.A. Atwater, C.V. Thompson, and H. I. Smith, *J. Appl. Phys.* **64** (5), 2337 (1988).
- <sup>13</sup> M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics*, Pergamon, Oxford, p.57, 1964.
- <sup>14</sup> L.G. Parratt, *Phys. Rev.* **95**, 359 (1954).
- <sup>15</sup> Y. Huai, R.W. Cochrane and M. Sutton, *Phys. Rev. B* **48**, 2568 (1993).
- <sup>16</sup> Y. Huai, R.W. Cochrane and M. Sutton, *Phys. Rev. B* **48**, 2568 (1993).
- <sup>17</sup> A. Yelon, in: M.H. Francombe, R.W. Hoffman (Eds.), *Physics of Thin Films*, vol.6, Academic Press, New York, 205 (1971).
- <sup>18</sup> J. Nogués, I. K. Schuller, *J. Magn. Magn. Mater.* **192**, 203 (1999).
- <sup>19</sup> W.C. Cain, M.H. Kryder, *J. Appl. Phys.* **67** 5722 (1990).
- <sup>20</sup> P.J. van der Zaag, A.R. Ball, L. F. Feiner, R.M. Wolf, P.A.A. van der Heijden, *J. Appl. Phys.* **79**, 5103 (1996).

- 
- <sup>21</sup> R.P. Michel, A. Chaiken, C.T. Wang, L.E. Johnson, Phys. Rev. B 58, 8566 (1998).
- <sup>22</sup> R. Jungblut, R. Coehoorn, M.T. Johnson, J. van de Stegge, A. reinders, J. Appl. Phys. 75, 6659 (1994).
- <sup>23</sup> D.H. Han, J.G. Zhu, J.H. Judy, J. M. Sivertsen, J. Appl. Phys. 81 (1), 340 (1997).
- <sup>24</sup> D.Y. Kim, C.G. Kim, B.S. Park, D.G. Hwang, S.S. Lee, J. Appl. Phys. 85 (8) 5783 (1999).
- <sup>25</sup> W.F. Egelhoff Jr., P.J. Chen, C.J. Powell, M. Stiles, R.D. McMichael, J. Appl. Phys. 79 2491 (1996).



# **Partie III**

**Irradiation ionique des nanostructures  $\text{Co}_x\text{Ag}_{1-x}$  :  
modifications structurales et leur influence sur les propriétés  
magnétiques et de transport.**

## Présentation des articles

La troisième partie de cette thèse est consacrée à l'étude des effets de l'irradiation ionique sur la microstructure, les propriétés magnétiques et de transport des multicouches et films granulaires à base de Co et Ag. Les résultats de nos travaux ont été présentés dans deux articles soumis pour publication.

**Article 5:** *Ion-beam modification of Co/Ag multilayers I: Structural and magnetic properties of films with very thin Co layers*

Soumis à Journal of Applied Physics, juin (1999).

Accepté le 28 septembre 1999

Auteurs: T. Veres, M. Cai, R.W. Cochrane and S. Roorda.

Dans l'article 5, soumis au *Journal of Applied Physics*, nous présentons une première étude sur les effets de l'irradiation ionique avec des ions  $\text{Si}^+$  ayant une énergie de 1 MeV, sur la structure, les propriétés magnétiques et la magnétorésistance des multicouches Co/Ag. Dans cet article, nous étudions l'évolution d'une multicouche dont l'épaisseur des couches de Co est d'environ 5 Å. La magnétorésistance à la température de la pièce, alors obtenue, est maximale (~ 12 %). Cette épaisseur est particulièrement intéressante, car elle correspond à la transition entre films où les couches de Co sont continues (*multicouches*:  $t_{\text{Co}} > 8 \text{ \AA}$ ) et films où le cobalt est dispersé à travers toute l'épaisseur du film (*matériaux granulaires*:  $t_{\text{Co}} < 4 \text{ \AA}$ ).

Des modèles phénoménologiques ont été utilisés pour interpréter les résultats de magnétorésistance ainsi que les courbes d'aimantation. Ces modèles nous ont permis d'estimer, par des moyens simples, les évolutions dans la microstructure, suite à l'irradiation, et de la comparer avec les résultats obtenus par des mesures de diffraction X ou des mesures de relaxation superparamagnétique.

Nous avons pu mettre en évidence une évolution d'un état initial où le Co, initialement dispersé dans la matrice d'Ag, est progressivement aggloméré dans des particules, de plus en plus grandes. La corrélation trouvée entre la magnétorésistance et la taille des particules de Co, montre l'importance de la diffusion dépendante du spin à l'interface entre les particules de Co et la matrice d'Ag.

**Article 6:** *Ion-beam modification of Co/Ag multilayers II: The variation of the structural and magnetic properties with Co layer thickness.*

Soumis à *Journal of Applied Physics*, juillet (1999)

*Auteurs:* T. Veres, M. Cai, R.W. Cochrane, M. Rouabhi, F.Schiettekatte, S. Roorda, S. Germain.

L'ensemble des résultats obtenus sur les effets de l'irradiation ionique sur les propriétés des «multicouches» Co/Ag, sont présentés dans *l'article 6*, soumis pour la publication dans *Journal of Applied Physics*. Dans cet article nous reprenons l'analyse présentée dans *l'article 5* pour une série entière des échantillons correspondant à des épaisseurs de Co variant de 2 Å à 15 Å. La caractérisation structurale et magnétique des échantillons tel que déposés, montre que les multicouches forment trois groupes distincts en fonction de l'épaisseur de la couche de Co. Pour des épaisseurs de Co ( $t_{Co}$ ) inférieures à 4 Å, le comportement est spécifique aux systèmes granulaires, tandis que pour  $t_{Co}$  plus grand que 8 Å, les couches de Co sont continues et les moments sont alignés par un couplage ferromagnétique. Pour des épaisseurs  $t_{Co}$  intermédiaires, il y a une région de transition où les couches magnétiques sont discontinues.

A l'aide des modèles décrits dans *l'article 5* et des mesures de magnétorésistance et d'aimantation, nous montrons que l'irradiation produit une ségrégation progressive des atomes de Co pour les échantillons initialement granulaires, tandis que les multicouches avec des couches de Co continues, perdent leur structure périodique et évoluent vers une structure granulaire. Nous montrons alors que la taille des particules, ainsi que la largeur de la distribution de taille, augmentent suite à l'irradiation; ce qui explique la forte décroissance de la magnétorésistance.

#### Contribution de l'auteur (Articles 5 et 6)

Les articles 5 et 6 constituent le deuxième volet de mes travaux de recherche. J'ai donc joué un rôle très actif dans cette partie (*articles 5 et 6*), en déterminant d'abord toutes les étapes de ce travail. J'ai ensuite assuré la préparation des multicouches, fait les mesures de diffraction, de magnétorésistance et les mesures magnétiques ainsi que les programmes d'analyse et l'interprétation des résultats. Finalement, j'ai rédigé les articles qui ont été ensuite corrigés par mon directeur de thèse et révisés par les autres co-auteurs. Pour les expériences d'irradiation, j'ai bénéficié de l'aide des mes collaborateurs, plus particulièrement Simon Germain et François Schiettekatte.

## **CHAPITRE 7**

### **Irradiation des multicouches Co/Ag avec des ions Si<sup>+</sup> 1MeV: L'évolution de la structure et des propriétés magnétiques des films à faible épaisseur de la couche Co**

T. Veres, M. Cai, R.W. Cochrane and S. Roorda

Soumis pour publication à J. Appl. Phys.

Reçu le 25 juin 1999

Accepté le 28 septembre 1999

**Ion-beam modification of Co/Ag multilayers I:  
Structural and magnetic properties of films with very thin Co layers**

T. Veres, M. Cai, R.W. Cochrane and S. Roorda

*Département de physique et Groupe de recherche en physique et technologie des couches minces, Université de Montréal, C.P. 6128, Succ. Centre-ville, Montréal, Québec H3C 3J7, Canada*

***Abstract***

We describe the effects of 1MeV Si<sup>+</sup> ion-beam irradiation on a sputtered Co/Ag multilayer with layer thicknesses of 5 Å for Co and 25 Å for Ag, thicknesses for which the magnetoresistance is maximum in the as-deposited sample. X-ray diffraction, magnetization and magnetoresistance measurements all point to the conclusion that the Co is initially dispersed through the Ag and segregates completely upon ion-beam bombardment. Throughout the process both Ag and Co grains maintain a high degree of texture, essentially fcc (111). The magnetization behaviour evolves from superparamagnetic to mixed superparamagnetic-ferromagnetic with ion dose whereas the room-temperature magnetoresistance decreases from 12 % to 1.5 % upon irradiation up to  $5 \times 10^{16}$  Si<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>. Simple models taking into account the size distribution of the Co particles have been used to analyze these phenomena in order to quantify the particle size distribution.

## *I Introduction*

Over the past few years, discontinuous multilayers and heterogeneous mixtures of magnetic and non-magnetic metals have been extensively studied because of their unique magnetic and transport properties, in particular, the phenomenon of giant magnetoresistance (GMR) which has great potential for application in magnetic recording technology [1-5]. In these systems, the magnetic material is heterogeneously dispersed in the non-magnetic matrix, forming single-domain particles ranging in size from a few to many thousands of atoms. The magnetic properties of these materials are complex; ferromagnetic, superparamagnetic or spin-glass behaviour can be obtained depending on the sizes and separations of the magnetic particles. Specifically, the size distribution of the magnetic particles is one of the key parameters for the appearance of the GMR in these materials [6-8].

The Co/Ag system is an excellent example of such materials and has been widely studied. In equilibrium, Co and Ag are completely immiscible due, in part, to the fact that the surface free energy [9] of Co ( $2.71 \text{ J/m}^2$ ) is more than twice that of Ag ( $1.30 \text{ J/m}^2$ ) and, in part, to the large atomic size difference. Fcc Ag has a lattice parameter that is 15 % larger than that of fcc Co. As a result, the heat of formation between Co and Ag is strongly positive ( $\Delta H_m = +26 \text{ kJ/g-atom}$ ) so there is no tendency for alloying. In most of the research to date, Co/Ag mixtures have been prepared by co-deposition at elevated temperatures or at room temperature and subsequently annealed in order to control the magnetic-particle size. These materials exhibit a maximum GMR for mixtures around 30 atomic % Co [10].

Depending on the ion, its energy and dose, ion bombardment can promote local atomic diffusion and is thus capable of modifying the microstructure of alloys leading to improved crystalline structures for some systems or to complete amorphization for others. These effects are strongly dependent on the chemical interactions between the constituents, their miscibility and heats of formation [11-13]. Very few studies have been carried out on the effects produced by ion-beam irradiation in systems exhibiting giant magnetoresistance [14,15]. Recently, we studied the effect of low-temperature

ion-beam mixing on the GMR in Co/Cu multilayers [16]. These results demonstrate that 1 MeV Si<sup>+</sup> irradiation at 77 K provides a sensitive tool for structural modification on a nanometric scale for films much thinner than the ion range.

Because the size distribution of the magnetic particles plays such a central role in the magnetic behaviour of heterogeneous systems, it is important to follow the magnetic properties through various stages of magnetic-particle formation. With this objective, we have undertaken a systematic examination of the evolution of the microstructure and the magnetic behaviour of Co/Ag multilayer mixtures resulting from 1 MeV Si<sup>+</sup> ion bombardment. Samples were deposited with nominal Co-layer thicknesses ranging from 2 Å to 15 Å with a constant Ag layer thickness of 25 Å and studied as a function of ion dose. This article presents results on a single sample with a nominal Co thickness ( $t_{\text{Co}}$ ) of 5 Å for which the initial room-temperature GMR is a maximum ( $\Delta\rho/\rho = 11.9\%$ ). Emphasis is placed here on the analysis of the effects of ion irradiation on the size distribution of the Co particles and their influence on the structural, magnetic and magnetoresistance properties. Data for the entire series will be published elsewhere [17].

## ***II Experimental details***

Co/Ag multilayers were deposited onto SiO<sub>2</sub> layers thermally grown on Si (001) substrates using a modified single-source rf triode sputtering system with a base pressure of  $1 \times 10^{-7}$  torr [18]. Samples were sputtered under a pressure of 4 mtorr of argon gas (99.999%) and a rf power of 100 W resulting in sputtering rates of 0.9 Å/s for Co and 5.1 Å/s for Ag. During sputtering, the substrate temperature was maintained at about 40 °C. Layer thicknesses were computer-controlled during deposition and subsequently confirmed with a DEKTAK step profiler. Crystallographic structures were investigated by X-ray diffraction using a CuK $\alpha$  source. Magnetic moments were measured at room temperature using a vibrating sample magnetometer operating at 85 Hz with the external field applied in the sample plane. Magnetic measurements below room temperature were taken with the aid of a custom-modified Quantum Design MODEL 6000 Physical Property Measurement System. Resistance and

magnetoresistance were obtained by a standard 4-point method on a high-resolution ac bridge [19] with fields applied both in the sample plane and perpendicular to it.

Normal incidence ion-beam irradiation was performed in a vacuum of about  $1 \times 10^{-7}$  Torr with 1 MeV  $\text{Si}^+$  ions rastered over a  $10 \text{ mm}^2$  area. To avoid sample heating during irradiation, the ion beam current was kept below  $50 \text{ nA/cm}^2$  and the samples were placed in thermal contact with a copper block maintained at 77 K. At each stage, the irradiation was performed on a single  $\text{SiO}_2[\text{Ag}50\text{\AA}(\text{Co}5\text{\AA}/\text{Ag}25\text{\AA})_{70}]$  multilayer; the dose was systematically increased from an initial value of  $1 \times 10^{13} \text{ Si}^+ \text{ cm}^{-2}$  to  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+ \text{ cm}^{-2}$ . The ion energy (1 MeV) was selected such that its projected range was greater than the total film thickness ( $2000 \text{ \AA}$ ) in order to give a uniform damage profile throughout the multilayer. Only a very small amount ( $<0.1\%$ ) of the implanted ions were expected to remain within the magnetic films, the rest being transmitted or backscattered.

### ***III Results***

#### ***III.1 X-ray diffraction***

X-ray diffraction spectra of the sample after different ion doses are plotted in Fig. 1 along with the spectrum for the bare substrate which serves to demonstrate that the structure around  $2\theta = 33^\circ$  arises from the substrate. Since the region  $55^\circ < 2\theta < 75^\circ$  is dominated by substrate peaks, it has been omitted from the figure. Nevertheless, the substrate lines did prove to be useful for correcting small variations in the sample alignment ( $\Delta(2\theta) < 0.2^\circ$ ).

##### ***(i) Microstructure of the as-deposited sample:***

For the as-deposited sample, only two broad principal peaks are observed and indexed as the (111) and (222) reflections of fcc Ag, indicating that the Ag is highly textured with its close-packed plane parallel to the substrate. Despite the strong tendency for phase separation between Co and Ag, no evidence of either pure fcc or hcp Co is found in this sample. The first order Ag peak contains considerable structure: a central peak at  $39.0^\circ$ , a sharp shoulder at  $38.2^\circ$  and small subpeaks around  $36^\circ$  and  $42.5^\circ$ . The sharp shoulder is situated almost exactly at the (111) position for pure bulk Ag,



whereas the principal peak corresponds to a compression of some 2.4 % with respect to the bulk reflection. Given the 15% lattice mismatch with fcc Co, the position of this peak corresponds to that expected for a mixture of  $\text{Co}_5\text{Ag}_{25}$ , the composition of our sample. The two satellite lines can be analyzed as superlattice reflections around the principal peak at  $39.0^\circ$  arising from a periodic structure with a wavelength of 29 Å. Finally, the second order peak around  $82^\circ$  shows a weak narrow line at the (222) position of bulk Ag on top of a broad peak shifted to higher angles; no superlattice substructure is observed around this reflection.

These data lead to a relatively simple picture of the microstructure of the as-deposited sample. In the buffer layer and possibly the first few periods, Ag takes up a near equilibrium configuration. At 5 Å thickness, the Co grows on Ag in a discontinuous layer of small 3-D islands. The heavier Ag atoms disperse the small Co clusters throughout the Ag layer, resulting in a smaller average lattice parameter for the mixture. The Co dispersion is clearly non-uniform as indicated by the relatively broad first and second order peaks and the persistence of the 29 Å period. Nonetheless, the Co is finely enough dispersed so that the average lattice parameter of the mixture is shifted and no pure Co peak is observed. The entire sample maintains a high degree of fcc (111) texture.

*(ii) Evolution of the microstructure with ion dose:*

A significant structural evolution results from the ion-beam irradiation:

- (a) Both the first and second order (111) Ag peaks shift to lower angles and narrow considerably. The monotonic line narrowing and accompanying intensity increase of these peaks with ion dose indicates systematic growth of the Ag grains. Also, as presented in Fig. 2, the Ag lattice parameter, as calculated from the peak position, rises very close to the room temperature bulk value for pure Ag of 4.086 Å.
- (b) Two new lines appear, centered at  $2\theta = 43.4^\circ$  and  $95.5^\circ$ . A detailed analysis of these peaks leads to the conclusion that they cannot be assigned as fcc Ag (200) and (400) on the basis of a lattice parameter consistent with Fig. 2. They must

arise from a Co-dominated phase and be designated either (111) and (222) fcc lines with a cube edge of 3.60 Å or hcp (002) and (004) with a c-axis parameter of 4.16 Å. These values are some 2 % larger than those for bulk Co but are identical to the ones reported by Mitchell and Berkowitz [20] for co-deposited CoAg alloys with average compositions similar to that of our sample.

- (c) The superlattice structure is slightly enhanced up to a dose of  $8 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ ; subsequent irradiation suppresses it completely.
- (d) The high degree of texture for both the Ag and the Co remains almost complete up to the highest dose of  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ .

The assignment of the lines at  $2\theta = 43.4^\circ$  and  $95.5^\circ$  to Co clusters is also supported by the fact that the intensities of these subsidiary peaks increase in other samples with thicker Co layers [17]. Taken together with the evolution of the Ag peaks, it is clear that energetic ion irradiation has induced almost complete demixing of the Co atoms from the Ag matrix. Using Scherrer's formula [21], the average Co grain size in the growth direction has been estimated from the linewidths of these peak; the values are listed in Table 1. One calculates a grain size of 36 Å after irradiation with  $8 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  which increases to 67 Å after a dose of  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ . These dimensions are consistent with those found from the analysis of the magnetic data as described in the following sections.

### ***III. 2 DC Magnetization measurements***

Fig. 3 shows low field in-plane magnetic moment-field curves measured at 300 K at various stages of ion irradiation. Initially, the magnetic moment displays a slow single-valued rise toward saturation as a function of the applied magnetic field. A dose of  $8 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  induces a reduction in the initial field slope of the moment although the analysis described below indicates that the saturation value has increased. Upon further irradiation, the initial slope rises and the curve develops an hysteresis with a coercive field that increases with ion dose. The mixed hysteretic-anhysteretic behaviour persists up to the maximum dose of  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ .

At this time there exists no unified model which can describe the combined hysteretic and anhysteretic magnetization curves obtained for systems of weakly interacting small magnetic particles. Consequently, we adopt the empirical approach of Stearns and Cheng [22] and analyze each magnetization curve as the sum of two contributions: a ferromagnetic one,  $M_{ferro}(H)$ , due to larger ferromagnetic grains or interacting particles (which are easily saturated) and a superparamagnetic one,  $M_{SP}(H)$ , arising from small non-interacting unblocked particles (which at room temperature require very large fields for saturation):

$$M(H) = M_{ferro}(H) + M_{SP}(H). \quad (1)$$

The ferromagnetic contribution can be represented by an analytical function describing the hysteretic behaviour as a function of the coercive field  $H_c$  and the remanence  $M_r$  [22]:

$$M_{ferro}(H) = \frac{2M_{ferro}^o}{\pi} \tan^{-1} \left[ \frac{H \pm H_c}{H_c} \tan \left( \frac{\pi M_r}{2M_{ferro}^o} \right) \right]. \quad (2)$$

Here  $M_{ferro}^o$  is the saturation value for the magnetic moment of the ferromagnetic part. Unfortunately, there is no unique relation between the size of the magnetic particles and the magnetic parameters  $H_c$  and  $M_r$  so that this description for the ferromagnetic fraction of the sample can not be used to estimate the size distribution of the ferromagnetic particles.

For small Co particles, there is a critical size below which they form single magnetic domains. Below the blocking temperature,  $T_b$ , the magnetic moment of a single-domain particle is frozen along a local easy axis determined by shape and strain anisotropies. Above  $T_b$ , the thermal energy is larger than the anisotropy energy and the moment becomes free to fluctuate. In this superparamagnetic state, the total moment of an ensemble of weakly interacting particles of uniform size can be described by the Langevin function [23]. However, for a realistic representation of the behaviour of our samples we consider a distribution of particle sizes. In order to quantify this analysis, we follow the proposal of Chantrell [24] and use a log-normal distribution for the

volume of the magnetic particles. Assuming for simplicity that the particles are spherical ( $V = \pi D^3/6$ ), the size distribution can be expressed in terms of the diameter  $D$  as:

$$f(D) d(\ln D) = \frac{1}{\sqrt{2\pi\sigma}} \exp\left[-\frac{(\ln(D/D_m))^2}{2\sigma^2}\right] d(\ln D) \quad (3)$$

where  $D_m$  and  $\sigma$  are respectively the mean value and the variance of the size distribution. The superparamagnetic contribution to the total magnetic moment can then be expressed as:

$$M_{SP}(H) = M_{SP}^0 \int_{-\infty}^{\infty} L\left(\frac{\mu(D)H}{k_B T}\right) f(D) d(\ln D) \quad (4)$$

where  $L(x) = \coth(x) - 1/x$  is the Langevin function,  $\mu = M_s V = \pi M_s D^3/6$  the magnetic moment of a particle with volume  $V$  and saturation magnetization  $M_s = 1420$  gauss and  $M_{SP}^0$  is the saturation value for the superparamagnetic contribution to the total magnetic moment. In order to evaluate the relative size of the ferromagnetic and superparamagnetic contributions, the magnetization curves were fitted to the model described by Eq.(1)-(3). The superparamagnetic and ferromagnetic components of the magnetization curves so calculated are superimposed on the experimental data in Fig. 3.

The magnetic moment of the as-deposited sample shown in Fig. 3(a) rises gradually as a function of the applied field with no sign of saturation and very little hysteresis ( $H_c < 10$  Oe), a behavior that is characteristic of small superparamagnetic Co particles. As expected, the curve can be fitted without a ferromagnetic contribution, indicating that almost all the Co atoms are contained within small superparamagnetic particles. The deduced size distribution is described by a mean particle diameter of  $D_m = 39$  Å. This and subsequent values for the particle sizes are listed in Table 1.

Under low dose irradiation, the magnetization curves preserve an essentially super-paramagnetic behavior. The decrease in the low-field slope of the  $M$ - $H$  curve upon irradiation with  $8 \times 10^{14}$  Si<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup> is apparently due to a small decrease in the mean

particle size at low doses. At a dose of  $3 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  (Fig. 3(b)), the presence of a small hysteresis reveals a ferromagnetic component along with the dominant superparamagnetic one:  $M_{ferro}^o/M_{SP}^o = 0.07$ . At doses higher than  $8 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  (Fig. 3(c)-(d)), the magnetization curves show pronounced hysteresis arising from a ferromagnetic component comparable in size to the superparamagnetic one. At  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ ,  $M_{ferro}^o/M_{SP}^o = 0.45$ ; the average particle diameter deduced from the superparamagnetic component has grown to  $54 \text{ \AA}$  but evidently remains smaller than the critical size for single-domain behavior. Nevertheless, the hysteresis in the magnetization curves is signaling the presence of large blocked particles or, at least, a significant ferromagnetic coupling between the Co particles.

### III. 3 Coercive field

The in-plane coercive field, measured at room temperature as a function of the ion dose, is presented in Fig. 4. Its rapid rise for doses above  $10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  results from significant changes in the size, shape and inter-particle distances, and demonstrates a striking dependence of the coercive field on the sample morphology. It is known [25] that for large multi-domain particles, small coercivities are associated with the relatively low energies necessary to activate domain-wall motion. Below a critical size, which depends on the material and the shape, the particles become single-domain and only spin rotation processes can change the magnetization. Such spin rotation processes require larger energies than does domain wall motion resulting in an increase in the coercive field. As the size of the single-domain particle is reduced from the critical value, the coercive field should decrease since the smaller moments are easier to activate thermally. On this basis, Fig. 4 indicates that, even at the largest dose, the mean particle size has not attained the critical value. A similar behavior of the coercive field has been observed upon annealing in  $\text{Co}_x\text{Cu}_{1-x}$ ,  $\text{Fe}_x\text{Cu}_{1-x}$  alloys [26,27] and Co-Ag alloys deposited above room temperature. [28].

Another method for estimating single-domain particle sizes quantitatively is to determine the blocking temperature  $T_b$  for thermal activation of magnetization rotation. To this end, zero-field cooled (ZFC) and field-cooled (FC) magnetization measurements were performed after each irradiation. The sample was initially cooled to 5 K in zero

field (ZFC) or in the presence of the field (FC) whereupon the magnetization at fixed applied field was measured as a function of increasing temperature. Both series of measurements were performed at fields of 10, 20, 40 and 70 Oe. The field-dependent blocking temperature is indicated by a peak in the ZFC curve and by the onset of irreversibility between the FC and ZFC curves.

The ZFC and FC data for the sample after a dose of  $8 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  is shown in Fig. 5(a) and the field dependence of the blocking temperature  $T_b$  is given in Fig. 5(b). A linear decrease of  $T_b^{1/2}$  with  $H$  is found at this dose and also at other ion doses. It can be understood using the Chudnovsky [29] expression for the energy barrier in the presence of an applied field:

$$E_B = KV \cdot \left[ 1 - \left( \frac{\mu H}{2KV} \right) \right]^2. \quad (5)$$

Under the assumption that the energy barriers are determined only by the anisotropy energy  $KV$ , where  $K$  is the *total* anisotropy constant and  $V$  is the volume of the magnetic particles, the volume can be determined using the relation  $KV \approx 25k_B T_b(H=0)$  [30] for which the moment relaxation time becomes comparable to the measurement period. Here  $T_b(H=0)$  is the value of the blocking temperature extrapolated to zero field. Using  $K = 4.5 \times 10^5 \text{ J/m}^3$  for the anisotropy constant of fcc Co, the mean diameter of the magnetic particles (considered spherical) were estimated from the calculated volume and are listed in Table 1. The results of similar analyses after other ion doses are also given in Table 1. From these data, it is evident that the particle-size distribution broadens and shifts to larger values as a function of ion dose.

Finally, for doses larger than  $8 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ , the blocking temperatures become larger than room temperature and only a very small irreversibility is observed between FC and ZFC curves. It can be concluded that very large particles are formed under high-dose irradiation and/or large ferromagnetic regions are formed due to particle interactions. This conclusion is in agreement with the results obtained from the VSM measurements which show an important ferromagnetic contribution after irradiation greater than  $10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ .

### III.4 Transport properties

#### (i) *Magnetoresistance measurements:*

At each stage of the irradiation process, magnetoresistance measurements were taken for two orientations of the magnetic field, perpendicular and parallel to the film surface. Measurements for different in-plane directions of the applied field indicated that the magnetoresistance was always isotropic in the plane. Fig. 6 shows the magnetoresistance for the in-plane and perpendicular orientations for the sample (a) as deposited and (b) after irradiation with the largest dose of  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ . Ion bombardment has a dramatic effect on the magnitude of the magnetoresistance. In the light of the magnetization data discussed earlier, this effect is consistent with the growth of the magnetic particles. In addition, the magnetoresistance of the high dose sample saturates at a significantly lower field than the as-deposited one although there remains a significant difference between measurements in the two field orientations. It can be concluded that the initial shape anisotropy of the magnetic particles decreases strongly with ion bombardment but is not entirely eliminated even at the maximum ion dose.

The variations of the transport parameters  $\rho(0)$ ,  $\Delta\rho$  and  $\Delta\rho/\rho(0)$  with ion dose are detailed in Fig. 7(a)-(c); from them it is evident that a significant structural and magnetic evolution takes place on a scale comparable with the electron mean-free path ( $\sim 50 \text{ \AA}$ ). As shown in Fig. 7(a), the zero-field resistivity  $\rho(0)$  increases initially by 25% for doses up to  $8 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ , after which it passes through a maximum and decreases upon further irradiation to a value comparable to that of the as-deposited material. Since it has been demonstrated that the resistivity of the pure materials remains unaltered for similar ion treatment [17], these variations must be related to the changes in the morphology resulting from ion irradiation. It should also be noted that the zero-field resistivities of granular  $\text{Ag}_{1-x}\text{Co}_x$  [10] are smaller than those of the metastable alloys with the same overall composition. With these points in mind, the initial increase of the resistivity can be ascribed to a small amount of mixing near the Co/Ag interfaces. The decrease at larger doses then results from the formation and growth of magnetic Co particles. This picture is also supported by the decrease of the

low-field slope in the  $M$ - $H$  curves in Fig. 3(a) followed by the onset of the hysteretic behavior as discussed previously.

The strong decrease of the  $\Delta\rho$  upon irradiation, shown in Fig. 7(b), is also indicative of a change in the magnetic disorder on a scale of the order of the mean-free path. No significant changes are seen for doses lower than  $1 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ , whereupon a slow decrease is observed up to a dose of  $8 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ , followed by a more pronounced decrease at even higher doses. The combination of the variations in  $\rho$  and  $\Delta\rho$  gives rise to the dependence of the GMR ( $\Delta\rho/\rho$ ) shown in Fig. 7(c). The strong reduction of  $\Delta\rho$  with dose can be explained on the basis of the phenomenological model proposed by Berkowitz [6] and is also in agreement with the quantum theory proposed by Zhang and Levy [7]. Assuming that the spin-dependent ratio for scattering at grain surfaces is much larger than that within the magnetic grains, these models predict a decrease of  $\Delta\rho/\rho$  with increasing particle size.

(ii) *Analysis of the magnetoresistance:*

As Chien and co-workers [1,27] have emphasized, the key requirement for a significant GMR in granular magnetic alloys is the existence of nonaligned ferromagnetic single-domain particles separated by distances comparable with the electron mean free path. The magnitude of the GMR has been found to be very sensitive to the size and concentration of ferromagnetic particles and to the presence of magnetic interactions between them. Parallel alignment of the particle moments (arising either from an external field or from positive interactions between particles) on a scale larger than the electron mean-free path will strongly reduce the GMR. As a result, information about the particle size distribution can be obtained from magnetoresistance curves.

By symmetry [31,32] the magnetoresistance can be expressed as an even function of the reduced magnetization  $m = M(H)/M_s$ , where  $M(H)$  is the global magnetization and  $M_s$  is the saturation value [33]:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = \frac{\rho(H) - \rho_0}{\rho_0} = -\alpha \cdot F\left(\frac{M(H)}{M_s}\right). \quad (6)$$



where  $F(m)$  is an even function of  $m$  and the pre-factor  $\alpha$  sets the overall magnitude of the GMR. The simplest form for this function is a parabola ( $F(m) = m^2$ ) valid for non-interacting moments; deviations from this simple dependence can arise due to the existence of weak magnetic interactions between particles [32, 34]. In addition, a broad particle-size distribution can also lead to departures from the parabolic variation since small particles make a relatively larger contribution to the magnetoresistance than to the magnetization [7].

Certain authors [5] have described the GMR in superparamagnetic systems using a bimodal distribution for the magnetic particles, reasoning that the moments of large particles will be more easily aligned than smaller ones at a given temperature. The large particles are then responsible for the low field variation of the magnetoresistance and small ones for the slow approach to saturation at high fields. In our case, the magnetic behaviour has been analyzed on the basis of a log-normal distribution for the particles sizes (Eq. (4)), so the same approach has been employed to fit the magnetoresistance data. Specifically, Eq. (6) becomes:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} = -\alpha \cdot \left( \int_{-\infty}^{\infty} L\left(\frac{\mu(D)H}{k_B T}\right) f(D) d(\ln D) \right)^2. \quad (7)$$

where  $\rho(0)$  is the zero-field resistivity,  $\Delta\rho$  the resistivity change in an applied field  $H$ , and  $\alpha$  the amplitude of the GMR. As in Eq.(3),  $L(x)$  is the Langevin function and  $\mu = M_s V$  the magnetic moment of a particle with volume  $V$ .

The magnetoresistance curve following each irradiation was fitted to Eq.(7); the results of the fits for several doses are presented in Fig. 8. The as-deposited sample is characterized by a particle size distribution with  $D_m = 23 \text{ \AA}$  and  $\sigma = 0.98$ . The distribution broadens with dose and the mean-value  $D_m$  shifts up to  $55 \text{ \AA}$  ( $\sigma = 0.72$ ) at the maximum dose of  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ . The values for the mean-particle diameter obtained from the fits are also listed in Table 1. In Fig. 9 is plotted  $\Delta\rho$  as a function of the inverse of the mean-particle size determined from the fits. For doses larger than  $1.5 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ ,  $\Delta\rho \propto 1/D_m$  as expected from the theoretical models [6,7] on the basis of

independent superparamagnetic particles. However, for low doses  $\Delta\rho$  deviates towards larger values. This deviation might arise from an over-estimation of the size of anisotropic particles or from a possible magnetic coupling between Co particles across the Ag spacer, as Hylton *et al* [2] have reported for their NiFe/Ag multilayers.

#### ***IV Discussion***

Several mechanisms are generally invoked to describe ion-beam mixing/demixing in multilayers: collisional (ballistic) transport and irradiation-enhanced thermal diffusion [35,36]. Although the interplay between these mechanisms in different systems is not the subject of our paper, it must be noted that the two mechanisms operate in opposite directions in the case of elements with large positive enthalpy of mixing [37]. Specifically, ballistic effects, which are always present, act as a mixing mechanism in the initial stages of the collision. For enhanced thermal diffusion, the energy lost by the primary ion generates atomic relocations in a cascade of nuclear collisions. The energy of the recoil atom is thermalized by secondary collisions down to kinetic energies of a few eV, comparable with chemical potentials in solids. At these energies the random walk atomic relocations can be chemically biased [11]. As noted from X-ray diffraction studies in Fe/Ag multilayers and bilayers [12], chemically guided diffusion in systems with large positive heats of mixing provides a demixing mechanism during the thermal spike stage of the collision cascade.

For thin Co layer thicknesses, specifically 5 Å for our sample, the structural, magnetic and transport data are consistent with a limited demixing near the Co/Ag interfaces at low ion doses followed by a progressive Co segregation at higher doses. As indicated in Table 1, the mean particle size almost doubles as a result of the ion irradiation. We can interpret these results as follows: at low doses, when there is no spatial superposition of the cascades, only short-range relocation within the collision cascade is possible so that the initial ballistic mixing is partially recovered by chemically driven relocation within the cascades. The role of chemical driving forces is enhanced for high doses when atomic relocations over extended regions due to the

spatial superposition of cascades promote long-range atomic migration and phase segregation.

It is also useful to compare the different results listed in Table 1. For all doses, the distributions are quite broad ( $\sigma = 0.7 - 0.8$ ) indicating the presence of a wide range of particle sizes. Nevertheless, the values for the average particle size obtained through the analysis of the magnetization and transport data are surprisingly similar, given the fact that these properties are sensitive to different parts of the size distribution. In a broad size distribution, the major contribution to the low-field magnetization comes from large particles, which make a relatively low contribution to the magnetoresistance. Large magnetic fields will align the moments of the smallest particles along with those of the large particles leading to relatively much smaller changes in the magnetization than in the magnetoresistance. As shown by Badia *et al* [38], the broad size distribution breaks down the simple parabolic relation between  $\Delta\rho/\rho$  and  $M(H)/M_s$ , resulting in a field dependent pre-factor  $\alpha(H)$  in Eq.(7). At the same time, the particle radii obtained from the blocking temperature analysis are somewhat larger than those obtained from the other results. Since the blocking temperature depends on the energy barrier distribution whereas the superparamagnetism is coupled to the particle volume, these differences in particle sizes are to be expected for a broad size distribution [39].

Qualitatively, the ion-induced evolution of the morphology reported here parallels the effect of thermal annealing of Co-Ag codeposited alloys. Xiao *et al* [40] demonstrate that thermal annealing of a  $\text{Co}_{20}\text{Ag}_{80}$  alloy deposited at 77 K induces growth of Co particules and a monotonic decrease in the magnetoresistivity change with the inverse magnetic-particle size, exactly as presented in Fig. 9. Since the interfacial area per unit volume is inversely proportional to the particle diameter for granular systems, this relationship underscores the importance of interfacial scattering for the magnetoresistance. In this context, both ion-beam and thermal treatments are controlled by the thermodynamics of these mixtures as outlined in the Introduction. At the relatively high ion doses employed in the present experiments, the principal effect of high-energy ion bombardment on the evolution of the morphology of Co/Ag multilayers is thermal, albeit on a very local scale. This conclusion contrasts that found for low-

dose ion irradiation of Co/Cu multilayers of similar thicknesses [16] where ion bombardment initially mixes the layers and thermal annealing reversibly demixes them.

### *Acknowledgements*

The authors would like to thank Dominic Ryan of McGill University for access to his low temperature magnetometer and to him and Li Cheng for assistance with the measurements. We also acknowledge Mokhtar Rouabhi for helpful discussions as well as S Germain and F. Schiettekatte for their assistance with the ion-beam experiments, G. Rinfret and R. Rinfret for the maintenance of the sputtering and magnetoresistance equipment, and P. Bérichon and R. Gosselin for help with the operation of the tandem accelerator. This research has been supported by the NSERC of Canada and le Fonds FCAR du Quebec.

### **Table I.**

The average diameter of Co particles obtained from fits to the magnetization at room temperature,  $M(H)$ , the zero-field cooled magnetization measurements, ZFC, the magnetoresistance,  $MR(H)$ , and from the application of the Scherrer formula to the X-ray diffraction peaks.

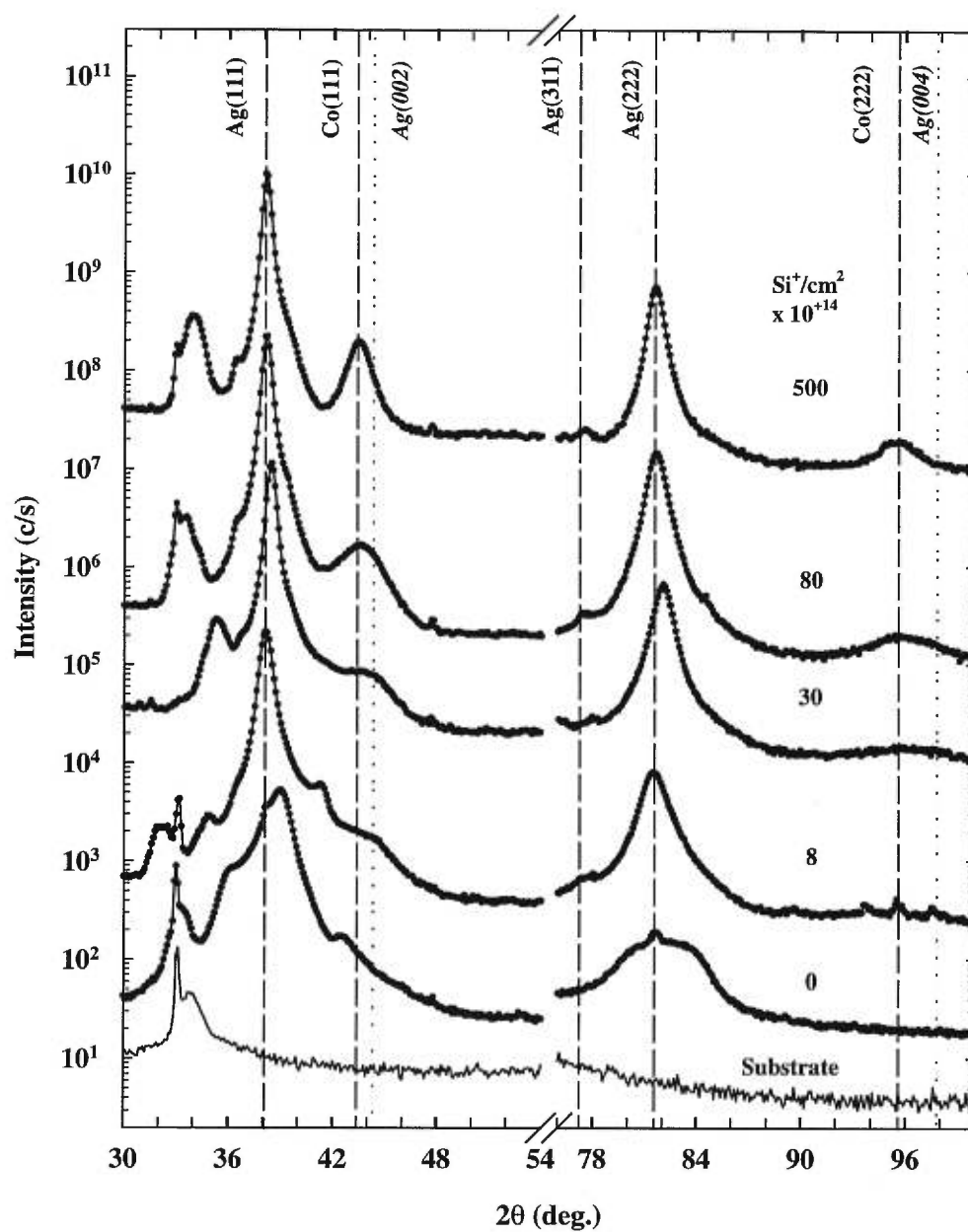
Dose ( $10^{14}\text{Si}^+/\text{cm}^2$ )	$D_m$ (Å) M(H)	$D_m$ (Å) ZFC	$D_m$ (Å) MR(H)	$\xi$ (Å) (Scherrer)
0	$39 \pm 0.6$	$44 \pm 2$	$23 \pm 0.5$	-
8.0	$34 \pm 0.3$	$42 \pm 2$	$26 \pm 0.3$	-
30	$36 \pm 0.6$	-	$30 \pm 0.8$	$36 \pm 5$
80	$44 \pm 0.3$	$66 \pm 4$	$37 \pm 0.4$	$53 \pm 4$
100	$47 \pm 0.8$	-	$45 \pm 0.4$	-
500	$54 \pm 0.7$	-	$52 \pm 0.9$	$67 \pm 4$

**References**

- [1] C.L. Chien, J.Q. Xiao and J.S. Jiang, *J. Appl. Phys.* **73**, 5304 (1993).
- [2] T.L. Hylton, K.R. Coffey, M.A. Parker and J.K. Howard, *Sci.* **261** 1021 (1993).
- [3] O. Redon, J. Pierre, B. Rodmacq, B. Mevel and B. Dieny, *J. Magn. Magn. Mater.* **149**, 398 (1995); B. Dieny, S.R. Teixeira, B. Rodmacq, C. Cowache, S. Auffret, O. Redon and J. Pierre, *J. Magn. Magn. Mater.* **130**, 197 (1994).
- [4] W.H. Flores, S.R. Teixeira, J. Geshev, J.B.M. da Cunha, P.J. Schilling, A. Traverse and M.C. Martins Alves, *J. Magn. Magn. Mater.* **188**, 17 (1998).
- [5] T. Luciński and F. Stobiecki, *Phys. Stat. Sol. (a)* **163**, 195 (1997).
- [6] A. Berkowitz, J.R. Mitchell, M.J. Carey, A.P. Young, S. Zhang, F.E. Spada, F.T. Parker, A. Hutten and G. Thomas, *Phys Rev. Lett.* **68**, 3745 (1992).
- [7] S. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 1855 (1992); S. Zhang and P. Levy, *J. Appl. Phys.* **73**, 5335 (1993).
- [8] T.A. Rabedeau, M.F. Toney, R.F. Marks, S.S.P. Parkin, R.F.C. Farow and G.R. Harp, *Phys. Rev. B* **48**, 16810 (1993).
- [9] L.Z. Mezey and J. Giber, *Jpn. J. Appl. Phys.* **21**, 1569 (1982).
- [10] John Q. Xiao, J.S. Jiang and C.L. Chien, *IEEE Trans. Magn.* **29**, 2688 (1993).
- [11] B.M. Paine and R.S. Averbach, *Nucl. Instrum. Methods B* **7/8**, 666 (1985).
- [12] A.C. Sosa, P. Schaaf, W. Bolse, K.P. Lieb, M. Gimbel, U. Geyer and C. Tosello, *Phys. Rev. B* **53**, 14795 (1996).
- [13] J. Pacaud, G. Gladyszewski, C. Jaouen, A Naudon, Ph. Goudeau and J. Grilhé, *J. Appl. Phys.* **73**, 2786 (1993).
- [14] H.U. Krebs, Y. Luo, M. Störmer, A. Crespo, P. Schaaf and W. Bolse; *Appl. Phys. A* **61**, 159 (1995).

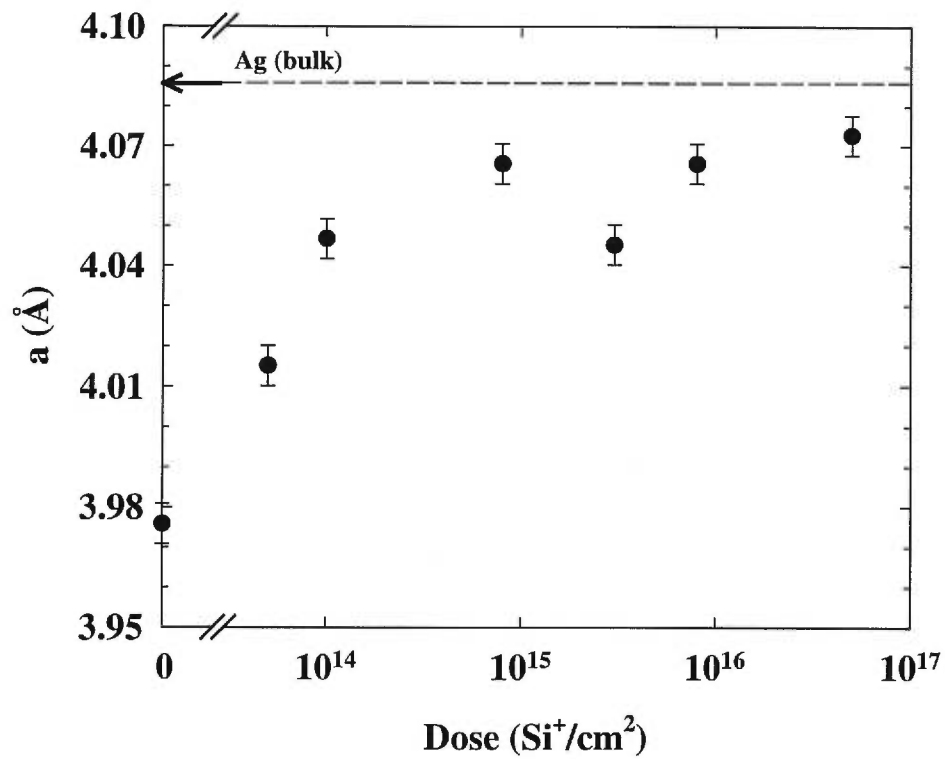
- [15] V. Kornievski, K.V. Rao, D.M. Kelly, I.K. Shuller, K.K. Larsen and J. Bøttiger, J. Magn. Mater. **140-144**, 549 (1995); D. M. Kelly, I. K. Shuller, V. Kornievski, K.V. Rao, K.K. Larsen, J. Bøttiger, E.M. Gyorgy and R.B. van Dover, Phys. Rev. B **50** 3481 (1994).
- [16] M. Cai, T. Veres, S. Roorda, R.W. Cochrane, R. Abdouche and M. Sutton, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 504, 197 (1998).
- [17] T. Veres, M. Cai, R.W. Cochrane, S. Roorda, M. Rouabhi and S. Germain, (Submitted to J. Appl. Phys.).
- [18] Y. Huai, PhD. Thesis, Université de Montréal, 1993.
- [19] R.W. Cochrane, B.J. Kastner and W.B. Muir, J. Phys. **E15**, 425 (1982).
- [20] A. Berkowitz, J.R. Mitchell, M.J. Carey, A.P. Young, D. Rao, A. Starr, S. Zhang, F.E. Spada, F.T. Parker, A. Hutten and G. Thomas, J. Appl. Phys. **73**, 5320 (1993).
- [21] B.E. Warren, *X-Ray Diffraction*, Addison-Wesley, (1969) p. 253.
- [22] M.B. Stearns and Y. Cheng, J. Appl. Phys. **75**, 6894 (1994).
- [23] C.L. Chien, J. Appl. Phys. **69**, 5267 (1991).
- [24] R.W. Chantrell, J. Popplewell and S.W. Charles, IEEE Trans. Magn. **14**, 975 (1978).
- [25] F.E. Luborsky, J. Appl. Phys. **32**, 171S (1961).
- [26] J.R. Childress and C.L. Chien, J. Appl. Phys. **70**, (10) 5887 (1991).
- [27] J.R. Childress and C.L. Chien, Appl. Phys. Lett. **56**, 95 (1991).
- [28] S.H. Liou, S. Malhorta, Z.S. Shan, D.J. Sellmyer, S. Nafis, J.A. Woollam, C.P. Reed, R.J. DeAngelis and G. M. Chow, J. Appl. Phys. **70**, 5882 (1991).
- [29] E. Chudnovsky, J. Appl. Phys. **73**, 6697 (1993).
- [30] B.D. Cullity, *Introduction to Magnetic Materials*, Addison-Wesley, (1972) p. 410.
- [31] J.I. Gitteleman, Y. Goldstein and S. Bosowski, Phys. Rev. B **5**, 360 (1972).

- [32] M.R. Parker, J.A. Barnard, D. Seale and A. Wakins, *J. Appl. Phys.* **73**, 5512 (1993).
- [33] John Q. Xiao, J.S. Jiang and C.L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3749 (1992).
- [34] P. Allia, M. Knobel, P. Tiberto and F. Vinai, *Phys. Rev. B* **52**, 15398 (1995).
- [35] W.L. Johnson, Y.T. Cheng, M. Van Rossum and M.-A. Nicolet, *Nucl. Instrum. Methods B* **7/8**, 657 (1985).
- [36] P. Sigmund and A. Gras-Marti, *Nucl. Instrum. Methods* **182-183**, 25 (1981).
- [37] D. Marton, J. Fine and G. P. Chambers, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2697 (1988).
- [38] F. Badia, X. Batlle, A. Labarta, M.L. Watson, A.B. Johnston, and J. N. Chapman, *J. Appl. Phys.* **82**, 677 (1997).
- [39] E Vincent, Y. Yuan, J. Hammann, H. Hurdequint and F. Guevara, *J. Magn. Magn. Mater* **161**, 209 (1996).
- [40] John Q. Xiao, J.S. Jiang and C.L. Chien, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 286*, 197 (1993).

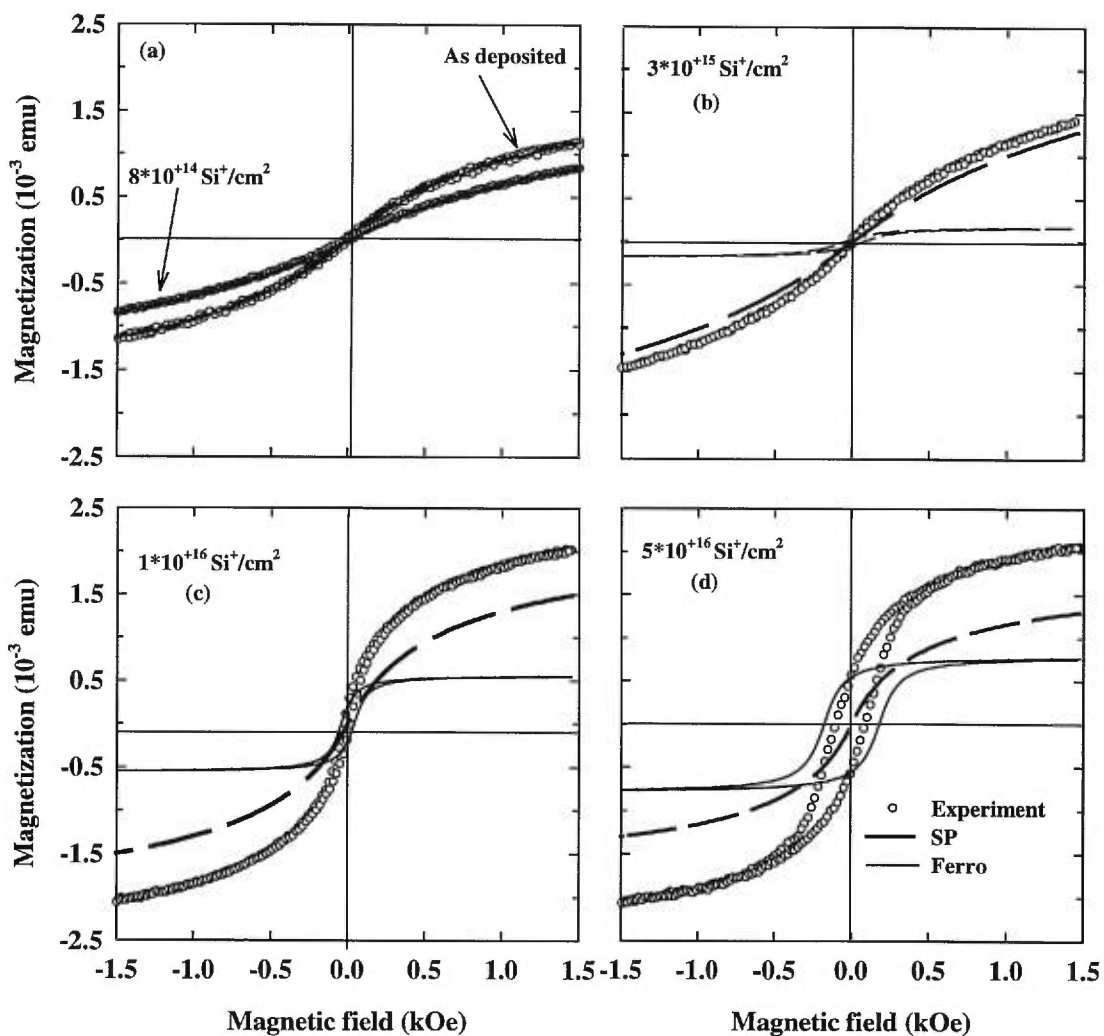


**Figure 1:** Selected high-angle X-ray diffraction patterns measured with  $\text{CuK}\alpha$  radiation on a  $[50\text{\AA}(\text{Co}5\text{\AA}/\text{Ag}25\text{\AA})_{70}]$  multilayer irradiated with 1 MeV  $\text{Si}^+$  ions. The solid-line spectrum originates from the substrate. For clarity, successive diffraction patterns have been shifted vertically.

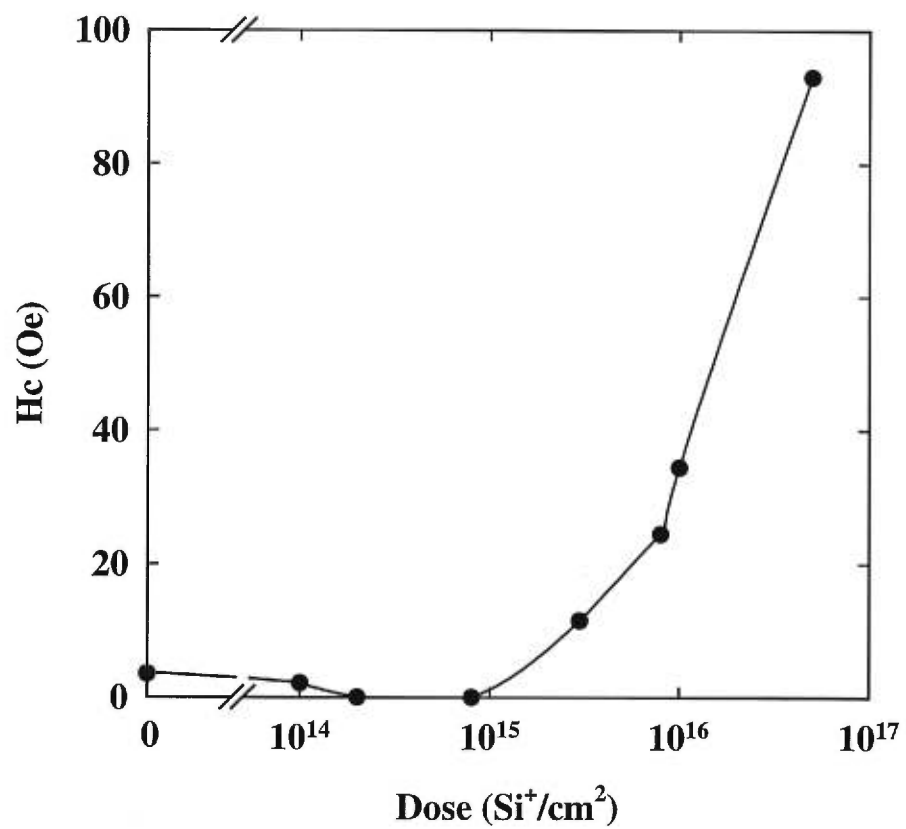




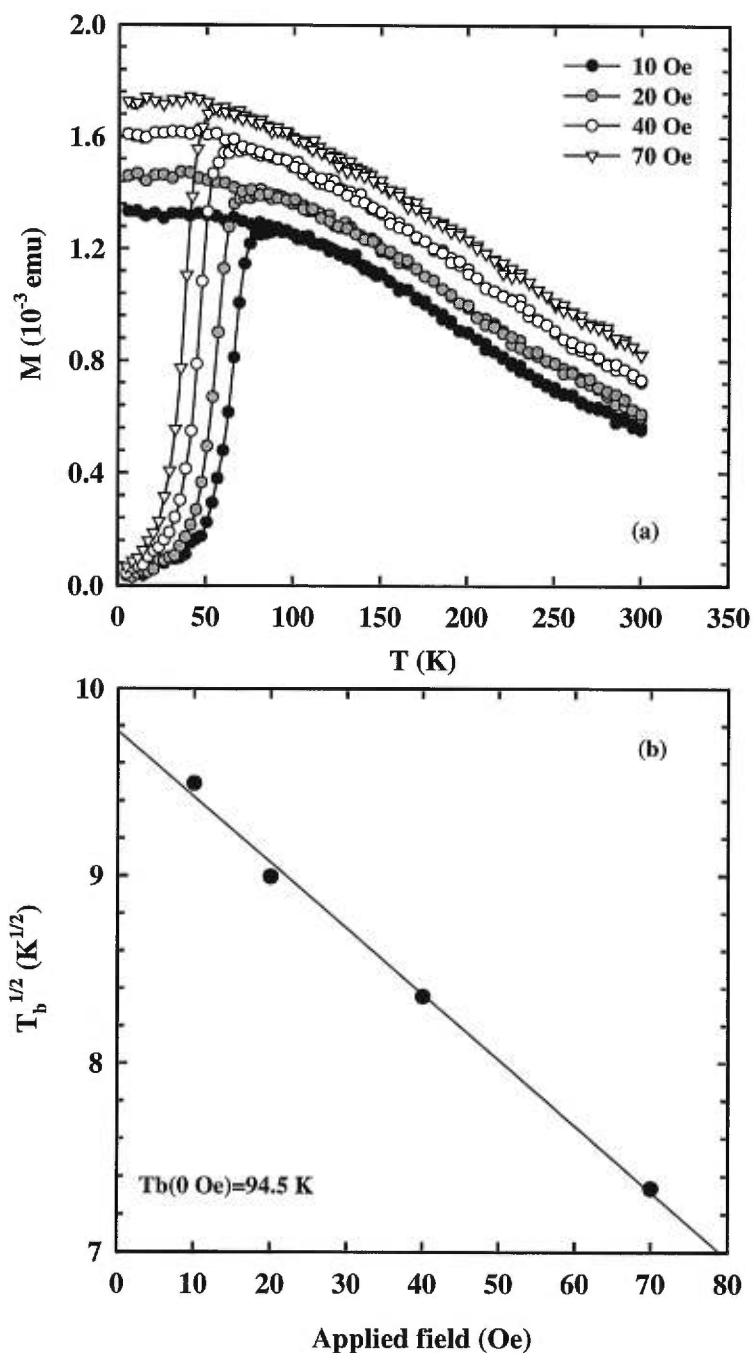
**Figure 2:** The variation of the lattice parameter of the Ag grains of the  $[50\text{\AA}(\text{Co}5\text{\AA}/\text{Ag}25\text{\AA})_{70}]$  multilayer as a function of the irradiation dose.



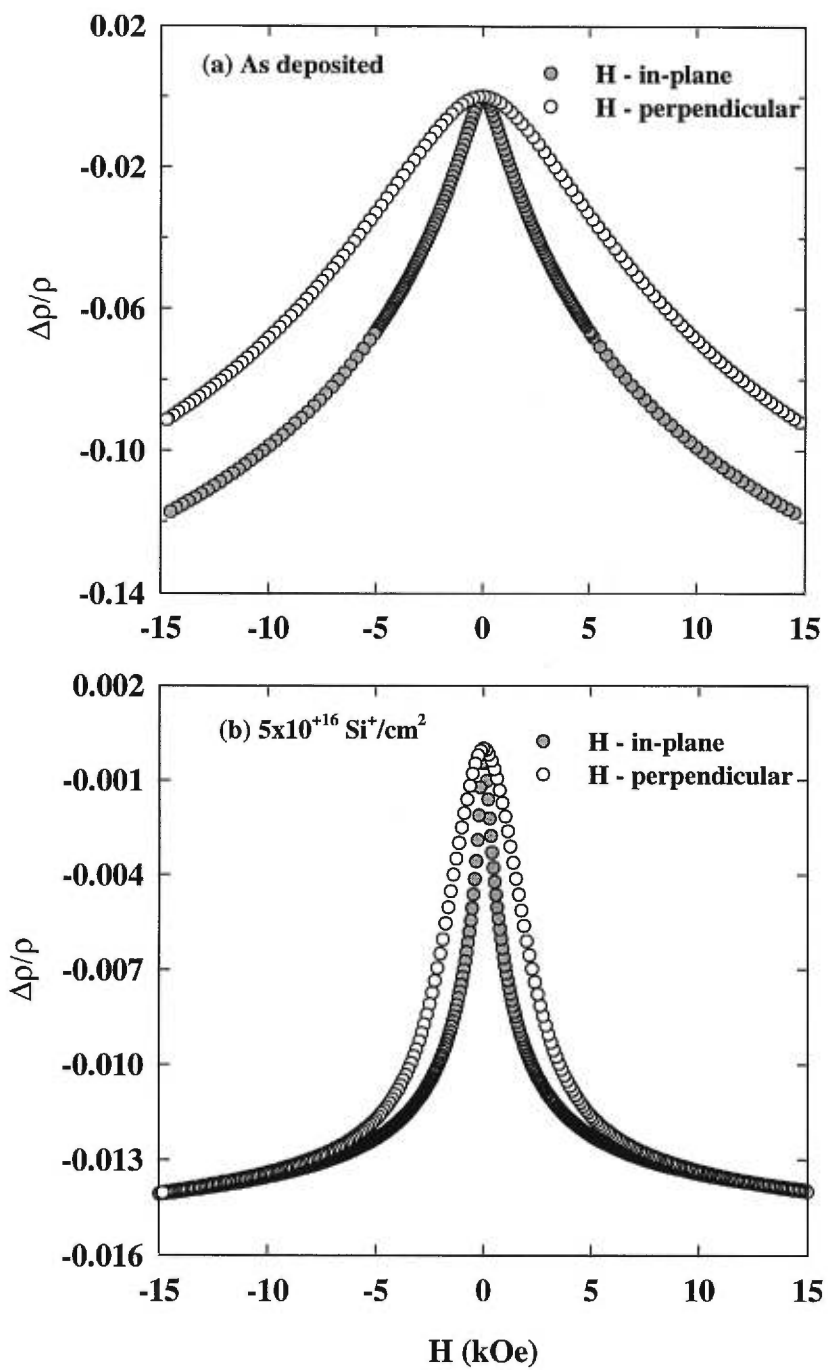
**Figure 3:** Magnetization curves of the sample measured at room temperature after different irradiation doses. The measured data are represented by the open circles, the calculated superparamagnetic contribution by the dashed line and the calculated ferromagnetic contribution by the solid line.



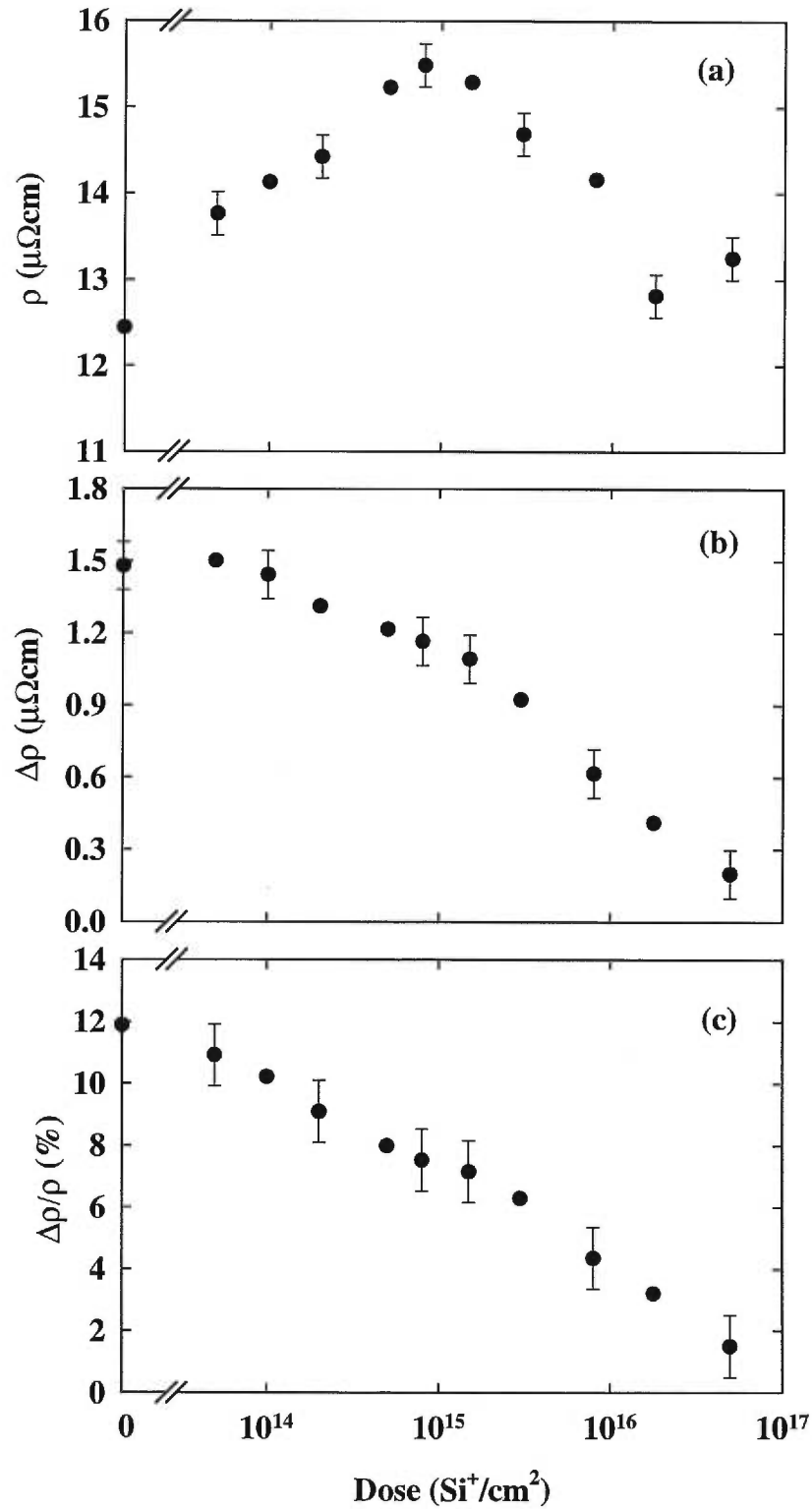
**Figure 4:** Variation with ion dose of the coercive field for the  $[50\text{\AA}(\text{Co}5\text{\AA}/\text{Ag}25\text{\AA})_{70}]$  multilayer



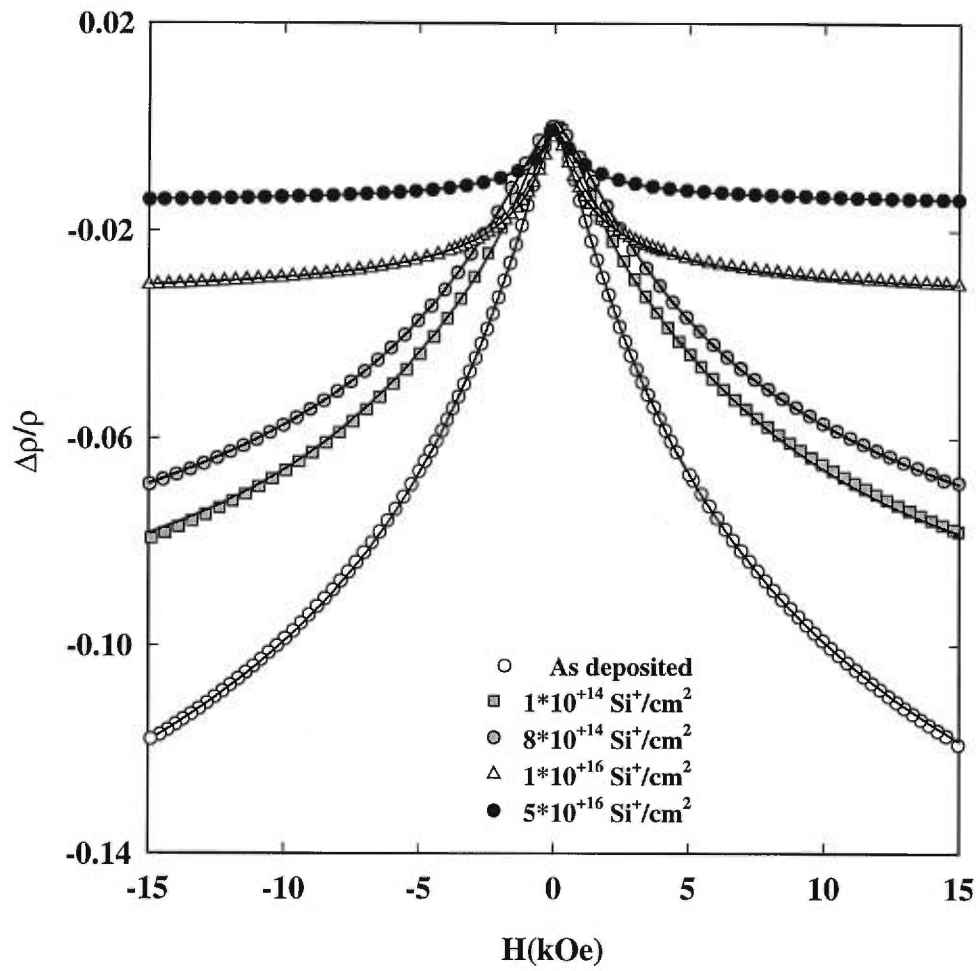
**Figure 5:** (a) The temperature dependence of the magnetization for the irradiated ( $8 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ ) sample, measured under conditions of zero-field-cooling (ZFC) and field-cooling (FC) in several magnetic fields. (b) The variation of square root of the blocking temperatures ( $T_b^{1/2}$ ) deduced from Fig. 5(a) as a function of the applied magnetic field. The line is a linear fit to the data.



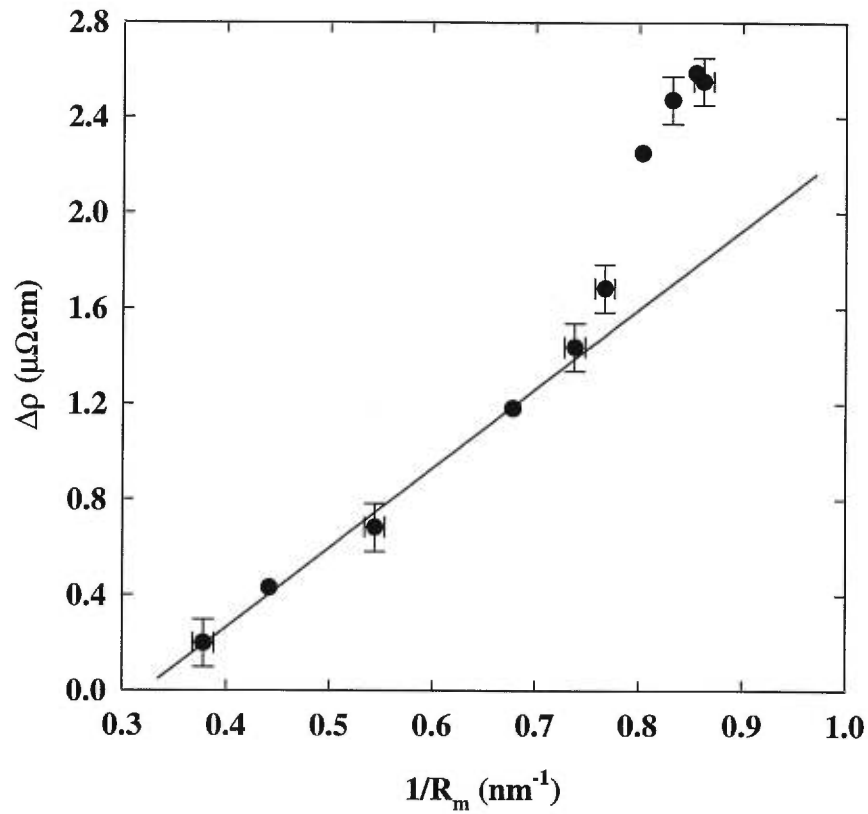
**Figure 6:** Magnetoresistance  $\Delta\rho/\rho$  at 300 K of the  $[50\text{\AA}(\text{Co}5\text{\AA}/\text{Ag}25\text{\AA})_{70}]$  multilayer as a function of the magnetic field applied in the sample plane (gray circles) and perpendicular to the plane (open circles): (a) as-deposited and (b) after irradiation with  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ .



**Figure 7:** The dependence of (a) the resistivity  $\rho$ , (b) its field change  $\Delta\rho$ , and (c) the magneto-resistance  $\Delta\rho/\rho$  of the sample at 300 K as a function of the ion dose.



**Figure 8:** Magnetoresistance for the sample at various ion doses. The solid lines are fits to the data based on Eq. (7).



**Figure 9:** The maximum change of the resistivity ( $\Delta\rho = \alpha$ ) of the sample, obtained from the fits to the room temperature magnetoresistance, as a function of the inverse mean particle diameter. The solid line is a linear fit to the data for doses larger than  $1.5 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ .



## **CHAPITRE 8**

### **Irradiation des multicouches Co/Ag avec des ions Si<sup>+</sup> 1MeV: Etude de l'évolution des propriétés structurales et magnétiques avec l'épaisseur de la couche de Co.**

T. Veres, M. Cai, S. Germain, M. Rouabhi, F.Schiettekatte, S. Roorda,  
and R.W. Cochrane

Soumis pour publication à J. Appl. Phys.

Reçu le 15 août 1999

## **Ion-beam modification of Co/Ag multilayers II: Variation of structural and magnetic properties with Co layer thickness**

T. Veres, M. Cai, S. Germain, M. Rouabhi, F.Schiettekatte, S. Roorda, and R.W. Cochrane

*Département de physique et Groupe de recherche en physique et technologie des couches minces, Université de Montréal, C.P. 6128, Succ. Centre-ville, Montréal, Québec, H3C 3J7, Canada*

### ***Abstract***

The structural, magnetic and transport properties of rf sputtered Co/Ag multilayers with Co-layers thicknesses ranging from 1 Å to 14 Å have been studied by a combination of X-ray diffraction, magnetic and transport measurements. The magnetoresistance at room-temperature has a maximum value of more than 12% for a Co-layer thickness around 5 Å. Magnetic measurements demonstrate that samples near this Co-layer thickness are in the transition region from superparamagnetic to ferromagnetic behaviour. X-ray analysis indicates that, during deposition, a significant quantity of Co is dispersed throughout a highly-textured Ag matrix. Upon irradiation with 1 MeV Si<sup>+</sup> ions up to a dose of  $5 \times 10^{16}$  Si<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>, an initial demixing of the Co is followed by segregation into grains with the same texture as the Ag. The resulting changes in the magnetization and magnetoresistance are characterized on the basis of a log-normal distribution of the volume of the magnetic particles. As the particle sizes increase, there results a systematic evolution towards ferromagnetic behaviour for films initially in the superparamagnetic and transition regions.

## ***1. Introduction***

The relation between giant magnetoresistance (GMR) and spin-dependent scattering at interfaces and in the bulk of magnetic layers is well established in the case of magnetic/nonmagnetic multilayers<sup>1</sup>. However, analysis is more complex in the case of discontinuous multilayers and heterogeneous (alloys/granular) samples in which a small amount of magnetic material (Co, Fe, NiFe, CoFe) is dispersed in a metallic matrix (Cu, Ag). Ferromagnetic, superparamagnetic and spin-glass behaviour have been obtained in such materials depending on the distribution in particle sizes, shapes and separations<sup>2,3,4,5</sup>.

Existing models describing the GMR and its temperature dependence in heterogeneous materials are based on the assumption of a predominant spin-dependent scattering at the magnetic/nonmagnetic interface. Within this approach, the amplitude of the GMR is controlled by the magnetic-particle surface to volume ratio leading to an inverse proportionality between particle size and GMR<sup>3,6,7</sup>. However, due to the very complex structure of these materials, not all factors affecting the GMR can be readily identified, making the search for good GMR materials a somewhat empirical process.

In the search for conditions appropriate for a significant GMR, various thermal treatments, such as variations in deposition temperatures and post-preparation annealing, have been tried in order to optimize the size, the shape and concentration of the magnetic particles. A successful procedure to control the shape and the concentration of magnetic particles has been proposed by Hylton et al<sup>8</sup> in which discontinuous multilayers were made by annealing sputtered Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/Ag multilayers under appropriate conditions. The penetration of the nonmagnetic material (Ag) at the grain boundaries of the NiFe layer results in the formation of flat magnetic particles that promote a multidomain state within the magnetic layer. Discontinuities induced in the magnetic layer are able to promote local antiparallel alignment of the grain moments in adjacent layers due to interlayer interactions.

Several parameters make the Co/Ag system a particularly valuable candidate for studying the effects of a granular structure on the magnetic properties. This system

exhibits extremely small equilibrium solid solubility, essentially due to the fact the surface free energy of Co ( $2.71 \text{ J/m}^2$ ) is more than twice that of the Ag ( $1.30 \text{ J/m}^2$ ) resulting in a large positive heat of formation between Co and Ag ( $\Delta H_m = +26 \text{ kJ/g atom}$ ). Coupled with the important lattice mismatch (15%) between fcc Ag and Co, these characteristics ensure a high degree of immiscibility for equilibrium mixtures of these elements. Thermal control of the microstructure of Co/Ag mixtures and its effect on GMR and magnetic properties have been investigated by many authors<sup>9,10,11,12,13</sup>. In general, complex magnetic behaviour is found due to the presence of small superparamagnetic and larger ferromagnetic particles and to non-vanishing inter-particle interactions.

Depending on the ion mass, its energy and the dosage, ion-beam irradiation can enhance atomic diffusion, modify crystal structures and alter grain sizes. Moreover, such effects will be strongly dependent on the chemical miscibility between the components so that very different behaviours can be expected depending on the sign of the heat formation<sup>14,15,16</sup>. Nevertheless, very few studies on the effects produced by ion-beam irradiation in systems exhibiting giant magnetoresistance have been reported<sup>17,18</sup>. In an earlier study, we demonstrated a strong reversible decrease of the GMR upon low temperature ion-beam bombardment in Co/Cu multilayers<sup>19</sup>; this decrease could be correlated with the suppression of the interlayer antiferromagnetic coupling under irradiation.

We have recently embarked on a systematic examination of the structural and magnetic modifications from high-energy ion bombardment of sputter-deposited Co/Ag multilayers with Co thicknesses ranging from 2 to 15 Å. In a previous paper, reference [21], hereafter referred to as paper I, we detailed the effects of 1 MeV  $\text{Si}^+$  ion irradiation on the multilayer with a Co-layer thickness of 5 Å, for which the magnetoresistance of the as-deposited multilayer is maximum. For this multilayer, it was found that the Co is initially largely dispersed throughout the Ag layers which have a high degree of fcc (111) texture. Upon bombardment, the Co segregates into strongly textured grains, probably also fcc (111) although the X-ray spectra can not discriminate against hcp (002). The magnetic state evolves from superparamagnetic to mixed

superparamagnetic-ferromagnetic with a concomitant decrease in the magnetoresistance.

The present article is intended to complement paper I by detailing the ion-beam effects on the structure and magnetic properties of multilayers prepared with initial Co layer thicknesses from 2 Å to 15 Å. Within this range of thicknesses, the as-deposited Co layers pass from being discontinuous to forming continuous layers, the latter giving rise to superlattice X-ray peaks. The present study focuses on the radiation-induced effects on the size distribution for the Co particles and their influence on the magnetization and magnetoresistance of the samples. In particular, the GMR ratio was found to decrease substantially for the samples close to the transition between the superparamagnetic and ferromagnetic regimes. This degradation is attributed to the decrease in spin-dependent interfacial scattering due to the ion beam induced phase segregation of the Co particles.

The remainder of this paper is divided into three principal sections. In the first, we describe the details of the sample preparation, the magnetic measurements and the ion-beam irradiation. In the second, the structure, transport and magnetic properties of the as-deposited samples are characterized. In the third section, we present the effects of ion-beam irradiation on these same properties as well as an analysis of these effects based on a log-normal size distribution for the Co particles.

## 2. *Experimental details*

Preparation and measurement techniques have been described in I. Co/Ag multilayers of the form  $\text{Ag}(50\text{Å})/[\text{Co}(t_{\text{Co}})/\text{Ag}(25\text{Å})]_{70}$  with  $t_{\text{Co}}$  ranging from 2 to 15 Å have been prepared on a  $\text{SiO}_2$  layer thermally grown on Si (100) substrates by rf triode sputtering. During sputtering, the substrate temperature was maintained at about 40 °C, the sputtering pressure at 4 mTorr of argon (99.999%) and the rf power at 100 W; the resultant sputtering rates were 0.9 Å/s for Co and 5.1 Å/s for Ag.

The crystallographic structure of the samples was investigated using an X-ray diffractometer with a  $\text{CuK}\alpha$  source. Magnetization curves at room temperature were measured using a vibrating sample magnetometer operating at 85 Hz with a resolution of better than  $10^{-5}$  emu. A number of zero-field cooled (ZFC) and field cooled (FC)

magnetization and AC susceptibility runs were made using a modified Quantum Design Model 6000 Physical Property Measurement System. Transport properties (resistivity and anisotropic magnetoresistivity) were obtained by the standard 4-point method. Magnetization measurements were taken with the external field applied in the sample plane; magnetoresistance measurements were made for magnetic fields applied in plane and perpendicular to the plane.

1 MeV Si<sup>+</sup> ions from a HV Tandetron accelerator were rastered over a 10 mm<sup>2</sup> area at normal incidence in a vacuum of 1 x 10<sup>-7</sup> Torr. The ion energy was selected such that its projected range was much greater than the total film thickness (2000 Å) so that a uniform damage profile throughout the multilayer is expected. During irradiation, samples were maintained in thermal contact with a copper block at the liquid-nitrogen temperature and the beam current was kept below 50 nA/cm<sup>2</sup>. Each multilayer with configuration Si/SiO<sub>2</sub>/Ag(50Å)/[Co(t<sub>Co</sub>)/Ag(25Å)] (x = 2 Å – 15 Å) was irradiated with ion doses ranging from an initial value of 1 x 10<sup>13</sup> cm<sup>-2</sup> to a final value of 5 x 10<sup>16</sup> cm<sup>-2</sup>.

### 3. *As-deposited samples*

#### 3.1. *X-ray diffraction*

X-ray diffraction spectra for the as-deposited films with t<sub>Co</sub> = 2.8 Å, 5.0 Å, and 14 Å are shown in Fig. 1. These data have been chosen because they demonstrate the evolution of the Co layer structure from dispersed to continuous. Several features should be noted. Firstly, only single phase fcc peaks attributable to (111), (222) planes of Ag and a series of peaks around 2θ = 33° arising from the substrate have been observed. Clearly, the polycrystalline grains of all the samples are strongly textured. Moreover, there is no crystallographic evidence of either fcc or hcp Co in these samples. This conclusion is applicable even for the sample with t<sub>Co</sub> = 14 Å since the very broad peak observed around 2θ = 95° cannot be simply ascribed to either Ag or Co. In addition, the superlattice peaks observed around the Ag (111) reflection for the film with t<sub>Co</sub> = 14 Å as well as the intensity modulation around the Ag (222) peak show that the structural coherence length normal to the film plane is larger than the multilayer period. At a Co-layer thickness of 2.8 Å, the superlattice satellites have completely disappeared

indicating a loss of coherence at the interfaces and a degradation of the film layering. At intermediate Co-layer thicknesses (5.0 Å), the superlattice peaks are just barely discernable (see I).

The fcc Ag (111) peak is generally shifted with respect to the equilibrium bulk position which can be interpreted (I) as arising from the dispersion of the Co into the Ag layer. This shift depends on the Co layer thickness. For the sample with  $t_{\text{Co}} = 2.8$  Å, the lattice is contracted by 1.7 %. The intensities of the Ag (111) and Ag (222) peaks are larger than those for the other samples, suggesting that for submonolayer thicknesses, the Co atoms form only small clusters or are imbedded into the Ag matrix formed by larger (111) textured grains. For  $t_{\text{Co}} = 5.0$  Å, it was concluded in I that the double-peaked Ag (111) reflection ( $2\theta = 38.1^\circ$ ,  $2\theta = 39.0^\circ$ ) was a result of a relatively undeformed Ag buffer layer with a near equilibrium lattice parameter and the remaining multilayer with a significant quantity of the Co dispersed throughout the Ag layer resulting an average contraction of 2.4 %. Finally, for the thickest Co layer (14 Å), the most intense peak is shifted toward lower angles ( $2\theta = 37.2^\circ$ ) with respect to the Ag equilibrium position arising from the convolution of the superlattice and atomic periodicities.

### 3.2. Magnetization

Low-field magnetization curves at room temperature are presented in Fig. 2. For samples with  $t_{\text{Co}} > 7.4$  Å (Fig. 2(a)), the curves demonstrate a ferromagnetic character with small coercivities ( $H_c < 10$  Oe) and low saturation fields. These samples also show a small in-plane anisotropy. Very different behaviour is observed for samples with Co thicknesses below 5.5 Å: the magnetization (Fig. 2(b)) increases linearly through zero at very low applied fields, exhibits no hysteresis and shows little sign of saturation, a superparamagnetic behaviour. For intermediate Co-layer thicknesses, the curves display both superparamagnetic and ferromagnetic features testifying to the presence of smaller superparamagnetic Co particles and larger ferromagnetic ones in the as-deposited sample.

As in ref. I, we analyze the magnetization curves as the sum of two

contributions: a superparamagnetic contribution, which requires very large fields for saturation due to the presence of non-interacting small unblocked particles, and a ferromagnetic one arising from larger grains or interacting particles, which is easy to saturate and shows hysteresis. The analysis makes use of the empirical form for the ferromagnetic term employed by Stearns and Cheng<sup>20</sup> cited in I. This function has been used to fit experimental M-H data using the coercivity  $H_c$ , the remanence  $M_r$  and the saturation magnetization  $M_{\text{Ferro}}^s$  as parameters<sup>21</sup>.

To calculate the superparamagnetic contribution, we assume single domain particles above their characteristic blocking temperatures for which the total moment can be described by the Langevin function<sup>22</sup>,  $L(x) = \coth(x) - 1/x$ ,  $x = \mu(V)H/kT$ . Here  $\mu(V) = M_s V$  is the magnetic moment of the particle with volume  $V$  and saturation magnetization  $M_s$ . The superparamagnetic magnetization is then an integral over the volume of the Langevin function weighted by the particle size distribution. This magnetization has a saturation value of  $M_{\text{SP}}^0$ . We use a log-normal size distribution function of the form<sup>23</sup>:

$$f(V) = \frac{1}{\sqrt{2\pi} V\sigma} \exp\left[-\frac{\left(\ln\left(\frac{V}{V_m}\right)\right)^2}{2\sigma^2}\right] \quad (1)$$

where,  $\sigma$  and  $V_m$  represent respectively the half-width and mean value of the size distribution.

Fitting to the magnetization of the as-deposited samples, we find that the ratio  $M_{\text{Ferro}}^s/M_{\text{SP}}^0$  between the ferromagnetic and superparamagnetic contributions is near 0 for very thin Co layers,  $t_{\text{Co}} \leq 5 \text{ \AA}$ , rising abruptly to 0.44 for  $t_{\text{Co}} = 6 \text{ \AA}$ . For Co layers thicker than  $8 \text{ \AA}$ , the samples have almost a pure ferromagnetic behaviour. In addition, these fits indicate a systematic increase in the average size of the Co particles; assuming, for simplicity, spherical particles with the volume  $V = \pi D^3/6$ , the average diameter passes from  $32 \text{ \AA}$  at  $t_{\text{Co}} = 4 \text{ \AA}$  to  $50 \text{ \AA}$  at  $t_{\text{Co}} = 6 \text{ \AA}$ . These results confirm the



conclusions inferred from X-ray measurements that the break-up of the magnetic layer happens at a Co thickness below 7 Å.

Magnetic blocking temperatures are another signature of the superparamagnetic state. Values for the magnetic blocking temperatures of a number of the multilayers were obtained by performing zero-field cooled (ZFC) and field-cooled (FC) magnetization measurements. ZFC and FC data, measured in a 20 Oe in-plane applied field, are shown in Fig. 3 for three representative samples with Co layer thicknesses from 4 Å to 7.4 Å. For  $t_{\text{Co}} = 4$  Å, the peak in the ZFC curve, and the onset of the irreversibility between the FC and ZFC curves indicates an average blocking temperature of 41 K. The blocking temperature rises systematically with Co layer thickness to 100 K for the sample with Co layers of 7.4 Å.

Considering that the energy barrier to free rotation of the moments of a magnetic particle of volume  $V$  be determined only by the anisotropy energy  $E_B = KV$ , we can relate this energy to the blocking temperature via the equation<sup>24</sup>  $25k_B T_b(H=0) \approx KV$  where  $T_b(H=0)$  is the value of the blocking temperature extrapolated to zero field. Taking a value of  $4.5 \times 10^5 \text{ J/m}^3$  for the anisotropy constant of fcc Co, the average diameter for the Co particles is estimated (for spherical particles) to range from 35 Å for  $t_{\text{Co}} = 4$  Å to 47 Å when  $t_{\text{Co}} = 7.0$  Å. These values agree reasonably well with those obtained from the analysis of the magnetization curves.

### 3.3. *Magnetoresistance*

Fig. 4 is a plot of the room temperature magnetoresistance of a number of the as-deposited multilayers measured in transverse geometry (in-plane magnetic field applied perpendicular to the current). Since the highest available field was 15 kOe, the MR ratio has been defined as  $\Delta\rho/\rho_0 = [(\rho_{H=0} - \rho_{H=15})/\rho_{H=0}]$ , where  $\rho_{H=0}$  and  $\rho_{H=15}$  are the resistivities in zero and 15 kOe fields, respectively. Very different amplitudes and shapes of the  $\rho(H)$  curves are observed as a function of the Co-layer thickness. For  $t_{\text{Co}} < 4$  Å, the MR is relatively small and isotropic and varies very slowly with the applied magnetic field, as is expected for superparamagnetic clusters.

A significant evolution in the MR takes place for Co layer thicknesses in the range from 5 Å to 6.5 Å. Firstly, the MR amplitude increases by a factor of 4 compared with that of the thinnest Co layers and the shape of the MR curve changes. Two distinct regions can be identified: in small fields (< 3 kOe) the MR decreases rapidly followed by a very slow approach to saturation in larger fields. Beyond a Co layer thickness of 7.5 Å, the magnitude of the MR falls off rapidly and the variation with field also exhibits a slow approach to saturation. In addition, a significant difference between the in-plane and perpendicular MR curves develops for thick Co layers, suggesting a strong demagnetizing field due to the progressive formation of continuous Co layers.

Even for the sample with the thickest Co layers, the contribution of a ferromagnetic anisotropic magnetoresistance (longitudinal MR minus transverse MR) was small so that the analysis of the MR curves assumes that the scattering originates from small superparamagnetic Co clusters. The field behaviour is indicative of a distribution of particle sizes, the larger ones controlling the low field variation and the smaller single-domain particles dominating at high fields<sup>4,8</sup>.

In order to quantify the analysis, we characterize the size distribution of the superparamagnetic particles as log-normal as was done in ref. I, following the proposal of Gittleman<sup>25</sup>. Considering that magnetic moments of the particles are randomly oriented, the field dependence of the GMR ratio can be expressed as:

$$\frac{\Delta \rho}{\rho} = \frac{\rho(H) - \rho(0)}{\rho(0)} = -\alpha_0 \cdot \left( \int_{-\infty}^{\infty} L\left(\frac{\mu(V)H}{k_B T}\right) f(V) d(\ln V) \right)^2 \quad (2)$$

where  $\rho(0)$  is zero-field resistivity,  $\Delta\rho$  the resistivity change in a field  $H$  and  $\alpha_0$  the magnitude of the GMR. The magnetoresistance curves have been fitted using Eq. (2) and a log-normal distribution for the particle sizes described by Eq. (1). The results of this analysis for the as-deposited samples as well as those measured after subsequent irradiation doses are presented in section 4.3.

#### 4. *Irradiation effects.*

In this section we present the effects of ion-beam irradiation on the structure,

magnetization and magnetoresistance for samples having different Co thickness.

#### **4.1. Structural modifications**

The evolution of the X-ray structure of the multilayers at all Co layer thicknesses generally follows that discussed for the film with the 5.0 Å Co layer thickness detailed in ref. I. The principal peaks are assigned as Ag (111) around  $2\theta = 38^\circ$  and Ag (222) near  $2\theta = 82^\circ$ . The initial  $2\theta$  positions are several percent higher than the bulk equilibrium values for pure Ag, indicating a lattice contraction resulting from the incorporation of at least part of the Co into the Ag matrix. With ion bombardment, these peaks grow in intensity, narrow and shift almost completely to the bulk positions for pure Ag. In addition, two other peaks emerge at high ion dose ( $> 2 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ ) near  $2\theta = 43.5^\circ$  and  $2\theta = 95.5^\circ$  (Fig. 5 and ref. D). Their positions and the fact that their intensities track the Co layer thickness leads us to ascribed them to Co (111) and Co (222) reflections, respectively. As with the  $t_{\text{Co}} = 5.0 \text{ Å}$  film studied in I, the Co grains are highly textured in the same orientation as the Ag grains.

As-deposited multilayers with continuous Co layers exhibit well developed X-ray superlattice reflections as shown in Figs. 1 and 5. At low doses ( $< 8 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ ), the intensities of the superlattice peaks initially increase as a result of an initial demixing near the interfaces. The superstructure is relatively robust under ion bombardment up to an ion dose exceeding  $10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ . Larger doses progressively reduce the intensity of the superlattice peaks as the interlayer coherence is destroyed by the breakup of the layer structure and the formation of separate Co and Ag grains.

#### **4.2. Irradiation effects on the magnetization**

Ion-beam irradiation causes significant changes in the magnetization curves. At Co-layer thicknesses of 5 Å and below, the films are initially superparamagnetic at room temperature and only develop a ferromagnetic component upon bombardment, as has been discussed in I. In the transition zone between Co layers of 5 and 7 Å, a mixed superparamagnetic-ferromagnetic character is present. The evolution of this behaviour with ion dose is illustrated in Fig. 6 for the  $t_{\text{Co}} = 6 \text{ Å}$  sample. Extending the analysis described in section 3.2 to the irradiated sample gives at  $8 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  an initial

reduction in the average grain size from  $D_m = 48 \text{ \AA}$  to  $42 \text{ \AA}$  accompanied by a decrease of the ferromagnetic component ( $M_{Ferro}^0/M_{SP}$  goes from  $0.44$  to  $0.19$ ). A similar initial decrease in the average grain size has been noted for the  $5 \text{ \AA}$  sample in I. Subsequent irradiation to  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  almost doubles the average particle diameter to  $76 \text{ \AA}$  leading to a significant conversion of the magnetic material from superparamagnetic to ferromagnetic ( $M_{Ferro}^0/M_{SP}^0 = 1.4$ ). Details of this evolution under ion bombardment are illustrated in Fig. 6 along with the calculation of the fitted superparamagnetic and ferromagnetic components.

Beyond a Co-layer thickness of about  $8 \text{ \AA}$  (Fig. 2), the film behaviour is initially ferromagnetic with a small in-plane anisotropy, characteristic of continuous layers coupled ferromagnetically. Only minor changes can be observed after irradiation up to  $3 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  and, for larger doses, the in-plane magnetization curves become isotropic and the coercive field increases. At all doses, films with thick Co layers maintain a predominantly ferromagnetic character, although there is a rounding of the magnetization curves and a somewhat slower approach to saturation at the highest doses. We conclude that some superparamagnetic clusters are formed as the layers are broken up but that most of the Co remains in grains sufficiently large to support ferromagnetism.

In I, it was demonstrated that the coercive field  $H_c$  increased rapidly at the highest doses for the film with  $5 \text{ \AA}$  Co layers. The same phenomenon occurs for thicker Co layers. At  $t_{Co} = 6 \text{ \AA}$  it is more pronounced but at greater thicknesses the effect is substantially attenuated. In part, this behaviour arises from the generation of defects and pinning centers within the films. However, the fact that the variation in  $H_c$  is greatest for films in the transition zone from superparamagnetic to ferromagnetic behaviour also suggests that it is a consequence of the significant changes in particle sizes, shapes and separations under irradiation. A similar behaviour of the coercive field was also observed upon annealing in  $\text{Co}_x\text{Cu}_{1-x}$  and  $\text{Fe}_x\text{Cu}_{1-x}$  alloys<sup>26</sup>.

### 4.3. *Irradiation effects on the magnetoresistance*

As remarked in section 3.3, the magnetoresistance of the as-deposited multilayers varies in magnitude and form with the Co-layer thickness. Under ion bombardment, there are further changes in the the MR which differ with  $t_{Co}$ . Fig. 7 summarizes the behaviour of the resistivity and the magnetoresistivity of several representative samples in the series. At all Co-layer thicknesses (Fig. 7a), the resistivity  $\rho$  increases at least 20 % at doses up to about  $10^{15}$   $Si^+/cm^2$ , after which further irradiation causes it to fall to a value close to the original one. In contrast, it can be pointed out that, for Co/Cu multilayers irradiated under similar conditions<sup>19</sup>, the resistivity at high dose continues to increase with ion dose.

The initial increase of the resistivity is the result of several possible factors. On one hand, the X-ray data have shown that ion irradiation initially induces some atomic demixing in the interfacial regions which should normally result in a reduced resistivity; on the other, the irradiation generates bulk defects which have the opposite effect on the resistivity. The universal increase of the resistivity at small doses clearly indicates that defect production has the greater effect. The subsequent decrease in  $\rho$  at doses above  $10^{15}$   $Si^+/cm^2$  is due to the atomic segregation and grain growth; it is apparent that the granular material is less resistive than the corresponding alloy mixture.

Fig. 7b presents the field induced variation of the resistivity  $\Delta\rho$  with ion dose for the samples of Fig. 7a. For all multilayers, no significant change is observed below a threshold dose of order  $10^{15}$   $Si^+/cm^2$ . With the exception of the thinnest film ( $t_{Co}=1.2$  Å), there is a monotonic decrease of  $\Delta\rho$  with doses greater than the threshold value; such behaviour signals changes in the magnetic disorder on the scale of the mean free path. At the highest dose of  $5 \times 10^{16}$   $Si^+/cm^2$ ,  $\Delta\rho$  is almost identical for all the samples. Finally, Fig. 7c illustrates the variation of the magnetoresistance  $\Delta\rho/\rho$  with ion dose. The MR also decreases monotonically, falling quite abruptly beyond the threshold dose for  $\Delta\rho$ .

Some evolution in the shape of the MR curves are observed, most noticeably for the multilayers with the thinnest Co layers (Fig. 8 for  $t_{Co}=2.8$  Å). The initial curve has a

parabolic shape with no sign of saturation up to 15 kOe, as is expected for Co dispersed in very small Co clusters. With increasing dose, the shape transforms to the a cusp-like form ususally observed for GMR materials: the MR drops rapidly at low fields and saturating at a field which decreases with ion dose. For all doses, the MR curves are nearly identical for the field oriented in the sample plane (TMR) and perpendicular to the plane (PMR). This isotropy indicates that the Co particles are reasonably spherical for all ion doses. Application of the analysis of the curves described previously yields quantitative information about the size distribution of the Co particles. For the  $t_{\text{Co}}=2.8$  Å sample, we calculate an average diameter of 17 Å ( $\sigma = 0.35$ ) in the as-deposited sample which rises to 38 Å ( $\sigma = 0.89$ ) at the maximum dose of  $5 \times 10^{16}$  Si<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>.

In the transition region between superparamagnetic and ferromagnetic behaviour the shape of the MR curves is cusp-like around  $H = 0$ , as illustrated for  $t_{\text{Co}}=5.0$  Å in ref. I. The magnitude of the MR falls in accordance with Fig. 7 as ion irradiation causes growth of the magnetic clusters. Fitting the MR curves results in average particle diameters that double under ion bombardment: 23 Å to 52 Å for  $t_{\text{Co}}=5.0$  Å (ref. I); 26 Å to 59 Å for  $t_{\text{Co}}=6.0$  Å. For the as-deposited samples, the analysis of the magnetization curves gives somewhat larger values, but the two analyses converge to very similar values at large ion doses. Nevertheless, both magnetic and transport data support a consistent picture that ion bombardment results in the segregation and growth of the magnetic particles.

For multilayer with  $t_{\text{Co}} > 8$  Å the Co layers are almost continuous. The MR is small and displays anisotropies for field orientations within the plane of the sample and perpendicular to it. Ferromagnets normally exhibit an anisotropic magnetoresistance (AMR) for the field oriented parallel or perpendicular to the current; such an effect is evident for the  $t_{\text{Co}}=14$  Å film. Upon irradiation the MR and AMR change but never exceed a value of 1 %. Furthermore, at high doses, the PMR (field directed perpendicularly to the film surface) is characterized by a demagnetization field which is significantly larger than found for the in-plane MR. It would appear that, even at a dose of  $5 \times 10^{16}$  Si<sup>+</sup>/cm<sup>2</sup>, the initially continuous Co layers have been broken into quite anisotropic magnetic clusters. As was the case for the magnetization data, the

magnetoresistance curves for such thick films cannot be analyzed within the model used for the superparamagnetic samples, so no detailed information is available on the size distribution of the magnetic clusters for these materials.

The decrease of  $\Delta\rho$  and  $\Delta\rho/\rho$  upon irradiation can be understood if one considers that the spin-dependent scattering at the surface of particles is dominant, as proposed by Berkowitz<sup>2</sup>, Zhang and Levy<sup>6</sup>. With this assumption, their models predict that  $\Delta\rho$  will decrease as the particle diameter increases since the corresponding reduction in the *surface/volume* ratio results in relatively less spin dependent interfacial scattering relative to scattering processes in the bulk of the clusters. Qualitatively, it has been noted that the MR falls strongly as the average particle size grows upon irradiation. This effect is demonstrated quantitatively in Fig. 9 where it is shown that the total change in the fitted resistivity ( $\alpha_o \propto 1/D_m$ ) for samples with a significant superparamagnetic component. In the figure,  $\Delta\rho$  for the  $t_{Co} = 5.0 \text{ \AA}$  sample is substantially bigger than that found for the  $t_{Co} = 2.8 \text{ \AA}$  film at the same mean cluster size, indicating a dependence on the mean separation of the clusters. Furthermore, for the samples in the transition region ( $4 \text{ \AA} < t_{Co} < 7.5 \text{ \AA}$ ),  $\Delta\rho$  is somewhat larger than expected on the basis of a collection of superparamagnetic particles only. This difference can be ascribed to contributions from other mechanisms such as reported by Hylton *et al* in NiFe/Ag multilayers<sup>8</sup>.

## 5. Conclusions

This paper completes a study (begun in I) of the structural, magnetic and transport properties of a series of  $[\text{Co}(t_{Co})/\text{Ag}(25\text{\AA})]_{70}$  multilayers with Co-layer thicknesses between  $1 \text{ \AA}$  and  $14 \text{ \AA}$  and their modification by  $1 \text{ MeV Si}^+$  ion bombardment. The multilayers can be classified into three groups according to  $t_{Co}$ : below about  $4 \text{ \AA}$ , the Co is initially dispersed in the highly textured Ag matrix; above  $8 \text{ \AA}$  a continuous Co layer is formed during deposition; a transition region exists between these values.

Fig. 10a presents a schematic representation of the structure for the as-deposited multilayers in the transition region ( $5 \text{ \AA} < t_{\text{Co}} < 7 \text{ \AA}$ ), and for the multilayers with continuous Co layers ( $t_{\text{Co}} > 8 \text{ \AA}$ ).

The large structural changes that we observed upon irradiation are depicted in Fig. 10b. Low ion doses induce a limited demixing of the elements which is most noticeable for thick continuous Co layers as a sharpening of the superlattice modulation. At high ion doses, the Co is progressively segregated from the Ag. The general tendency to form a granular structure after high dose irradiation is illustrated in Fig. 10c. The lattice constant of the Ag matrix shows that there is almost a complete phase separation after irradiation by  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ . For samples with thin and intermediate Co layers, ion irradiation leads to a systematic growth of Co clusters; for multilayers with initially continuous Co layers, the periodic superstructure is destroyed and the films take on a granular structure. In all cases, the Co and Ag grains formed after intense ion bombardment share a high degree of structural texturing, essentially fcc (111).

The initial magnetic state of the films varies from superparamagnetic to ferromagnetic for increasing Co-layer thickness. As the samples are irradiated, the magnetic behaviour becomes more ferromagnetic as the particles increase in size and become magnetically coupled. The magnetization curves were analyzed to separate superparamagnetic and ferromagnetic components on the basis of their field dependencies up to  $t_{\text{Co}} = 8 \text{ \AA}$ ; beyond this value the superparamagnetic component is too small for reliable analysis. Mean superparamagnetic cluster diameters increase by about a factor of two up to the maximum ion dose of  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ .

The magnetoresistance of the as-deposited samples is maximum in the transition region ( $4.5 \text{ \AA} < t_{\text{Co}} < 6.5 \text{ \AA}$ ); it decreases systematically under ion bombardment for all films beyond a threshold dose of about  $10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ . Clearly, the largest GMR ratios can be associated with superparamagnetic clusters of a certain size and separation; the GMR becomes negligible with the increase of the mean cluster size and the onset of collective ferromagnetic-like behaviour. Fitting the MR curves to a log-normal



distribution, as was done for the magnetization, the mean size of the magnetic clusters and their distribution were determined at different irradiation stages. We find that the width and the mean-value of the distribution largely increase with irradiation showing that the fraction of large particles, not contributing to the magnetoresistance, is enhanced. The fits shows that  $\Delta\rho \propto 1/D_m$  for the samples with granular-like behaviour consistent with a dominant spin-dependent scattering that occurs mostly at Co/Ag interfaces.

The evolution of the structural, magnetic and transport properties of these Co/Ag samples can be understood on the basis of the mechanisms generally invoked to describe ion-beam mixing in multilayers: collisional (ballistic) transport, thermal spike diffusion and irradiation enhanced diffusion.<sup>27, 28</sup> For systems with a large positive heat of mixing, the initial ballistic mixing is partially recovered by chemically driven relocation within cascades which acts as a demixing mechanism in the thermal spike stage of the collision cascade. The role of the chemical driving forces will be enhanced for high doses once atomic relocations over extended regions due to the spatial superposition of cascades begin to promote phase segregation and the agglomeration of neighbouring grains.

### *Acknowledgements*

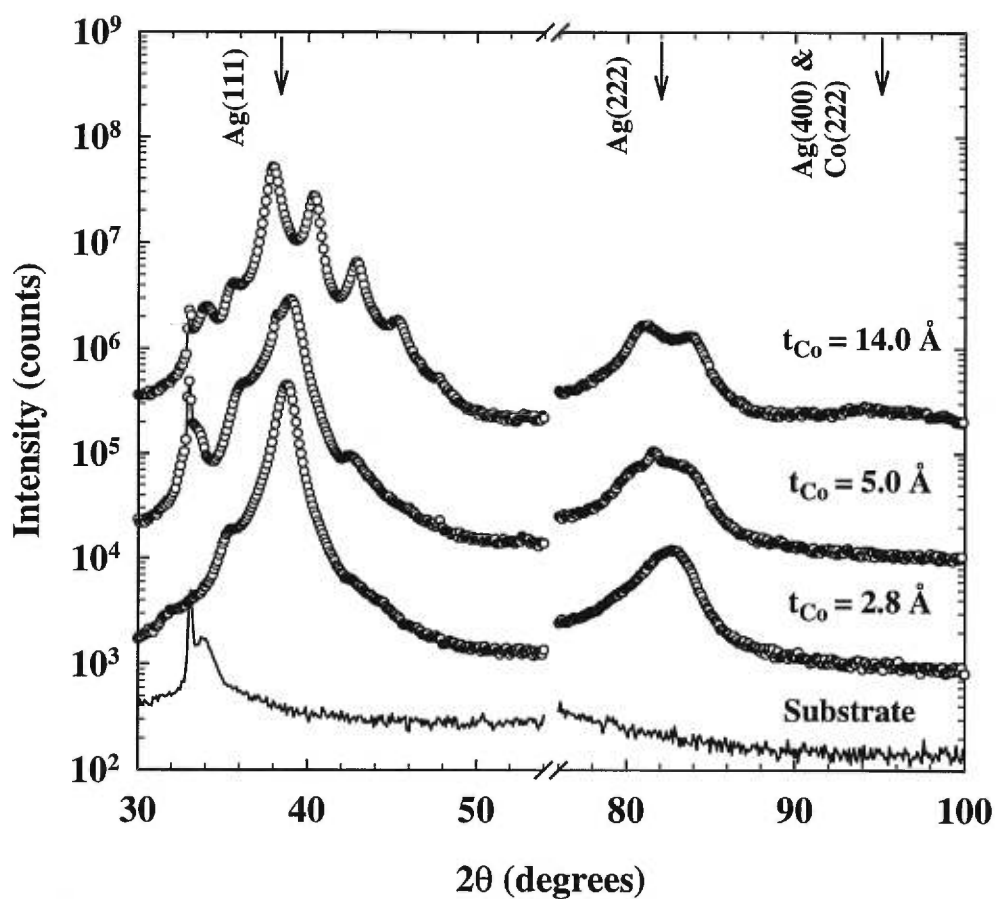
The authors would like to thank D. Ryan and L. Cheng of McGill University for access to the low temperature magnetometer and for help with the X-ray measurements. It also is a pleasure to acknowledge G. Rinfret and R. Rinfret for their help with the maintenance of the sputtering and magnetoresistance experiments as well as P. Bérichon and R. Gosselin with the operation of the tandetron accelerator. We acknowledge the financial support of this research from NSERC of Canada and Le Fonds FCAR du Quebec.

## References

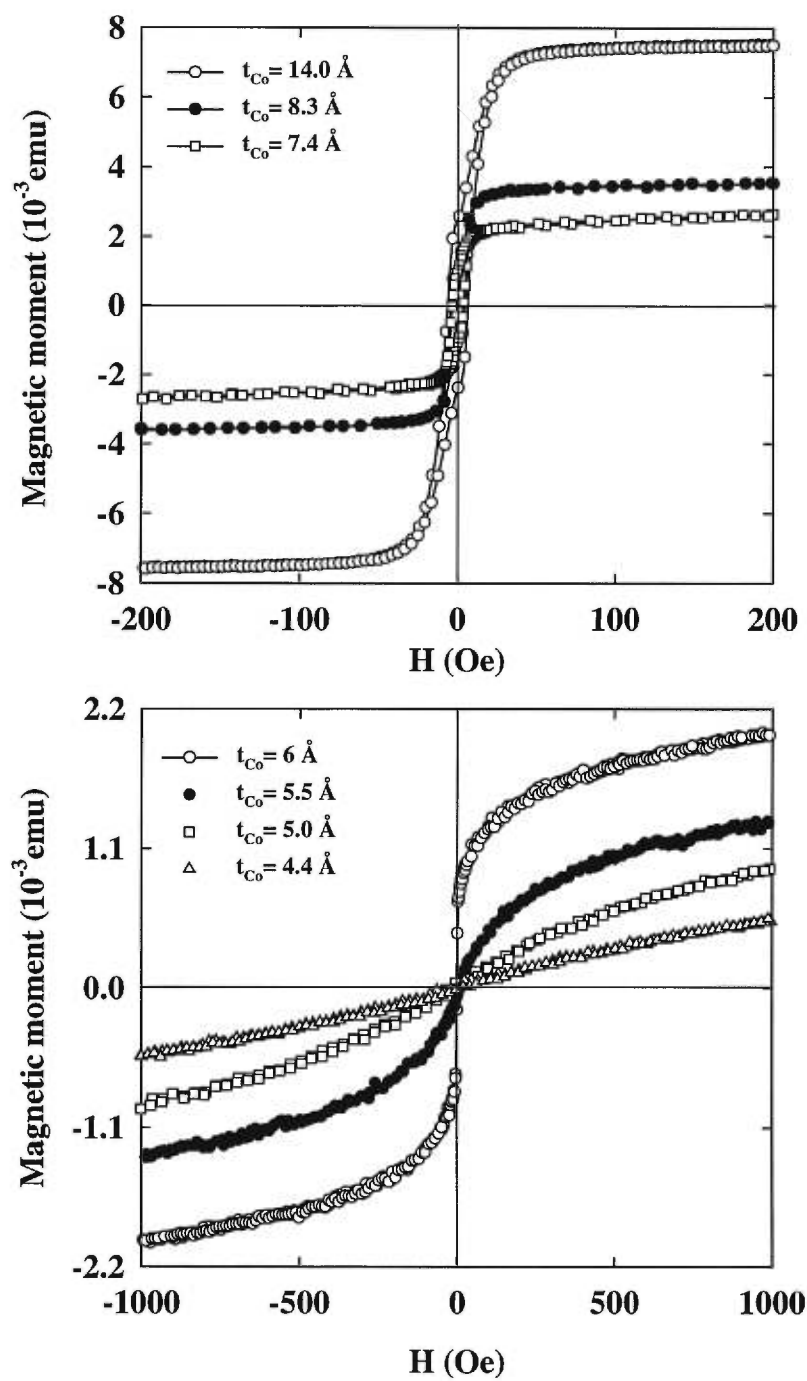
---

- <sup>1</sup> M.N. Baibich, J.M. Broto, A. Fert, F. Nguyen van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich and J. Chazelas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 2472 (1988).
- <sup>2</sup> A. Berkovitz, A.P. Young, J.R. Mitchell, S. Zang, M.J. Carey, F.E. Spada, F.T. Parder, A. Hutten and G. Thomas, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3745 (1992).
- <sup>3</sup> J.G. Xiao, J.S. Jiang and C.L. Chien, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3749 (1992).
- <sup>4</sup> O. Redon, J. Pierre, B. Rodmacq, B. Mevel and B. Dieny, *J. Magn. Magn. Mater.* **149**, 398 (1995).
- <sup>5</sup> B. Dieny, S. R. Teixeira, B. Rodmacq, C. Cowache, S. Auffret, O. Redon and J. Pierre, *J. Magn. Magn. Mater.* **130**, 197 (1994).
- <sup>6</sup> S. Zhang, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 1855 (1992); S. Zhang and P. Levy, *J. Appl. Phys.* **73**, 5335 (1993).
- <sup>7</sup> T.A. Rabedeau, M.F. Toney, R.F. Marks, S.S. P. Parkin, R.F.C. Farrow and G.R. Harp, *Phys. Rev. B* **48**, 16810 (1993).
- <sup>8</sup> T.L. Hylton, K.R. Coffey, M.A. Parker and J.K. Howard, *Sci.* **261**, 1858 (1992).
- <sup>9</sup> W.H. Flores, S.R. Teixeira, J. Geshev, J.B.M. da Cunha, P. J. Schilling, A. Traverse and M.C. Martins Alves, *J. Magn. Magn. Mater.* **188**, 17 (1998).
- <sup>10</sup> A.D. Viegas, J. Geshev, L.S. Dorneles, J.E. Schmidth and M. Knobel, *J. Appl. Phys.* **82**, 3047 (1997).
- <sup>11</sup> J.R. Regnard, C. Revenant-Brizard, B. Dieny, B. Mevel and J. Mimault, *Mat. Res. Soc. Proc.* **400**, 329 (1996). J.F. Gregg, S.M. Thompson, S.J. Dawson, K. Ounadjela, C.R. Staddon, J. Hamman, C. Fermon, G. Saux, K. O'Grady, *Phys. Rev. B* **49**, 1065 (1994).
- <sup>12</sup> J.F. Gregg, S.M. Thompson, S.J. Dawson, K. Ounadjela, C.R. Staddon, J. Hamman, C. Fermon, G. Saux and K. O'Grady, *Phys. Rev. B* **49**, 1065 (1994).
- <sup>13</sup> L.F. Schelp, G. Tosin, M. Carara, M.N. Baibich, A.A. Gomes and J.E. Schmidt, *Appl. Phys. Lett.* **61**, 1858 (1992).
- <sup>14</sup> B.M. Paine and R.S. Averbach, *Nucl. Instrum. Methods B* **7/8**, 666 (1985).

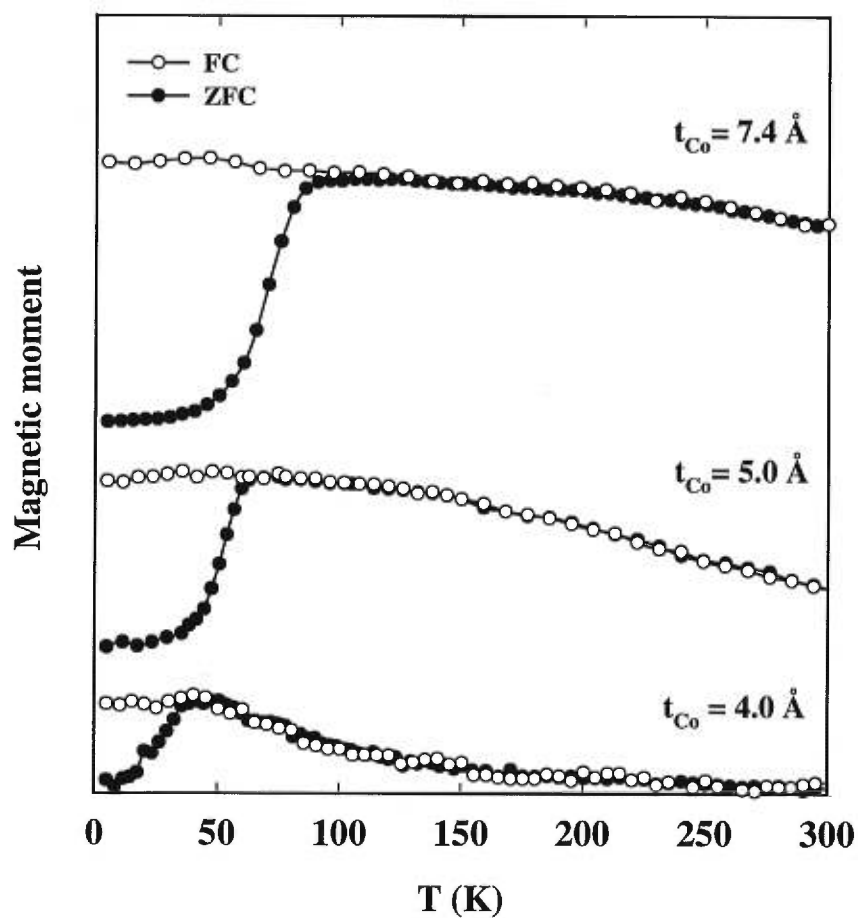
- 
- <sup>15</sup> A.C. Sosa, P. Schaaf, W. Bolse, K.P. Lieb, M. Gimbel, U. Geyer and C. Tosello, *Phys. Rev. B* **53**, 14795 (1996).
- <sup>16</sup> J. Pacaud, G. Gladyszewski, C. Jaouen, A Naudon, Ph. Goudeau and J. Grilhé, *J. Appl. Phys.* **73**, 2786 (1993).
- <sup>17</sup> H.U. Krebs, Y. Luo, M. Störmer, A. Crespo, P. Schaaf and W. Bolse; *Appl. Phys. A* **61**, 159 (1995).
- <sup>18</sup> V. Kornievski, K.V. Rao, D.M. Kelly, I.K. Shuller, K.K. Larsen and J. Bøttiger, *J. Magn. Mater.* **140-144** 549 (1995); D.M. Kelly, I.K. Shuller, V. Kornievski, K.V. Rao, K.K. Larsen, J. Bøttiger, E.M. Gyorgy, and R.B. van Dover, *Phys. Rev. B* **50** 3481 (1994).
- <sup>19</sup> M. Cai, T. Veres, S. Roorda, R. W. Cochrane, R. Abdouche, and M. Sutton, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc.* **504**, 197 (1998).
- <sup>20</sup> M.B. Stearns and Y. Cheng, *J. Appl. Phys.*, **75**, 6894 (1994).
- <sup>21</sup> T. Veres, M. Cai, S. Roorda and R.W. Cochrane, (submitted to *J. Appl. Phys.* as reference I).
- <sup>22</sup> C.L. Chien, *J. Appl. Phys.* **69**, 5267 (1991).
- <sup>23</sup> R.W. Chantrell, J. Popplewell and S.W. Charles, *IEEE Trans. Magn.* **14**, 975 (1978).
- <sup>24</sup> B.D. Cullity, *Introduction to Magnetic Materials*, Addison-Wesley, (1972) p. 410.
- <sup>25</sup> J.I. Gitteleman, Y. Goldstain, and S. Bosowski, *Phys. Rev.* **B 5** 360 (1972).
- <sup>26</sup> J.R. Childress and C.L. Chien, *J. Appl. Phys.* **70**, 5887 (1991); J.R. Childress and C.L. Chien, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 95 (1991).
- <sup>27</sup> W.L. Johnson, Y.T. Cheng, M. Van Rossum and M.-A. Nicolet, *Nucl. Instrum. Methods B* **7/8**, 657 (1985).
- <sup>28</sup> P. Sigmund and A. Gras-Marti, *Nucl. Instrum. Methods* **182-183**, 25 (1981).



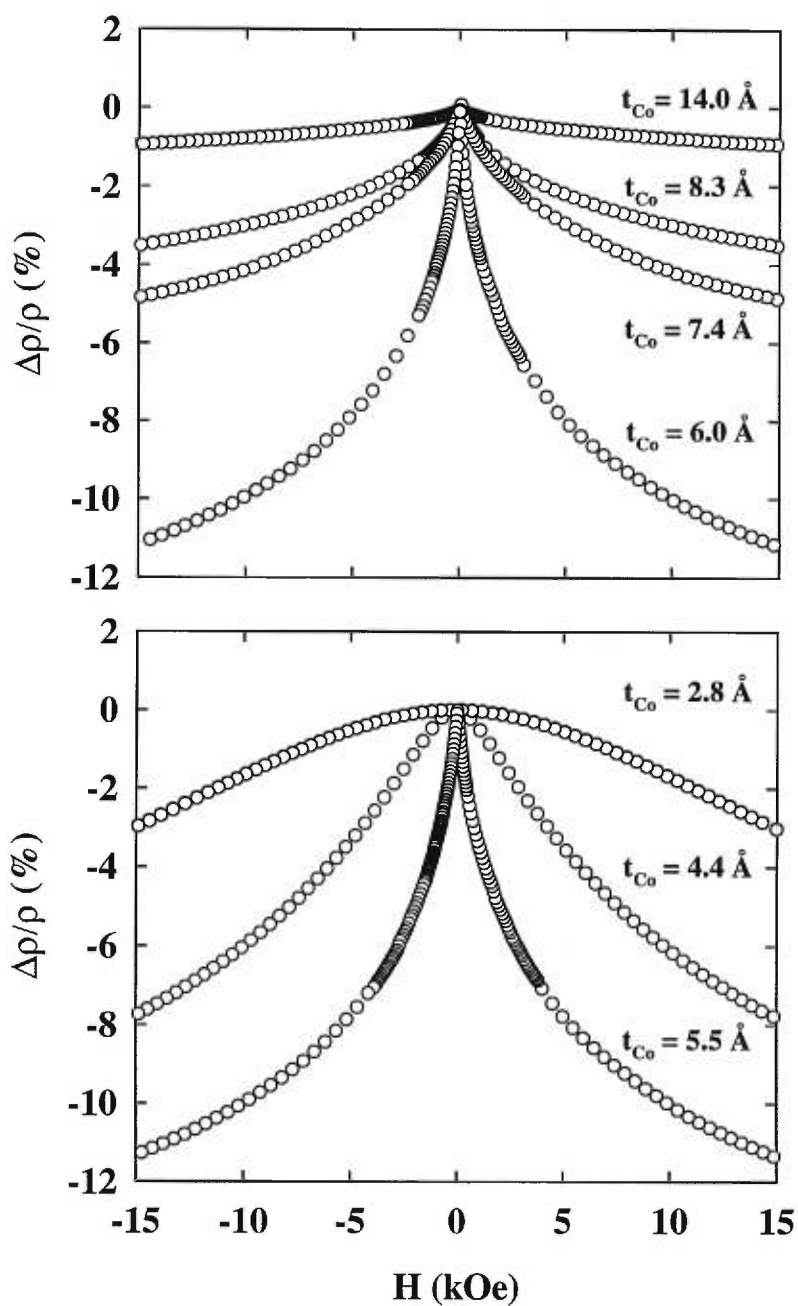
**Figure 1:** X-ray diffraction spectra measured using  $\text{CuK}\alpha$  radiation for the as-deposited multilayers with  $t_{\text{Co}} = 2.8 \text{ \AA}$ ,  $5.0 \text{ \AA}$  and  $14 \text{ \AA}$ . The solid-line spectrum shows the signal originating from the substrate. For clarity, successive spectra have been shifted vertically.



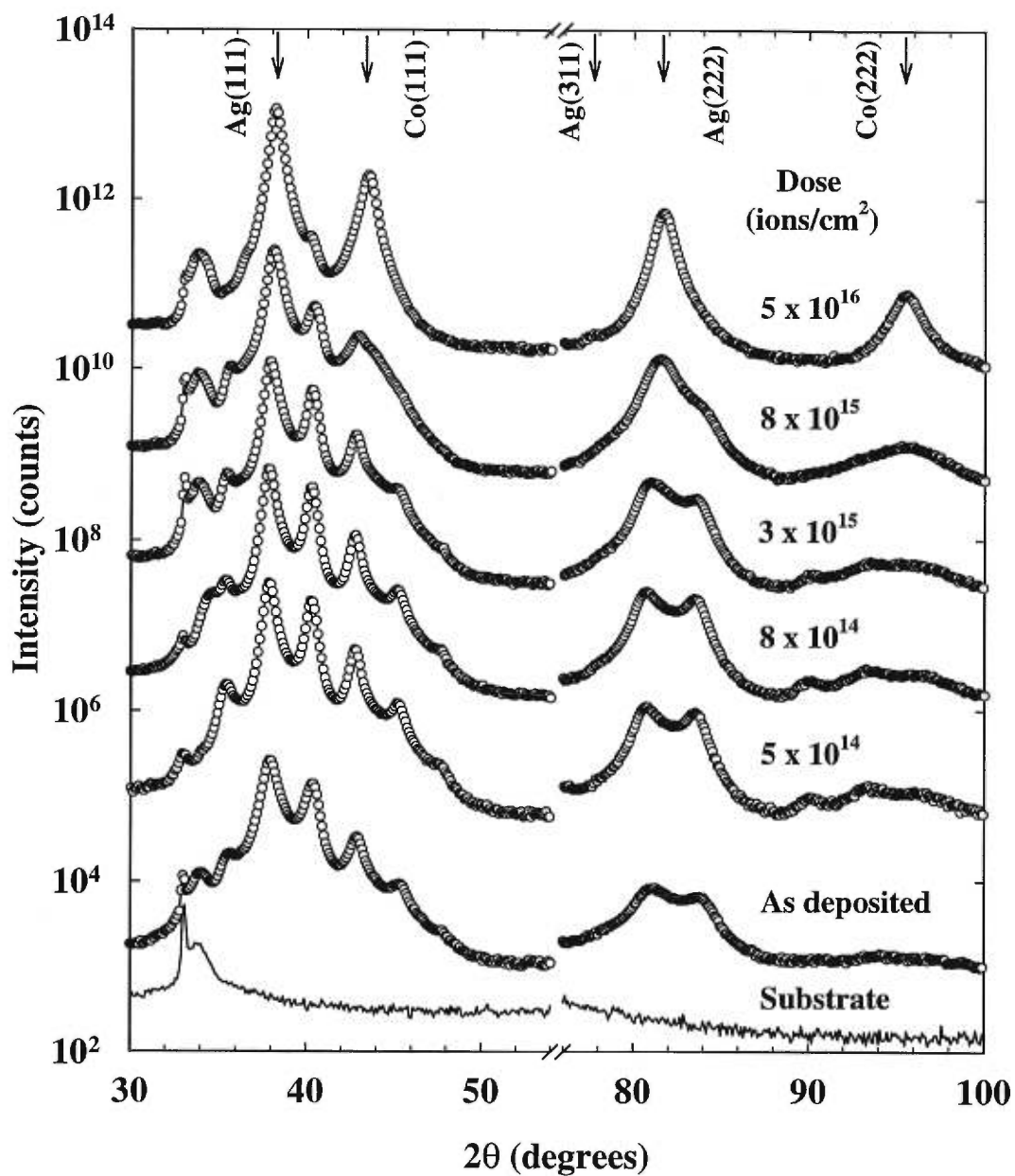
**Figure 2:** In-plane magnetization curves measured at room temperature for multilayers with Co thicknesses of 1.2  $\text{\AA}$ , 4.0  $\text{\AA}$ , 6.0  $\text{\AA}$  and 14  $\text{\AA}$ .



**Figure 3:** Temperature dependence of the magnetization measured in an applied field of 20 Oe for the as-deposited multilayers with  $t_{Co} = 4.0 \text{ \AA}$ ,  $5.0 \text{ \AA}$  and  $7.0 \text{ \AA}$ . ZFC (filled circles) and FC (open circles) refer to zero-field-cooled and field-cooled conditions, respectively.

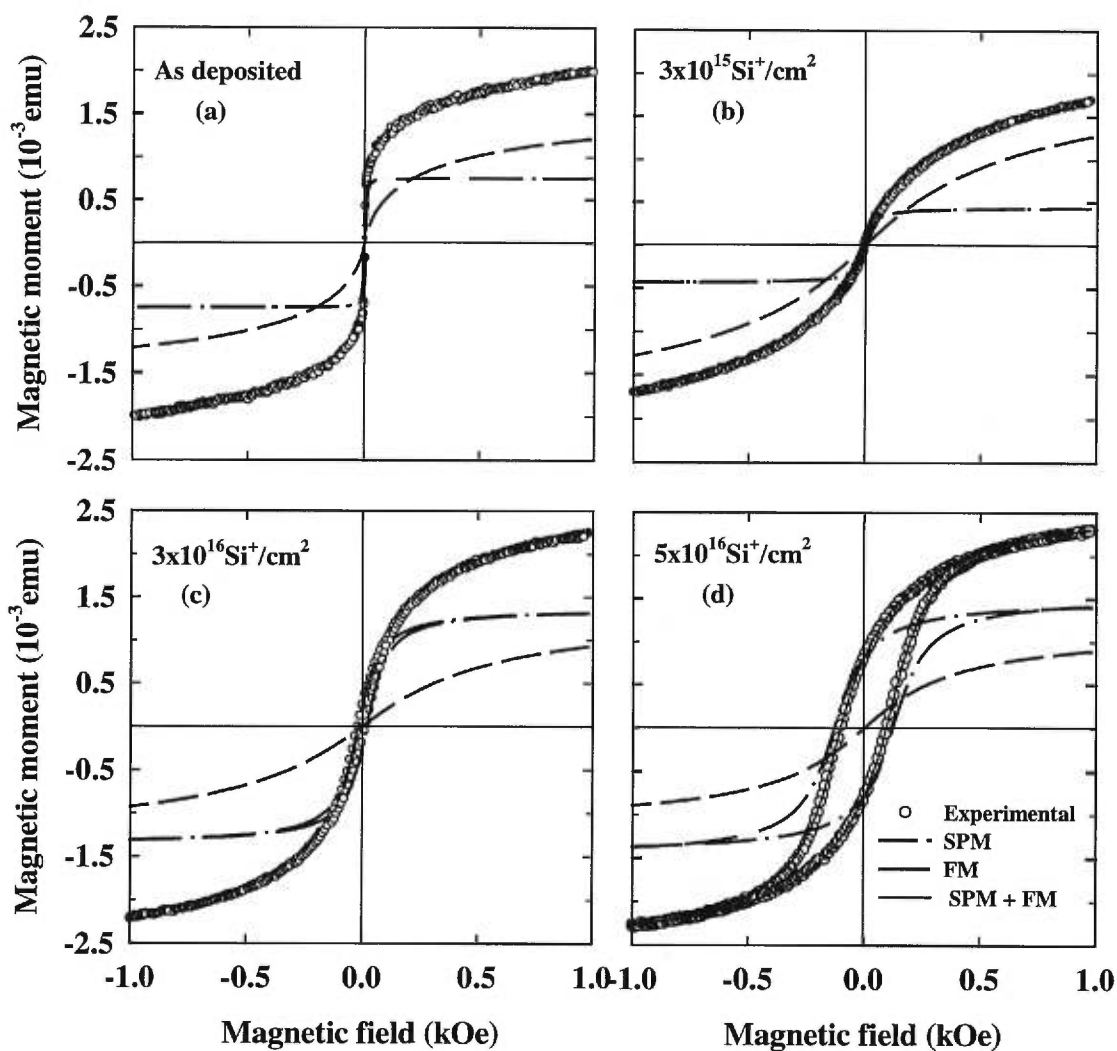


**Figure 4:** Room temperature magnetoresistance in transverse geometry for the as-deposited samples with Co thicknesses of 1.2 Å, 4.0 Å, 6.0 Å and 14 Å.

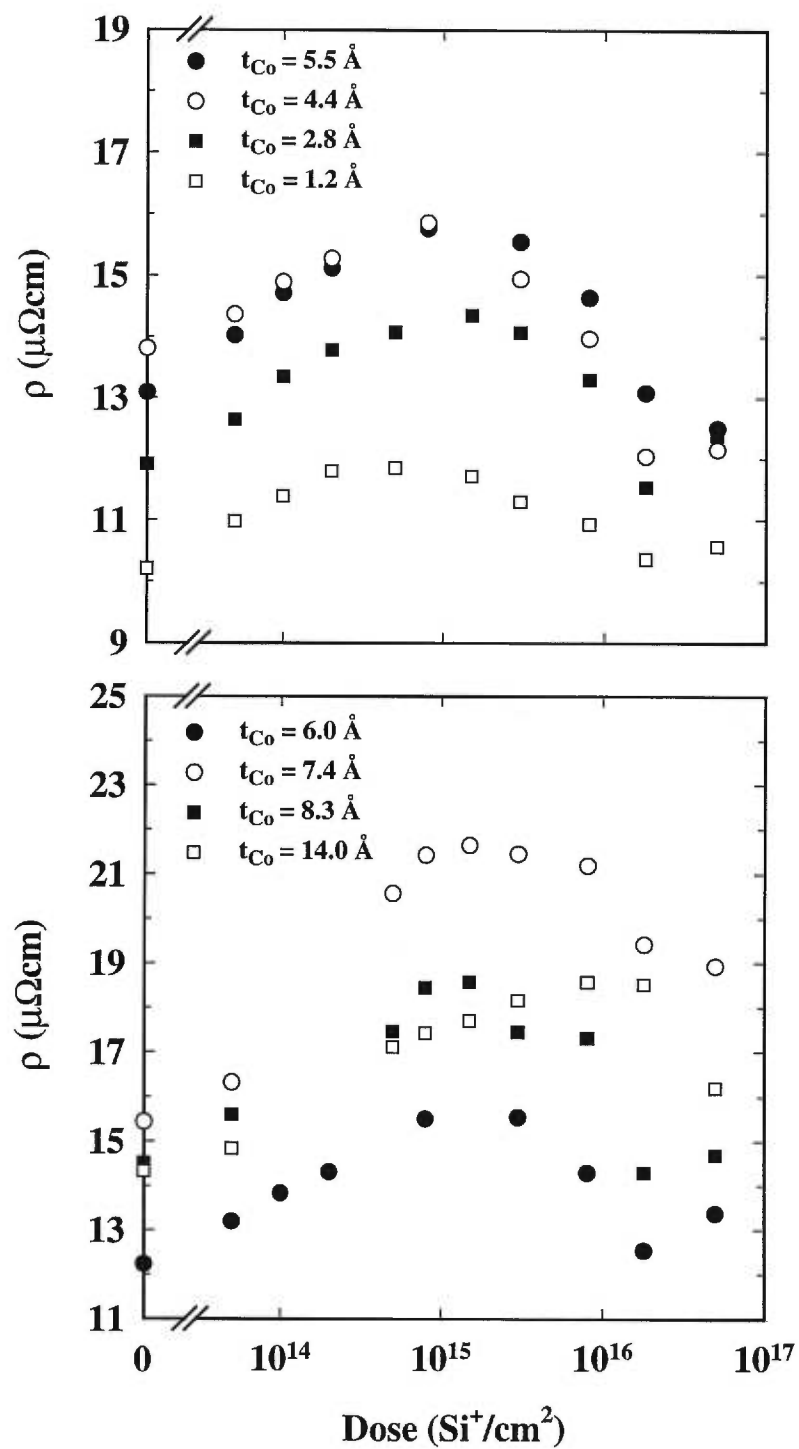


**Figure 5:** X-ray diffraction spectra for the 14 Å Co multilayer after various stages of 1 MeV Si<sup>+</sup> irradiation. The substrate signal is represented by the solid-line spectra. Successive spectra have been shifted vertically for clarity.

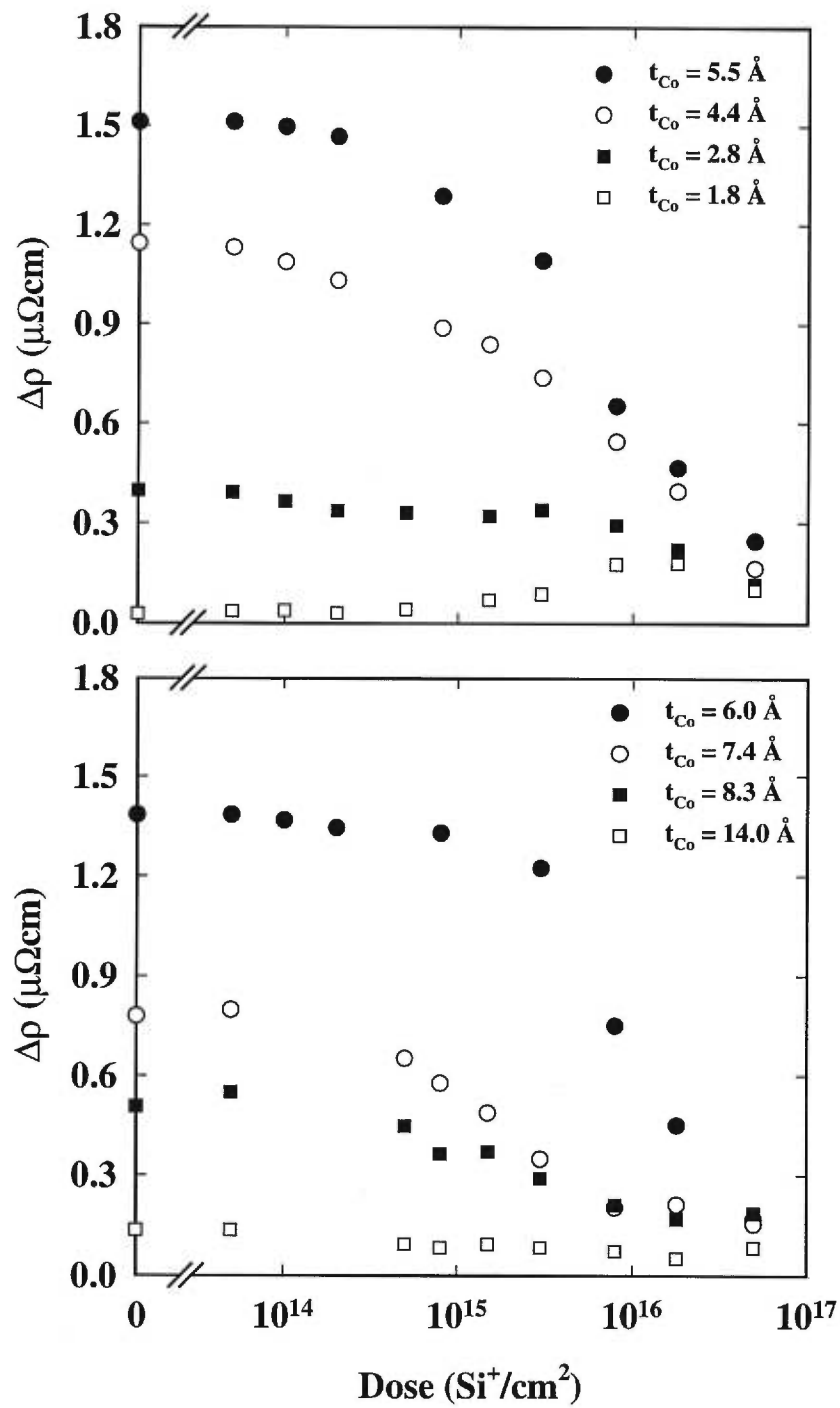




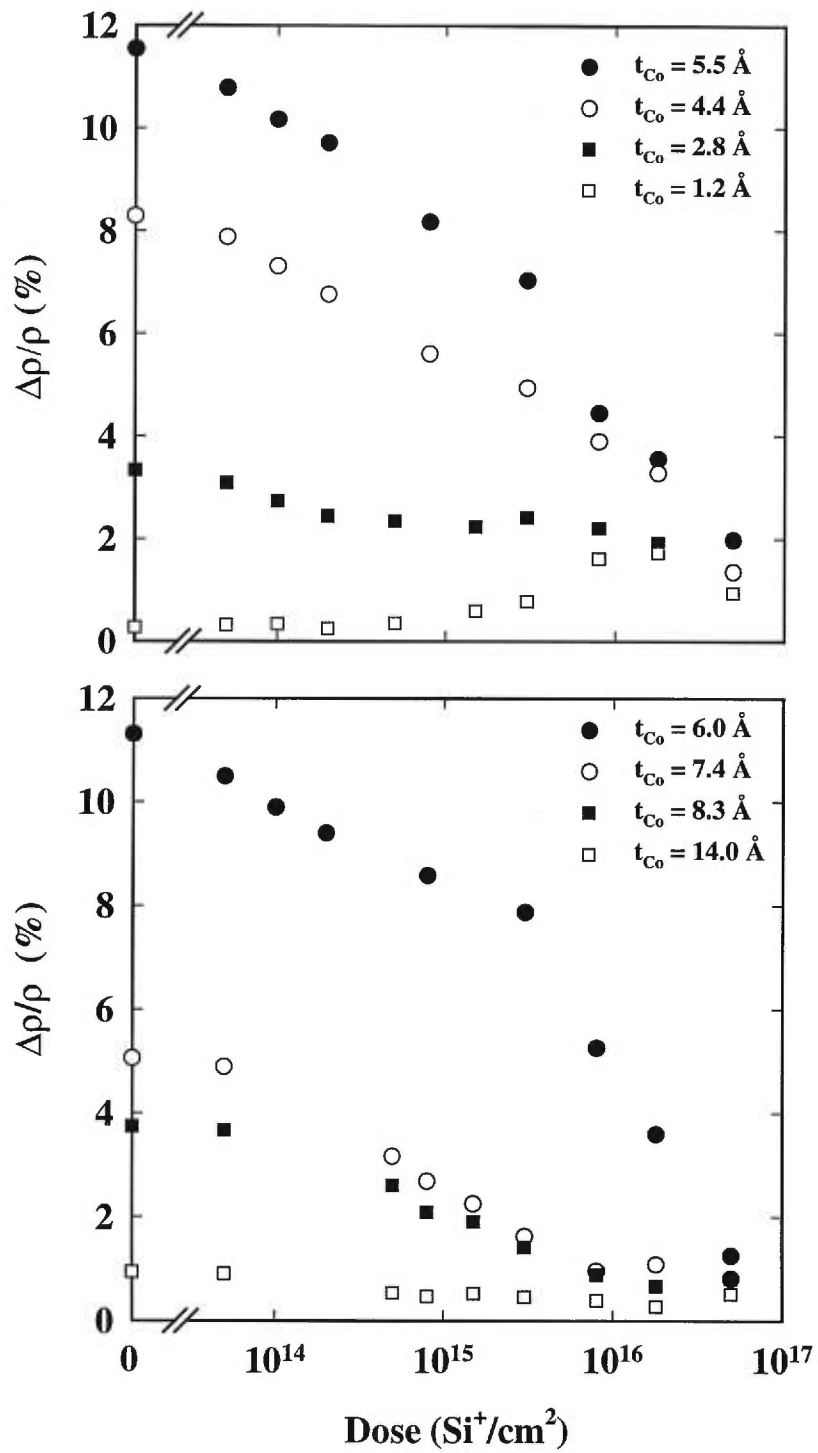
**Figure 6:** Magnetization of the  $t_{\text{Co}} = 6.0 \text{ \AA}$  sample measured at 300 K after different irradiation doses: (a) as-deposited, (b)  $3 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ , (c)  $1 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$  and (d)  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ . The calculated superparamagnetic (solid) and the ferromagnetic (dashed) contributions are also shown. The total calculated curve (SPM+FM - solid line) is superimposed on the data in (d).



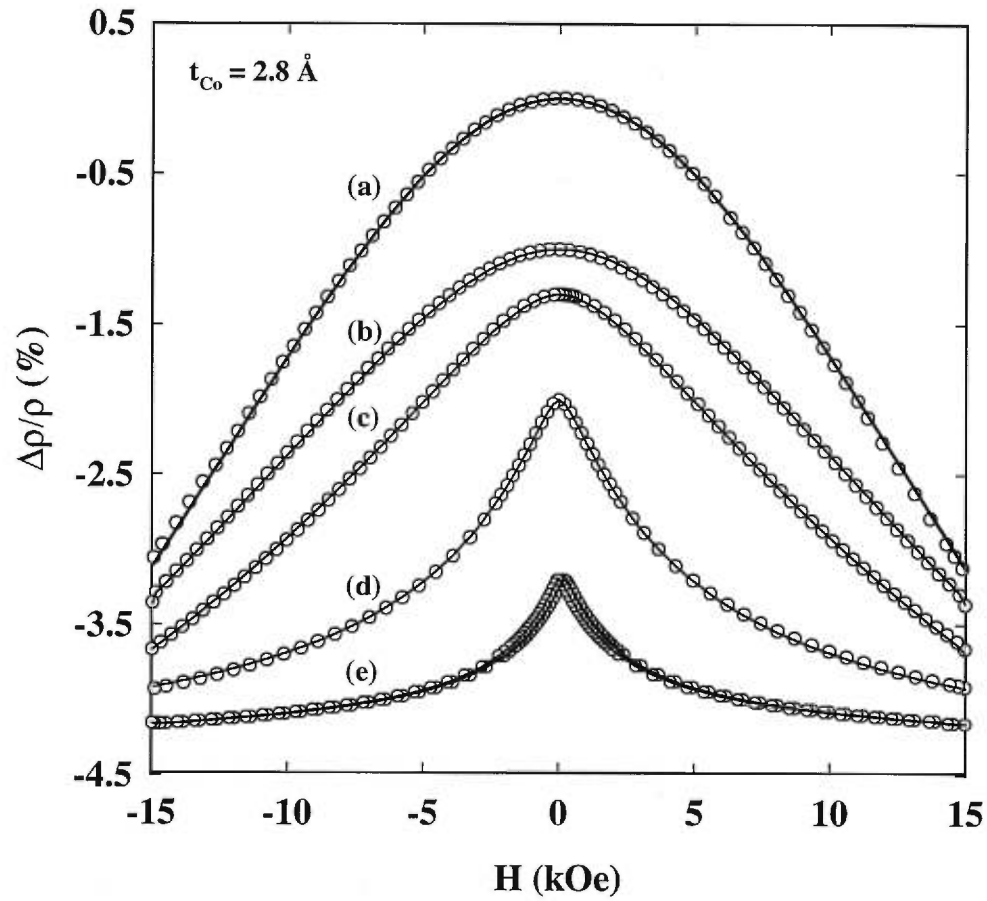
**Figure 7:** (a) Resistivity, at 300 K, versus the ion dose for samples with  $t_{\text{Co}} = 1.2 \text{ \AA}$ ,  $4.4 \text{ \AA}$ ,  $6.0 \text{ \AA}$  and  $8.3 \text{ \AA}$ .



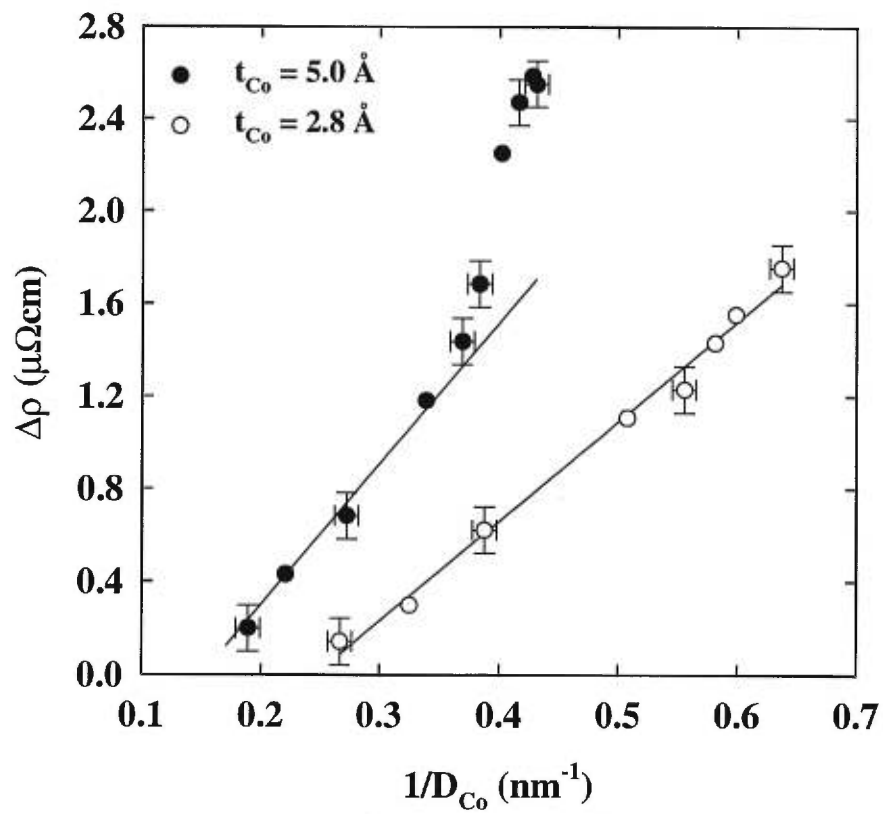
**Figure 7:** (b) Resistivity change ( $\rho(15 \text{ kOe}) - \rho(0)$ ) at 300 K versus the ion dose for samples with  $t_{\text{Co}} = 1.2 \text{ \AA}$ ,  $4.4 \text{ \AA}$ ,  $6.0 \text{ \AA}$  and  $8.3 \text{ \AA}$ .



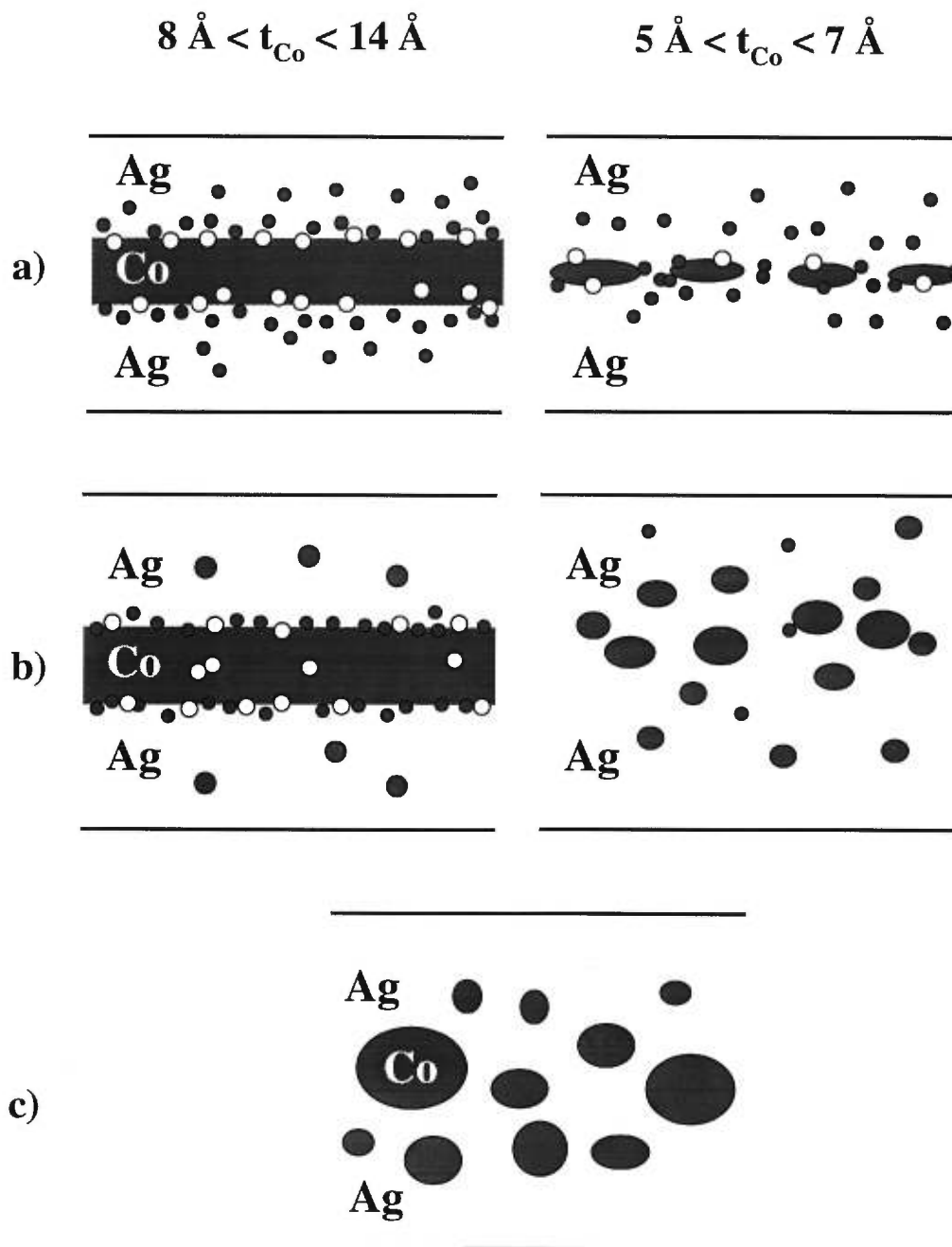
**Figure 7:** (c) Magnetoconductivity at 300 K versus the ion dose for samples with  $t_{\text{Co}} = 1.2 \text{ \AA}$ ,  $4.4 \text{ \AA}$ ,  $6.0 \text{ \AA}$  and  $8.3 \text{ \AA}$ .



**Figure 8:** Field dependence of the transverse magnetoresistance at 300 K for the  $t_{\text{Co}} = 2.8 \text{ \AA}$  multilayer at the following ion doses: (a) as-deposited, (b)  $5 \times 10^{14} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ , (c)  $3 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ , (d)  $1 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ , (e)  $5 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ . Solid lines are fits to the data using Eq. (2).



**Figure 9:** Maximum change of the fitted resistivity ( $\Delta\rho = \alpha_0$ ) for samples  $t_{\text{Co}} = 2.8 \text{ \AA}$  and  $5.0 \text{ \AA}$  as a function of the inverse mean particle radius. The solid line is a linear fit to the data.



**Figure 10:** Schematic representation for the structural evolution upon irradiation: (a) as-deposited, (b)  $< 1 \times 10^{15} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ , (c)  $> 1 \times 10^{16} \text{ Si}^+/\text{cm}^2$ .

## Conclusions

Le premier sujet d'étude abordé dans cette thèse concerne l'évolution des structures en multicouches ferromagnétique/ferromagnétique dont les éléments sont facilement miscibles. Nous avons réalisé une analyse quantitative des interfaces des multicouches Ni/Fe en combinant les mesures de réflectivité de rayons X aux observations de microscopie électronique à transmission. C'est ainsi que nous avons pu déterminer les effets de l'irradiation ionique, de la température du substrat, et du recuit sur la composition, la structure et l'étendue des interfaces Fe/Ni.

Nous avons entrepris une première étude sur des multicouches déposées à la température ambiante pour tester la structure, l'étendue des interfaces, ainsi que les propriétés magnétiques et de transport. Les résultats montrent l'apparition des axes d'aimantation facile dans le plan des couches ainsi qu'une diminution de la rémanence et de la coercivité par rapport aux films de Ni purs et Fe purs. La dépendance de la résistivité en fonction des épaisseurs des couches a été analysée à l'aide d'un modèle semi-classique. Pour évaluer l'AMR dans les multicouches, nous avons utilisé l'hypothèse supplémentaire de Ricks, qui suggère que l'effet de diffusion anisotrope des électrons peut être décrit d'une manière phénoménologique en considérant un libre parcours moyen anisotrope [Ref. 10, chapitre 3]. Les résultats montrent que la contribution dominante à l'AMR provient de la diffusion à l'intérieur des couches de Ni, et n'excluent pas cependant une possible contribution de l'interface à l'AMR.

Suite à ces résultats préliminaires, et pour approfondir notre étude, nous avons utilisé des modalités différentes afin d'induire des changements dans la structure cristalline des couches et aux interfaces: *i*) variation de la température du substrat pendant le dépôt, *ii*) irradiation ionique à basse température.

### *i) l'influence de la température du substrat*

Nos résultats, obtenus sur une série de multicouches Ni/Fe déposées à des températures du substrat allant de 20° C à 300° C, montrent que la texture des films change graduellement de fcc (111) pour les films déposés à 20° C vers une texture prédominante fcc (200) à 200° C. Une texture polycristalline fcc est observée pour les



films déposés à des températures supérieures à 200° C. Les mesures de réflectivité montrent qu'un processus d'intermixage progressif à l'interface Ni/Fe accompagne cette évolution de la structure cristalline. La résistivité et la coercivité ont une variation non monotone due à une compétition entre la croissance des grains et l'intermixage à l'interface.

*ii) irradiation avec faisceaux d'ions*

Les principaux résultats de cette étude ont d'abord mis en évidence un intermixage progressif aux interfaces Ni/Fe dont le taux est proportionnel à la dose d'irradiation, ce qui est en accord avec les prévisions des modèles balistiques. Nous avons réussi ensuite à corrélérer l'évolution structurale des interfaces avec l'évolution des propriétés magnétiques et de transport à partir des mesures de résistivité, de magnétorésistance et des mesures d'aimantation. Nous avons trouvé que la structure des multicouches, initialement périodique et très bien définie avec des interfaces très abruptes, évolue graduellement vers un alliage avec une très faible modulation de la densité électronique. Cette évolution peut expliquer la forte diminution de la coercivité, l'augmentation de la résistivité électrique et sa sensibilité en champ.

Par ailleurs, une forte augmentation de la taille des grains, latérale et perpendiculaire, ainsi qu'une évolution des interfaces externes *substrat/film* et *film/air*, ont été mises en évidence, et confirmées par des expériences sur un système plus simple, constitué d'une bicouche Ni/Fe. Nous avons notamment, par la diffraction de rayons X et les observations TEM en vues plane et transverse, montré, suite à l'irradiation à haute dose, la formation de couches d'oxyde NiO près du substrat, et de Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> près de la surface du film. Les mécanismes d'aimantation s'en trouvent fortement influencés. Il faut mentionner, entre autres, l'apparition d'une anisotropie magnétique uni-directionnelle dans le plan du film. Nous avons pu attribuer cela à un effet de polarisation magnétique dû à l'interaction d'échange à l'interface entre la couche antiferromagnétique de NiO et la couche de Ni.

*Le deuxième sujet d'étude* porte également sur les effets de l'irradiation ionique, *mais* sur des nanostructures (granulaires, multicouches hybrides et multicouches), *composées d'éléments non-miscibles* à base de Co et de l'Ag. Nous avons alors étudié,

et pour la première fois, la nature des changements structuraux induits dans ces matériaux à magnétorésistance géante par l'irradiation ionique à basse température avec des ions  $\text{Si}^+$  ayant une énergie de 1 MeV. Pour couvrir une plus large gamme de comportements magnétiques, nous avons préparé une série entière d'échantillons correspondant à des épaisseurs de Co variant de 2 Å à 15 Å. La caractérisation structurale et magnétique des échantillons tel que déposés montre que les multicouches forment *trois groupes* distincts en fonction de l'épaisseur de la «couche» de Co. Pour des épaisseurs de Co ( $t_{\text{Co}}$ ) inférieures à 4 Å, le comportement est spécifique aux *systèmes granulaires*, tandis que pour  $t_{\text{Co}}$  plus grand que 8 Å, les *couches* de Co sont *continues* et les moments sont alignés par un couplage ferromagnétique. Pour des épaisseurs  $t_{\text{Co}}$  intermédiaires, il y a une région de transition où les couches magnétiques sont discontinues (*multicouches hybrides*).

Tout d'abord, nous avons entrepris une étude approfondie sur les effets de l'irradiation sur une multicouche hybride ( $t_{\text{Co}} = 5 \text{ \AA}$ ) dont la magnétorésistance à la température de la pièce, alors obtenue, est maximale ( $\sim 12 \%$ ). Nous avons trouvé une évolution d'un état initial où le Co, initialement dispersé dans la matrice d'Ag, est progressivement aggloméré dans des particules de plus en plus grandes. Cette transformation structurale, induite par l'interaction avec les ions de  $\text{Si}^+$  incidents, a comme conséquence l'évolution d'un état initial superparamagnétique, présentant un rapport GMR de  $\sim 12 \%$ , vers un état final caractérisé par un comportement prédominant ferromagnétique, caractéristique aux grandes particules. La magnétorésistance devient alors très faible ( $\sim 1.5 \%$ ).

Ensuite, nous avons montré que l'irradiation produit une ségrégation progressive des atomes de Co pour les échantillons initialement granulaires, tandis que les multicouches avec des couches de Co continues, perdent leur structure périodique et évoluent vers une structure granulaire.

Des modèles phénoménologiques ont été utilisés pour interpréter les résultats de magnétorésistance ainsi que les courbes d'aimantation. Dans ces modèles, la microstructure des échantillons est prise en compte en considérant une distribution réaliste (*log-normale*) pour la taille des grains magnétiques ainsi que des fonctions de Langevin pour décrire leur comportement magnétique. Ces modèles nous ont permis

d'estimer, par des moyens simples, les évolutions dans la microstructure suite à l'irradiation et de la comparer avec les résultats obtenus par des mesures de diffraction X ou des mesures de relaxation superparamagnétique. Nous avons montré que la taille des particules, ainsi que la largeur de la distribution de taille, augmentent suite à l'irradiation; ce qui explique la forte décroissance de la magnétorésistance.

L'évolution structurale ainsi que les effets qu'elle engendre sur les comportements magnétiques des multicouches Co/Ag, sont une conséquence de la *chaleur de formation positive*, qui agit comme une *force motrice* pour la ségrégation des deux espèces à l'intérieur des cascades de collisions produits par les ions incidents. La corrélation trouvée entre la magnétorésistance et la taille des particules de Co, *montre l'importance de la diffusion dépendante de spin à l'interface* entre les particules de Co et la matrice d'Ag.

Bien que nous ayons mis en évidence plusieurs évolutions intéressantes des propriétés structurales, ainsi que leurs effets sur le comportement magnétique et de transport dans les multicouches Ni/Fe, il reste un certain nombre de questions à clarifier et qui nous suggèrent de nouveaux projets d'études: i) nous avons trouvé une forte dépendance de la sensibilité AMR et des propriétés magnétiques, en fonction de la nature de l'élément (Ni ou Fe) de la couche tampon. Une étude plus approfondie de l'influence de cette interface sur la structure en domaines reste encore à explorer. ii) Comme des résultats préliminaires de TEM nous ont déjà confirmé l'existence d'une évolution micro-structurale très différente entre les multicouches Ni/Fe, et ce, dépendamment de la nature du traitement utilisé, une caractérisation quantitative par microscopie devient nécessaire.

Il sera par ailleurs intéressant de pouvoir poursuivre l'étude de l'irradiation ionique sur les structures à GMR telle que Ag/NiFe, dont l'élément magnétique NiFe possède une anisotropie beaucoup moins élevée. Ce système est plus prometteur en terme de sensibilité magnétique. De plus, une étude sur la dépendance de la masse et de l'énergie des ions utilisés lors de l'irradiation est aussi certainement très intéressante pour pouvoir modifier et optimiser les effets de l'irradiation sur la microstructure.

## Annexe

### Liste de Publications

1. T. Veres, P. Desjardins, R.W. Cochrane, M. Cai, M. Rouabhi, R. Abdouche and M. Sutton.  
*Structural modifications induced by 1 MeV Si<sup>+</sup> ion-beam irradiation in Ni/Fe bilayers and their effects on the anisotropic magnetoresistance and magnetic properties*, (A soumettre à Thin Solid Films).
2. T. Veres, M. Cai, R. W. Cochrane, M. Rouabhi, M. Sutton and P. Desjardins.  
*Ion-beam irradiation mixing of the Ni/Fe interface and their effect on the transport and magnetic properties in Ni/Fe multilayers*.  
(Soumis à Thin Solid Films, septembre 1999).
3. T. Veres, M. Cai, R.W. Cochrane, M. Roubhi, F.Schiettekatte, S. Roorda, S. Germain.  
*Ion-beam modification of Co/Ag multilayers II: The variation of the structural and magnetic properties with Co layer thickness*.  
(Soumis à Journal of Applied Physics, juillet 1999).
4. T. Veres, M. Cai, R.W. Cochrane and S. Roorda.  
*Ion-beam modification of Co/Ag multilayers I: Structural and magnetic properties of films with very thin Co layers*.  
(Soumis à Journal of Applied Physics, juin 1999).
5. S. Roorda, F. Schiettekatte, M. Cai, T. Veres, and A. Tchebotareva.  
*MeV ion implantation for modification of electronic, optical, and magnetic materials*, *Proceedings of SPIE Vol. 3413*, 165 (1998).
6. M. Cai, T. Veres, R.W. Cochrane, S. Roorda, R.W. Cochrane, R. Abdouche, M. Sutton.  
*Ion beam mixing and thermal demixing of Co/Cu multilayers*, *Mat. Res. Soc. Symp. Proc. Vol. 504*, 197 (1998).
7. T. Veres, M. Cai, R. Morel, and R.W. Cochrane.  
*Deposition-temperature dependence of texture and magnetic properties of sputtered Ni/Fe multilayers*, *J. Appl. Phys.* **81** (8), 15 April 1999.
8. M. Cai, T. Veres, R. Morel, and R.W. Cochrane.  
*MeV ion irradiation of Co/Cu multilayers*, *J. Appl. Phys.* **81** (8), 6289, 15 April 1997.
9. T. Veres, M. Cai, R. Morel, and R.W. Cochrane.  
*Magnetic and manetotransport properties of Ni/Fe multilayers*, *J. Appl. Phys.* **79** (8), 15 April 1996.

- 10.** I. Grosu, T. Veres, M. Crisan.  
*Critical temperature of a strongly disordered two-dimensional superconductor, J. Superconductivity, vol. 8, Iss. 1, 109-112 (1995).*
- 11.** I. Grosu, T. Veres and M. Crisan.  
*Decrease in critical temperature due to disorder and magnetic correlations in two-dimensional superconductors, Phys. Rev. B, 50, vol 13 , 9404 (1994).*
- 12.** M. Crisan and T. Veres.  
*Physica C, Theory of nuclear magnetic relaxation in the doped high critical temperature superconductors; a marginal Fermi-liquid approach, Physica C, vol. 235-240, 2319-20 (1994).*
- 13.** E. Burzo, C. Gusa, B. Kevorkian and T. Veres.  
*Magnetic Behaviour of R<sub>2</sub>Co<sub>7</sub>B<sub>3</sub> Compounds (R=Ho, Er, Tm), Journal of Alloys and Compounds, 209, L33 (1994).*
- 14.** I. Iliescu, T. Bratu, I. Grecu, T. Veres and D. Maniu.  
*Molecular Relaxation in Dimethylsilane from Raman Band Shape Studies, Journal of Raman Spectroscopy, 25, Iss. 6, 403-407 (1994).*
- 15.** C. Popoviciu, T. Veres, M. Crisan.  
*Marginal Fermi Liquid Behaviour for a Two-Dimensional Electronic System, J. Superconductivity, 6, 261 (1993).*
- 16.** P. Morin, R.M. Galera, M. Amara, T. Veres, P. Bulet.  
*Incommensurate Antiferromagnetic Structures in NdIn<sub>3</sub>, J.Magn.Magn. Mater, 130, (1993).*
- 17.** T. Veres, M. Crisan.  
*Influence of the Antiferromagnetic Correlations on the Critical Temperature of the High Temperature Superconductors, Modern Physics Letters B, Vol.5, No. 17, 1161-1165,(1991).*
- 18.** M. Crisan, T. Veres.  
*Spin Wave Spectrum for Antiferromagnetic Superconductor, Journal of Low Temperature Physics, Vol. 65 , Nov 5/6 (1986).*
- 19.** M. Crisan, T. Veres.  
*Microscopic Theory of the Lower Critical Field of Superconducting Alloys, Studia Univ. Babeş-Bolyai, Physica, XXXI, 1, (1986).*

## Participation à des conférences nationales et internationales

1. M. Cai, T. Veres, R.W. Cochrane, S. Roorda, R.W. Cochrane, R. Abdouche, M. Sutton.  
*Ion beam mixing and thermal demixing of Co/Cu multilayers*. Fall 1997 Meeting November 29 - December 3, 1997 Boston, Massachusetts (*présentation orale*).
2. T. Veres, M. Cai, R. Morel, and R.W. Cochrane.  
*Deposition-temperature dependence of texture and magnetic properties of sputtered Ni/Fe multilayers*, 41<sup>th</sup> Annual Conference Magnetism and Magnetic Materials, November 12-15, 1996, Atlanta, Georgia, USA (poster).
3. M. Cai, T. Veres, R. Morel, and R.W. Cochrane.  
*MeV ion irradiation of Co/Cu multilayers*, 41<sup>th</sup> Annual Conference Magnetism and Magnetic Materials, November 12-15, 1996, Atlanta, Georgia, USA (*poster*).
4. T. Veres, R.W. Cochrane, M. Cai, and R. Morel.  
*Magneto-resistance of Ni/Fe Multilayers*, 1995 CAP Annual Congress, June 16-19, Ottawa, Ontario, CANADA. (*présentation orale*)
5. T. Veres, M. Cai, R. Morel, and R.W. Cochrane.  
*Magnetic and magnetotransport properties of Ni/Fe multilayers*, 40th Annual Conference Magnetism and Magnetic Materials, November 6-9, 1995, Philadelphia, Pennsylvania, USA (*poster*).
6. T. Veres, R.W. Cochrane, , M. Cai and R. Morel.  
*Anisotropic Magneto-resistance and Magnetic Properties in Ni/Fe Multilayers*, 1995 CAP Annual Congress, June 11-16, Quebec City, Quebec, CANADA (*présentation orale*).
7. S. Astilean, T. Veres, I. Bratu, T. Iliescu.  
*Raman Band Shape of 2 Fluor-toluene*, XX European Congress on Molecular Spectroscopy, 25-30 aout 1991, Zagreb, Iugoslavia (*poster*).
8. T. Veres, I. Grosu and M. Crisan.  
*Antiferromagnetic Correlations and the Critical Temperature of the High Temperature Superconductors*, National Conference of Physics ICEFIZ, October 1991, Brasov, Romania (*présentation orale*).
9. I. Grosu, T. Veres and M. Crisan.  
*Renormalisation of the electronic mass due to the interaction with spin fluctuations*, National Conference of Physics ICEFIZ October 1991, Brasov, Romania (*poster*).