Dichroïsme magnétique en photoémission de couches minces de Fe sur Pd(100)

X. Le Cann, K. Hricovini, B. Carrière, C. Boeglin

► To cite this version:

X. Le Cann, K. Hricovini, B. Carrière, C. Boeglin. Dichroïsme magnétique en photoémission de couches minces de Fe sur Pd(100). Journal de Physique IV Proceedings, 1996, 06 (C4), pp.C4-537-C4-544. 10.1051/jp4:1996450 . jpa-00254333

HAL Id: jpa-00254333

<https://hal.science/jpa-00254333>

Submitted on 1 Jan 1996

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

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

Dichroïsme magnétique en photoémission de couches minces de Fe sur Pd(100)

X. Le Cann, K. Hricovini*, B. Carrière et C. Boeglin

Institut de Physique et Chimie des Matériaux de Strasbourg, Groupe Surfaces Interfaces, 23 rue du Loess, BP. 20 CR, 67037 Strasbourg, France

** LURE, Université Paris-Sud, 91405 Orsay, France*

Résumé: L'étude des propriétés magnétiques de dépôts ultraminces de Fe/Pd(100) a été menée au moyen de techniques de dichroïsme magnétique dans le domaine des rayons X en absorption (MCXD) et en photoémission de niveau de coeur pour une lumière polarisée circulairement (MCDAD) ou linéairement (MLDAD). L'analyse des données MCXD sur les seuils d'absorption $L_{2,3}$ du fer a permis de mettre en évidence un ordre ferromagnétique dans les couches de fer à partir de 1,5 monocouche (ML) ainsi qu'une importante anisotropie dans le plan de ces films. L'application des règles de somme sur les spectres de dichroïsme pour des épaisseurs de fer variables a montré un net accroissement du moment magnétique total pour les couches ultraminces lié à la forte augmentation du moment orbital. Les résultats de l'étude en photoémission en polarisation linéaire et circulaire réalisée sur les niveaux Fe3p et Fe2p pourrait être expliqués par le rôle de l'hybridation des bandes 3d du Fe et 4d du Pd aux interfaces Fe-Pd.

Abstract: The study of the magnetic properties of ultrathin deposits of Fe/Pd(100) has been performed by means of techniques of magnetic dichroism in the X-rays field in absorption (MCXD) and in core level photoemission with circularly (MCD) and linearly (MLD) polarized light. The MCXD data analysis on the Fe $L_{2,3}$ absorption edges has put in evidence the ferromagnetic order of the Fe layers starting from 1.5 monolayers (ML) and the strong in plane anisotropy of these films. The application of the sum rules on the dichroic spectra for various Fe thicknesses has shown a clear increasing of the total magnetic moment for ultrathin layers related to a huge enhancement of their orbital moment. The results of the study in photoemission with circularly and linearly polarized light performed on the Fe3p and Fe2p levels could be explained by the role of the hybridization of 3d Fe and 4d Pd bands at the Fe-Pd interfaces.

1. INTRODUCTION

Le développement du dichroïsme magnétique dans le domaine des rayons X tant au niveau expérimental que théorique au cours de ces dix dernières années a montré que cette technique se révélait être une sonde puissante du magnétisme. La sélectivité au niveau des atomes et des transitions considérés en absorption, en fluorescence et en photoémission de niveaux de coeur rend ces méthodes particulièrement adaptées à l'étude de systèmes en couches minces et d'alliages. De plus, en absorption, le développement récent de règles de sommes magnéto-optiques [1,2] a permis d'accéder de manière quantitative aux contributions individuelles des moments orbital et de spin au moment total. La compréhension des propriétés magnétiques particulières des multicouches passe par l'étude détaillée des entités élémentaires que sont les couches minces ou les sandwiches. L'approche expérimentale apparaît donc essentielle pour déterminer les moments magnétiques afin de comprendre les propriétés magnétiques macroscopiques des multicouches telles que l'anisotropie magnétique ou la magnétorésistance.

Dans cette étude, les techniques de dichroïsme magnétique ont été mises à profit pour l'étude des propriétés magnétiques de couches ultraminces de Fe épitaxiées sur un substrat de Pd. Ces dépôts d'épaisseur de 1 à 40 ML ont été étudiés par dichroïsme en absorption aux seuils $L_{2,3}$ du fer ainsi qu'en photoémission de coeur sur les niveaux Fe2p et Fe3p. Contrairement au MCXD en absorption, la photoémission ne permet pas d'accéder à des

valeurs quantitatives telle que la mesure absolue du moment magnétique. Elle présente néanmoins l'avantage d'être beaucoup plus sensible à la surface et d'être une sonde mieux adaptée à l'étude du magnétisme de surface et d'interface pour les couches minces. En effet, en raison du faible libre parcours moyen des photoélectrons que l'on peut minimiser en ajustant l'énergie incidente, les photoélectrons collectés en photoémission proviennent des toutes premières couches de l'échantillon (2-3 ML). Comparativement, les données en absorption intègrent sur une épaisseur d'une vingtaine d'Angströms.

2. CROISSANCE ET STRUCTURE DES FILMS DE Fe/Pd(100)

Deux principales études antérieures sur la croissance et la structure de dépôts minces de Fe/Pd(100) peuvent être mentionnées. Liu & Bader [3] ont rapporté une croissance couche par couche mise en évidence par une décroissance exponentielle du signal Auger de la raie MNN du Pd. Une étude approfondie de la structure des films de Fe à partir des diagrammes de diffraction d'électrons lents (DEL) a été menée par Quinn & al [4]. Dans leur analyse, le film de fer présente une structure cubique centrée tétraгонаlement distordue (bct) aux faibles épaisseurs pour relaxer vers une structure bcc vers 40 à 50 ML. Contrairement aux travaux de Liu & Bader, ils ont mis en évidence la formation d'îlots dès les premiers stades de la croissance.

Nous avons étudié la croissance du Fe/Pd(100) à température ambiante par spectroscopie Auger (AES). La structure des films a été étudiée à partir des diagrammes de diffraction et des courbes I(V). Ces dernières courbes traduisent l'évolution de l'intensité de taches de diffraction en fonction de l'énergie des électrons incidents et permettent d'estimer la valeur de la distance interplan moyenne des premières couches de surface. L'étude comparée des raies de transition Auger MNN du Pd à 330eV d'énergie cinétique et LMM du Fe à 651eV d'énergie cinétique enregistrées au cours de l'évaporation a montré clairement que la croissance du Fe s'écarte du modèle couche par couche. L'absence d'interdiffusion à température ambiante entre le Fe et le Pd a été vérifiée en XPS. Le type de croissance initiale ainsi mis en évidence par nos cinétiques de croissance correspond plutôt au mode de croissance en îlots. Par ailleurs, sur les diagrammes de DEL, les taches de diffraction présentent un aspect diffus caractéristique du désordre dans les couches dès les premières couches. La qualité du diagramme s'améliore pour des épaisseurs plus importantes sans toutefois atteindre la qualité du diagramme DEL d'une surface de Fe(100) bcc monocristallin. De plus, l'analyse des résultats des courbes I(V) a montré pour 10 ML de Fe une extension d'environ 5% du paramètre interplan du Fe induit par le désaccord entre le paramètre du Pd fcc et celui du Fe bcc [5] de 4.2 %.

3. DICHROISME MAGNETIQUE EN ABSORPTION

3.1 Dispositif expérimental

Les expériences de dichroïsme magnétique ont été réalisées sur l'anneau synchrotron Super-ACO du LURE sur la ligne SU23 bénéficiant d'un important taux de polarisation circulaire produit par le Wiggler Asymétrique Hybride. Le monochromateur constitué de 4 réseaux plans interchangeables permet de balayer une gamme d'énergie de photons de 100 à 1200eV.

Les échantillons analysés sont préparés in-situ dans une chambre UHV d'évaporation. Le substrat de Pd(100) est nettoyé par des cycles de bombardements d'ions Ar à 350°C et de recuits à 700°C. La qualité de la surface est contrôlée par DEL et les épaisseurs de fer déposées sont étalonnées au moyen de microbalances à quartz et vérifiées par AES.

Les films minces sont aimantés dans le plan suivant la direction de facile aimantation [010] à l'aide d'un aimant en fer à cheval qui fournit un champ magnétique d'environ 300 Oe. En absorption comme en photoémission, la paire de spectres I(+M) et I(-M) nécessaire à la mesure du dichroïsme magnétique est obtenue par inversion de la direction du champ magnétique pour une hélicité de la lumière fixée. Les spectres d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ du Fe sont mesurés à température ambiante en rémanence. La méthode de détection du signal d'absorption est celle du rendement total d'électrons. Les courants mesurés sont normalisés par rapport à un courant référence mesuré sur une grille d'or installée devant l'échantillon. Le taux de polarisation circulaire est estimé à $65\% \pm 5\%$.

3.2 Mesures d'absorption

Les spectres MCXD aux seuils d'absorption $L_{2,3}$ du Fe ont été mesurés sur des dépôts ultraminces de 1 à 40 ML de Fe/Pd(100) [5].

Une première analyse angulaire des données d'absorption a montré clairement que les moments magnétiques possédaient une composante perpendiculaire nulle et a mis en évidence la forte anisotropie dans le plan du système Fe/Pd(100) (Figure 1). De plus, nous n'avons observé aucun effet dichroïque au dessous d'une épaisseur d'environ 1,5 ML de Fe qui correspond à température ambiante à la limite d'ordre ferromagnétique.

Figure 1 : Spectres d'absorption aux seuils $L_{2,3}$ du Fer sur un échantillon de 2 ML Fe/Pd(100) et spectres de dichroïsme I(-M)-I(+M) en polarisation circulaire pour une incidence rasante ($\alpha = 35^\circ$) et normale ($\alpha = 90^\circ$) [fig. 3]

Absorption spectra on the Fe $L_{2,3}$ edges on a 2 ML Fe/Pd(100) sample and dichroic spectra I(-M)-I(+M) with a circularly polarized light for a grazing ($\alpha = 35^\circ$) and normal ($\alpha = 90^\circ$) incidence [Fig.3].

Par ailleurs, nous avons suivi l'évolution du rapport du moment orbital sur le moment de spin avec l'épaisseur de la couche de Fe (Figure 2.). Selon les règles de somme cette quantité peut s'écrire comme $M_{orb}/M_{spin} = 2B / (9A-6B)$ où B représente l'aire totale du spectre de dichroïsme défini comme la différence $I(-M)-I(+M)$ intégrée sur les seuils L_3 et L_2 et A l'aire intégrée sur le seuil L_3 . L'expression de ce rapport est valable dans l'hypothèse où le terme dipolaire magnétique T_Z peut être négligé devant le moment de spin S_z . Toutefois, le terme dipolaire magnétique qui ne peut être parfaitement déterminé ne peut être négligé en dehors d'une symétrie cubique. Les effets de taille dans le cas de nos couches minces nécessitent donc de légères corrections calculées par Wu & Freeman (6) sur la valeur du rapport M_{orb}/M_{spin} . Ce rapport ainsi calculé a montré une forte augmentation d'un facteur 5 pour les couches de 2 à 3 ML en comparaison avec les valeurs calculées pour nos dépôts épais de 40 ML proches de celles du Fe bcc massif (0.043) [6,7].

Figure 2 : Evolution du rapport du moment magnétique orbital sur le moment magnétique de spin (M_{orb}/M_{spin}) et du moment magnétique total en fonction de l'épaisseur de Fe déposée sur le Pd(100).
Evolution of the orbital to spin magnetic moment ratio (M_{orb}/M_{spin}) and the total magnetic moment versus Fe thickness deposited on Pd(100).

La séparation du moment magnétique en ses contributions de spin et orbitale a été obtenue par application de la seconde règle de somme. L'incertitude importante introduite dans les valeurs obtenues de M_{orb} et M_{spin} provient de la difficulté de la mise en oeuvre de cette formule. Néanmoins, nous avons mis en évidence une forte augmentation du moment magnétique orbital de $0.54 \mu_B$ dans les couches minces de fer et une décroissance lente jusqu'à

$0.12 \mu_B$ pour les dépôts épais. La valeur du moment magnétique de spin semble moins affectée et conserve avec l'épaisseur de Fe une valeur proche de celle du Fe massif ($2.2 \mu_B$).

4. DICHROISME MAGNETIQUE CIRCULAIRE ET LINEAIRE EN PHOTOEMISSION DE NIVEAUX DE COEUR (MCD / MLD)

En photoémission, le dichroïsme magnétique circulaire et linéaire (MLD et MCD) fournit des informations sur les propriétés magnétiques locales d'un élément donné. L'effet dichroïque étudié à travers le terme d'asymétrie provient du couplage spin-orbite et de l'énergie d'échange. La photoémission sur les niveaux Fe2p et Fe3p en utilisant respectivement une lumière polarisée circulairement et linéairement a été réalisée sur des couches ultraminces de Fe (2 à 3 ML) et comparée aux résultats obtenus sur des dépôts plus épais (25 à 40 ML) [8]. Dans le cas de l'étude en MCD, la géométrie de l'expérience est la même qu'en MCXD en absorption. Les champs sont appliqués dans le plan d'incidence formé par la direction du faisceau et la normale à l'échantillon. Dans l'étude en MLD, les champs sont appliqués perpendiculairement au plan d'incidence (Figure 3). Les photoélectrons sont détectés suivant la normale au plan des films. L'angle d'incidence du faisceau est fixé à 45° par rapport au plan du film.

Figure 3 : Géométrie expérimentale en absorption et en photoémission pour une lumière polarisée linéairement et circulairement.

Experimental set up in absorption and core level photoemission for a circularly and linearly polarized light.

Les énergies de photons employées sont de 825 eV en MCD sur les niveaux Fe2p et de 200 eV en MLD sur les niveaux Fe3p ce qui assure dans les deux cas un libre parcours moyen de 5 à 6 Å. Le signal magnétique est décrit en photoémission par le terme d'asymétrie défini par la différence normalisée $[I(+M)-I(-M)]/[I(+M)+I(-M)]$.

4.1 Résultats

Les résultats obtenus en photoémission 2p et 3p résumés sur la figure 4 sont en contradiction avec les résultats en MCXD.

Tout d'abord, il apparaît que les valeurs de l'asymétrie normalisée obtenues sur les dépôts les plus épais de 25 et 40 ML sont comparables à celles présentées dans la littérature pour un Fe monocristallin. Nous trouvons en effet des valeurs de l'asymétrie de l'ordre de 10 % sur les niveaux Fe2p [9] et de 17 % sur les niveaux 3p linéaire [10] en lumière polarisée respectivement circulairement et linéairement, dans des conditions expérimentales identiques. Ces résultats sont confirmés en absorption via l'évolution du rapport M_{orb}/M_{spin} .

Les résultats de photoémission sur les dépôts les plus minces (2 à 3 ML) sont quant à eux à priori surprenants par rapport aux résultats en absorption qui montraient sans équivoque une augmentation du moment magnétique total et du moment orbital en particulier pour ces mêmes situations. En effet, les valeurs de l'asymétrie sont fortement réduites à 3.5 % pour 2 ML en MCD sur les niveaux Fe2p et à 3 % pour 3 ML en MLD sur les niveaux Fe3p.

Figure 4: MCD sur les niveaux Fe2p en polarisation circulaire (gauche) et MLD sur les niveaux Fe3p en polarisation linéaire (droite).
MCD on the Fe 2p levels with circularly polarized light (left) & MLD on the Fe 3p levels with linearly polarized light (right).

L'hypothèse d'une contamination de la couche mince qui masquerait le magnétisme du fer est à réfuter puisque les contrôles en DEL et en spectroscopie Auger ont écarté l'éventualité d'une dégradation du film malgré les durées d'accumulation relativement longues (3 heures). De même, un problème d'aimantation de la couche ne permet pas d'expliquer cette diminution car les mêmes champs ont été appliqués en photoémission 2p, 3p et en absorption. Enfin, nous avons utilisé les mêmes dépôts pour les mesures en MCXD, MCD et MLD.

Une explication de cette diminution de l'asymétrie pourrait provenir de l'effet de la tétragonalisation de la couche du fer . La distorsion introduite sur la distance entre les plans du film de fer, alors modifiée par rapport à celle du Fe bcc, entraîne une modification de la densité d'atomes pour une direction d'analyse fixée. La direction de détection des photoélectrons optimisant la valeur de l'asymétrie pour un Fe bcc massif ne correspond plus à ce maximum pour le cas des couches minces. Cette diminution sur la valeur de l'asymétrie pourrait alors en partie s'apparenter à un effet de photodiffraction.

Une deuxième explication pourrait aussi provenir du rôle joué par l'interface dans nos mesures de photoémission plus sensible à la surface. Cette hypothèse est appuyée par les résultats de mesures en photoémission 3p en lumière polarisée linéairement sur un échantillon sandwich de fer constitué de 40 ML de Fe déposées sur le substrat de Pd et recouvertes d'une monocouche de Pd. Dans ce cas, l'asymétrie normalisée diminue de 17% pour le dépôt épais de Fe à 6.5% pour ce même dépôt recouvert de Pd. Le rôle joué par l'interface dans la variation de l'asymétrie pourrait être lié à un effet d'hybridation entre les bandes 3d du Fe et 4d du Pd. De plus, il est reconnu que la photoémission est sensible à l'énergie d'échange intervenant entre les niveaux de coeur et la bande de valence. Cette énergie d'échange est définie à partir du moment local de spin et de la constante d'échange ξ . La dépendance de ξ et donc de l'énergie d'échange avec la structure de bande pourrait alors expliquer l'influence de l'hybridation 3d-4d à l'interface Fe/Pd et de la modification de la structure électronique sur l'évolution du terme d'asymétrie.

5. CONCLUSION

Les résultats de dichroïsme magnétique à température ambiante appliqué au système Fe/Pd(100) par MCXD en absorption a permis de mettre en évidence des propriétés magnétiques remarquables des couches minces de Fe. Une analyse des spectres de dichroïsme a montré la forte anisotropie dans le plan des films minces de Fe suivant la direction de facile aimantation (010). De plus, nous avons montré qu'au dessous de 1,5 ML de fer, l'ordre ferromagnétique n'existait pas à l'ambiante. La principale conclusion à tirer de ces résultats concerne l'évolution du moment magnétique local et de ses composantes de spin et orbitale avec l'épaisseur du Fe. La forte augmentation du moment magnétique orbital et du moment magnétique total pour les couches minces de Fe obtenue par l'application des règles de somme est en accord avec d'autres études expérimentales et théoriques de systèmes Fe/Pd [11,12]. Les résultats obtenus par MCDAD et MLDAD en photoémission sur les niveaux Fe2p et Fe3p ont fait apparaître la diminution de l'asymétrie pour les couches ultraminces. Cette contradiction apparente pourrait être liée à la proximité de l'interface et à l'influence de l'hybridation des bandes 3d du Fe et 4d du Pd.

Références

- [1] B. T. Thole, P. Carra, F. Sette et G. Van der Laan, Phys. Rev. Lett., 68, 1943 (1992).

- [2] P. Carra, B. T. Thole, M. Altarelli et X. Wang, Phys. Rev. Lett., 70, 694 (1993).
- [3] C. Liu et S. Bader, Phys. Rev. B 44, 2205 (1991).
- [4] J. Quinn, Y. S. Li, H. Li, D. Tian, F. Jona et P. M. Marcus, Phys. Rev. B 43, 3959 (1991)
- [5] X. Le Cann, C. Boeglin, K. Hricovini et B. Carrière, à paraître dans Thin Solid Films, Mat. Res. Soc. Symp. Proc. (1995).
- [6] C.T. Chen, Y. U. Idzerda, H. J. Lin, N. V. Smith, G. Meigs, E. Chaban, G. Ho, E. Pellegrin et F. Sette, Phys. Rev. Lett., 75, 152 (1995).
- [7] R. Wu, D. Wang et A. J. Freeman, Phys. Rev. Lett., 71, 3581 (1993); R. Wu et A. J. Freeman, Phys. Rev. Lett., 73, 1994 (1994).
- [8] X. Le Cann, K. Hricovini, B. Carrière et C. Boeglin, soumis à Phys. Rev. B.
- [9] C. Boeglin, E. Beaurepaire, V. Schorsch, B. Carrière, K. Hricovini et G. Krill, Phys. Rev. B, 48, 13123 (1993).
- [10] G. Rossi, F. Sirotti, N. A. Cherepkov, F. Combet Farnoux et G. Panaccione, Solid State Comm., 90, 557 (1994).
- [11] J. A. C. Bland, C. Daboo, B. Heinrich, Z. Celinski et R. D. Bateson, Phys. Rev. B 51, 258 (1995).
- [12] D. Stoeffler, K. Ounadjela, J. Sticht et F. Gautier, Phys. Rev. B 49, 299 (1994).