



Doctoral Thesis

## Structural characterisations of sputtered metallic multilayers X-ray and neutron scattering studies

**Author(s):**

Tixier, Sébastien

**Publication Date:**

1998

**Permanent Link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-001963960> →

**Rights / License:**

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

# **Structural Characterisations of Sputtered Metallic Multilayers : X-ray and Neutron Scattering Studies**

Dissertation submitted to the  
**Swiss Federal Institute of Technology Zürich**  
for the degree of  
Doctor of Natural Sciences



CaE

presented by  
Sébastien Tixier  
Dipl. Phys. (University P. Sabatier, Toulouse)  
born April 10, 1971  
French citizen

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. A. Furrer, examiner  
Prof. Dr. G. Kostorz, co-examiner  
Prof. Dr. P. Buffat, co-examiner  
Dr. P. Böni, co-examiner

1998



00100001616892

## Abstract

Structural characterisations of the metallic multilayers Ni<sub>3</sub>Al/Ni, Ce/Fe and Ce/FeCoV were performed using different experimental techniques. X-ray scattering was combined with x-ray photoelectron spectroscopy (XPS) and atomic force microscopy (AFM) in order to characterise the structural properties, chemical profile and surface topology of the multilayers, respectively.

Coherence length, grain size, mosaic spread, lattice strain and lattice distortion were measured with a good accuracy using x-ray diffraction techniques such as XRD, GID and AXRD. The Born approximation was applied and very satisfactory fits to the data were obtained. X-ray specular reflectivity (SXR), non-specular x-ray reflectivity (NSXR) and out-of-plane diffuse x-ray reflectivity (ODXR) gave unique information on the roughness profiles at the interfaces of the multilayers. A more sophisticated theory, the distorted wave Born approximation (DWBA), has been successfully employed to fit the diffuse scattering spectra and in particular their dynamical features.

The thin films produced at room temperature with our magnetron sputtering facility are found to have common features. First of all, the growth is textured in the [111] direction for fcc (Ni, Ni<sub>3</sub>Al, Ce) and in the [110] direction for bcc materials (Fe, FeCoV). In both cases, the closed-packed planes tend to grow parallel to the substrate surface. Secondly, the interface width in samples grown at low Ar pressure is limited to 1-2 atomic layers. Interdiffusion is negligible since deposition is performed at room temperature and impurities at the interfaces act as a diffusion barrier. The lateral correlation length of the roughness is relatively small (200-300 Å) in our multilayers and compares with values usually obtained for amorphous films. Finally, the roughness profiles are partially correlated from one interface to the next, independently of the sputtering conditions (base and Ar pressures). The vertical correlation length decreases slowly with decreasing lateral length scale of the roughness which suggests that the relaxation mechanism in the growth process is rather ineffective. The growth of the Ni<sub>3</sub>Al/Ni multilayers agrees with the local growth model of Kardar-Parisi-Zhang (KPZ). As our layers are crystalline, it is shown that the samples do not need to be amorphous for local growth models to apply.

Rather high vertical coherence of up to 3.5 times the bilayer thickness  $\Lambda$  is obtained (for  $\Lambda \approx 100 \text{ \AA}$ ) in the  $\text{Ni}_3\text{Al}/\text{Ni}$  multilayers. This is the result of, first, a highly textured growth of both materials that leads to multilayers strongly layered in the growth direction and, second, of a rather constant bilayer thickness over the whole multilayer stack. In the  $\text{Ce}/\text{Fe}$  and  $\text{Ce}/\text{FeCoV}$  multilayers the vertical coherence is limited to the individual layer thickness. The presence of interfacial disorder (strain, defects, impurities) is the consequence of the large lattice mismatch between Ce and Fe or FeCoV and of the reactive nature of the layer constituents. In contrast to Ce and Fe that show crystalline growth down to about  $10 \text{ \AA}$ , FeCoV is already amorphous for layer thicknesses below  $20 \text{ \AA}$ .

Hardness of the  $\text{Ni}_3\text{Al}/\text{Ni}$  multilayers was studied using the nanoindentation technique. A peak in hardness corresponding to an 88% increase when compared to the hardness of bulk  $\text{Ni}_3\text{Al}$  is obtained at a bilayer thickness  $\Lambda_{\text{max}} \approx 100 \text{ \AA}$ . Above  $\Lambda_{\text{max}}$ , the decrease in hardness with  $\Lambda$  is compatible with the Hall-Petch equation. The maximum hardness is obtained at a bilayer thickness  $\Lambda_{\text{max}}$  which corresponds to a compromise between a small  $\Lambda$  and fully dense and textured layers.

Magnetic properties of the  $\text{Ce}/\text{FeCoV}$  multilayers were studied by means of polarised neutron reflectometry and Mössbauer spectroscopy. The average FeCoV moment is found to decrease with decreasing bilayer thickness and various possible causes for this reduction are given. The thin multilayers with an individual thickness for FeCoV below  $15 \text{ \AA}$  display perpendicular magnetic anisotropy (PMA) at room temperature. The questions of the importance of the crystalline-to-amorphous transition and of the magnetoelastic energy in the PMA are addressed.

## Résumé

Des techniques de diffusion des rayons X, la spectroscopie photon-électron (XPS) et la microscopie à force atomique (AFM) ont été mises en œuvre afin de caractériser les propriétés structurales, le profil chimique et la topologie de surface des multicouches métalliques Ni<sub>3</sub>Al/Ni, Ce/Fe et Ce/FeCoV.

La longueur de cohérence, la taille et la distribution mosaïque des grains ainsi que les distorsions du réseau cristallin ont été caractérisés avec une grande précision à l'aide de techniques de diffraction des rayons X comme XRD, GID et AXRD. Les courbes expérimentales ont été remarquablement reproduites à l'aide de la théorie de diffraction dans l'approximation de Born. La réflexion spéculaire (SXR), la réflexion non spéculaire (NSXR) ainsi que la réflexion diffuse non coplanaire (ODXR) des rayons X ont permis d'obtenir des informations uniques sur le profil de rugosité de la surface et des interfaces des multicouches. Une théorie plus sophistiquée, l'approximation de Born des ondes distordues (DWBA) a été mise en œuvre afin de reproduire les mesures de diffusion diffuse et en particulier les effets dynamiques présents sur les spectres.

Les couches minces fabriquées à la température ambiante avec notre système de déposition par pulvérisation ont montré un certain nombre de caractéristiques communes. En premier lieu, les couches possèdent une forte texture dans la direction [111] pour les matériaux cubiques à faces centrées (Ni, Ni<sub>3</sub>Al, Ce) et dans la direction [110] pour les matériaux cubiques centrés (Fe, FeCoV). Dans les deux cas, les plans les plus denses sont parallèles à la surface du substrat. Deuxièmement, l'extension des interfaces dans les échantillons fabriqués à faible pression d'Ar se limite à une ou deux couches atomiques. La diffusion entre les couches est négligeable car la déposition se fait à la température ambiante et les impuretés présentes aux interfaces tiennent lieu de barrière de diffusion. La longueur de corrélation latérale de la rugosité est relativement petite (200-300 Å) dans nos multicouches et est comparable aux valeurs typiquement obtenues avec des multicouches amorphes. Finalement, Les profils de rugosité sont partiellement corrélés d'une interface à l'autre, indépendamment des paramètres de déposition (pressions de base et d'Ar). La longueur de corrélation verticale décroît lentement avec la diminution de l'échelle latérale de la rugosité ce qui indique que le mécanisme de relaxation dans le processus de croissance est relativement inefficace. La

croissance des multicouches Ni<sub>3</sub>Al/Ni suit les prévisions du modèle de croissance locale de Kardar-Parisi-Zhang (KPZ). Nos multicouches étant cristallines, ce travail démontre que les modèles de croissance locale ne s'appliquent pas uniquement aux couches amorphes.

Pour les multicouches Ni<sub>3</sub>Al/Ni, la longueur de cohérence cristalline atteint 3.5 fois la période  $\Lambda$  (pour  $\Lambda \approx 100$  Å). Cela est le résultat de la forte texture des couches ainsi que de la constance de leur épaisseur dans tout l'échantillon. Pour les multicouches Ce/Fe et Ce/FeCoV, la longueur de cohérence cristalline se limite à l'épaisseur d'une couche. La grande différence de paramètre de maille entre Ce et Fe ou FeCoV ainsi que la nature réactive des matériaux sont à l'origine de la présence de désordre aux interfaces (déplacement atomiques, défauts, impuretés). FeCoV s'amorphise pour des couches d'épaisseur inférieure à 20 Å alors que pour Ce et Fe les couches sont cristallines jusqu'à environ 10 Å.

La dureté des multicouches Ni<sub>3</sub>Al/Ni a été étudiée grâce à la technique de nano-indentation. Un maximum de dureté correspondant à une augmentation de 88% comparé à la dureté de Ni<sub>3</sub>Al a été observé dans les multicouches de période  $\Lambda_{\max} \approx 100$  Å. Au dessus de  $\Lambda_{\max}$  la décroissance de la dureté est compatible avec l'équation empirique de Hall-Petch. Le maximum de dureté est obtenu pour une épaisseur de couche qui correspond à un compromis entre une petite période et des couches denses présentant une forte texture.

Les propriétés magnétiques des multicouches Ce/FeCoV ont été étudiées par réflexion de neutrons polarisés et à l'aide de la spectroscopie Mössbauer. Il est montré que le moment magnétique moyen de FeCoV décroît avec la diminution de l'épaisseur des couches. Différentes causes possibles de cet effet sont données. Les multicouches d'épaisseur de couches pour FeCoV inférieure à 15 Å présentent une anisotropie magnétique perpendiculaire (PMA) à température ambiante. Les questions de l'importance pour la PMA de la transition cristalline-amorphe ainsi que de l'énergie magnétocristalline sont soulevées.