



THÈSE

Présentée à la Faculté des Sciences, Département de Physique
Pour l'obtention du diplôme de

Doctorat

Option : ***Techniques d'analyse des matériaux***

Par: ***Ilhem BENSEHIL***

SUJET :

Structure et magnétisme de couches minces

Soutenue publiquement le 11/12/2016

Devant le jury:

Président :	<i>M. A. ROUMILI</i>	<i>Professeur, UFAS1 Sétif.</i>
Directeur de thèse:	<i>M. A. KHARMOUCHE</i>	<i>Professeur, UFAS1 Sétif.</i>
Examineurs:	<i>M. M. BOUSLAMA</i>	<i>Professeur, ENP Oran.</i>
	<i>M. A. CHELOUCHE</i>	<i>Professeur, UAM, Bejaïa.</i>
	<i>M. D. MAOUCHE</i>	<i>Professeur, UFAS1 Sétif.</i>

Dédicaces

Je dédie ce modeste travail :

♥ *À mes très chers parents.*

♥ *À mon mari et mon petit bébé.*

♥ *À mes frères et ma sœur.*

♥ *À toute ma famille.*

♥ *Et À tous ceux qui m'ont soutenu.*

Remerciements

Ce travail de thèse a été réalisé au sein du laboratoire d'Etudes des Surfaces et Interfaces des Matériaux Solides (LESIMS) de l'Université Ferhat Abbas de Sétif1.

Mes remerciements vont tout d'abord à Dieu Tout Puissant pour la volonté, la santé et la patience qu'il m'a gratifiées pour terminer ce travail.

Je tiens à exprimer ma sincère gratitude au Professeur Ahmed Kharmouche que j'ai la chance d'avoir eu pour Directeur de Thèse. J'ai beaucoup apprécié la confiance qu'il m'a placée en moi, sa disponibilité régulière et son soutien constant. Je tiens énormément à souligner ses qualités humaines, son assistance et son enthousiasme qui m'ont aidés à surmonter beaucoup de difficultés. Il a été ma référence de sagesse scientifique.

Je tiens à remercier également l'ensemble des membres du jury pour avoir accepté d'évaluer ce travail de thèse. Merci à M. Roumili Abdelkrim, Professeur à l'Université Ferhat Abbas Sétif1, d'avoir accepté de présider le jury de cette thèse. Vifs remerciements à Monsieur Bouslama M'hammed, Professeur à l'école Nationale Polytechnique d'Oran, Chellouche Azeddine, Professeur à l'Université Abderrahmane Mira de Bejaïa, et Maouche Djamel, Professeur à l'Université Ferhat Abbas Sétif1, d'avoir accepté de juger ce travail et de m'avoir fait l'honneur de faire partie de mon jury de thèse.

Je remercie aussi Monsieur Abdelkader Bourzami, Professeur à l'Université Ferhat Abbas Sétif, d'avoir contribué à ce travail par les mesures de VSM.

Un grand merci aussi à Monsieur A. Sari, attaché de recherche au centre de recherche nucléaire de Birin (CRNB). Pour sa disponibilité entière dans les mesures de DRX.

Mes remerciements vont aussi à Mr.A . Azizi et à Mr. M. R. Khelladi de l'université Ferhat Abbas de Sétif1 pour les mesures AFM.

Je remercie très sincèrement tous les collègues que j'ai eu le plaisir de côtoyer durant mon séjour au laboratoire. Par leur gentillesse, leur sympathie, et pour toutes les discussions fructueuses et enrichissantes.

Je ne peux oublier les membres de ma famille qui m'ont aidé : tout d'abord mes parents, Je dirai simplement et en quelques mots que tout a débuté grâce à eux, tout s'est développé grâce à leurs efforts, tout s'est épanoui à côté d'eux et tout a abouti pour eux . Un merci spécifique à mon mari et mon petit bébé « abdettaouab » pour avoir supporté mon mauvais caractère, je remercie également ma sœur « Khaoula » et mes frères « Souhiel et Mahdi ».

Merci à vous tous

Sommaire

Introduction générale	5
-----------------------------	---

Chapitre I : Généralités : magnétisme et études antérieurs sur les couches minces de Fer

<i>I.1 Introduction.....</i>	<i>12</i>
<i>I.2 Origine du magnétisme</i>	<i>12</i>
<i>I.3 Le ferromagnétisme et l'échange.....</i>	<i>15</i>
<i>I.4 Anisotropie magnétique</i>	<i>20</i>
<i>I.5 Les facteurs influent sur les paramètres ferromagnétiques.....</i>	<i>22</i>
<i>I.6 Applications des matériaux magnétiques.....</i>	<i>24</i>
<i>I.7 Propriétés physiques fondamentales du Fe massif</i>	<i>26</i>
<i>I.8 Travaux antérieures sur le fer en couches minces.....</i>	<i>27</i>
<i>Références bibliographiques.....</i>	<i>30</i>

Chapitre II : Techniques expérimentales

<i>II.1 Introduction.....</i>	<i>36</i>
<i>II.2 Techniques expérimentales d'élaboration des couches minces.....</i>	<i>36</i>
<i>II.3 Evaporation sous vide</i>	<i>39</i>
<i>II.4 Techniques expérimentales de caractérisation.....</i>	<i>47</i>
<i>II.5 Conclusion.....</i>	<i>52</i>
<i>Références bibliographiques.....</i>	<i>53</i>

Chapitre III : Propriétés structurales

<i>III.1 Introduction.....</i>	<i>56</i>
<i>III.2 Elaboration des couches minces de Fer</i>	<i>56</i>
<i>III.3 Analyse de la structure des couches minces de Fer.....</i>	<i>58</i>
<i>III.4 Morphologie et topographie des couches minces de Fer</i>	<i>73</i>
<i>III.5 Conclusion.....</i>	<i>81</i>
<i>Références bibliographique.....</i>	<i>82</i>

Chapitre IV : Propriétés magnétiques

<i>IV.1 Introduction.....</i>	<i>85</i>
<i>IV.2 Cycles d'hystérésis</i>	<i>85</i>
<i>IV.3 Paramètres intrinsèques des couches minces de Fer.....</i>	<i>93</i>
<i>IV.4 Conclusion.....</i>	<i>105</i>
<i>Références bibliographiques.....</i>	<i>105</i>

Conclusion générale	107
----------------------------------	------------

Introduction générale

Introduction générale

Depuis la découverte des roches magnétiques à *Magnesia*, ville et province grecque d'Asie mineure, le magnétisme a séduit les gens et a été un axe privilégié des chercheurs [1]. Puis, à partir de la fin de la deuxième guerre mondiale, on assista à un regain d'intérêt, et l'étude du magnétisme n'a jamais été plus animée qu'elle ne l'est aujourd'hui: la science des matériaux magnétiques ne cesse d'évoluer et de se diversifier. Cet intérêt provient principalement de trois évolutions [2] :

- *Nouveaux matériaux* : une nouvelle classe de matériaux magnétiques tels que les ferrites, nanostructures et hétérostructures magnétiques.
- *Nouveaux outils* : l'évolution impressionnante des techniques de caractérisation magnétique. Ainsi, les techniques d'élaboration ont permis de mettre en évidence de nouvelles classes de matériaux [2, 10].
- *Nouvelles applications* : depuis les débuts de l'informatique, les découvertes de la recherche autour du magnétisme n'ont cessé de faire progresser les performances de stockage de l'information. Les progrès du nanomagnétisme et de la spintronique permettront d'aller plus loin encore [2, 11].

Jadis, les matériaux magnétiques sont étudiés dans leur état massif. Avec le développement technologique on s'intéresse aujourd'hui à l'infiniment petit: citons les couches minces [3]. L'effet d'interface, le faible nombre de coordination, la réduction de symétrie, la tension induite par les substrats, la possibilité de stabiliser des structures métastables, peuvent profondément modifier les propriétés magnétiques des couches minces des matériaux par rapport à leur état massif, et la possibilité d'induire de nouveaux comportements magnétiques dans un environnement contrôlé [9].

Les couches minces à base de matériaux ferromagnétiques (Fe, Co, Ni, ...) constituent une classe importante dans le domaine du magnétisme, elles ont été l'objet de plusieurs travaux de recherche pour la réalisation de dispositifs à enregistrement de haute densité et les capteurs magnétiques à haute sensibilité [9]. Les propriétés physiques de ces couches minces sont très sensibles aux méthodes et conditions de dépôt tels que la température, la pression, le temps et la vitesse de dépôt,... Ainsi, elles dépendent fortement de

l'épaisseur et du type de substrat. D'un autre côté, les propriétés structurales (structure cristallographique, orientation préférentielle, paramètre de maille, taille des grains...) ont une grande importance dans l'étude des couches minces. Elles donnent d'une part des informations sur le mode de croissance des films minces, et d'autre part, elles influent sur les autres propriétés physiques. C'est pourquoi une étude très ordonnée de ces différents paramètres est nécessaire pour pouvoir comprendre les propriétés magnétiques [4-8].

Ce travail de thèse a pour but d'étudier l'effet du substrat et de l'épaisseur sur les propriétés structurales et magnétiques des couches minces de Fer déposées par évaporation thermique sous vide, sur des substrats de Si(100), Si(111) et Cu.

Ce manuscrit est composé de quatre chapitres, en plus d'une introduction générale et une conclusion générale.

- Le **premier chapitre** se divise en deux parties. La première partie rappelle des généralités sur le magnétisme. On introduira la notion de ferromagnétisme, ses caractéristiques, ses applications, les énergies d'anisotropie, ...

La deuxième partie présente quelques propriétés physiques du fer massif, et un état de l'art dressé à partir des travaux publiés dans la littérature concernant les couches minces de Fer.

- Le **deuxième chapitre** est consacré aux différentes techniques de dépôts des couches minces. On y décrira la méthode utilisée pour l'élaboration de nos échantillons, ainsi que les techniques de caractérisation structurale, topographique, et magnétique, telles que la diffraction des rayons X, la microscopie à force atomique et la magnétométrie.
- Dans le **troisième chapitre** nous décrirons d'abord les conditions de dépôt de nos couches minces, ensuite les propriétés structurales obtenues par la diffraction des rayons X, et les propriétés morphologiques obtenues par le microscope à force atomique. Les résultats obtenus avec ces techniques seront discutés en fonction de la nature du substrat et de l'épaisseur de la couche déposée.
- Enfin, le **quatrième chapitre** présentera les propriétés magnétiques macroscopiques des couches minces de Fer sur les différents substrats de dépôt. Par ailleurs, l'évolution des paramètres ferromagnétiques que sont le champ coercitif et de

saturation ainsi que la rémanence est analysée en fonction de l'épaisseur, la taille des grains, et la rugosité de la couche magnétique déposée. Le but est de comprendre la corrélation entre le magnétisme et la structure.

Références bibliographiques

- [1] K. H. J. Buschow, F. R. De Boer, *Physics of Magnetism and Magnetic materials*, New York, 2004.
- [2] B. D. Cullity, C. D. Graham, *Introduction to magnetic materials*, IEEE press, 2009.
- [3] M. Ohring, *The Materials Science of Thin Films*, Academic Press, 1992.
- [4] A. Javed, N.A. Morley, M.R.J. Gibbs, *Appl. Surf. Science*, 257 (2011) 5586–5590.
- [5] B. Ghebouli, S.-M. Chérif, A. Layadi, B. Helifa, M. Boudissa, *J. Magn. Magn. Mater*, 312 (2007) 194–199.
- [6] M. Mebarki, A. Layadi, A. Guittoum, A. Benabbas, B. Ghebouli, M. Saad, N. Menni, *Appl. Surf. Science*, 257 (2011) 7025–7029.
- [7] Y. Shiratsuchi, M. Yamamoto, S.D. Bader, *Progress in Surface Science*, 82 (2007) 121–160.
- [8] M. Hemmous, *Thèse de Doctorat de l'Université Ferhat Abbas Sétif1*, 2014.
- [9] M. Finazzi, L. Duò, F. Ciccacci, *Surface Science Reports*. 64 (2009). 139-167.
- [10] K. Chafai, *Thèse de Doctorat de l'Université de Casablanca*, 2012.
- [11] A. Chiolerio, P. Allia, *Encyclopedia of Nanotechnology*, 2012.

Chapitre I

Généralités: magnétisme et études antérieures sur les couches minces de Fer

I.1 Introduction

I.2 Origine du magnétisme

- Diamagnétisme
- Paramagnétisme
- Ferromagnétisme

I.3 Le ferromagnétisme et l'échange

I.3.1 Cycle d'hystérésis

I.3.2 Température de Curie

I.3.3 Domaines magnétiques et parois

I.3.4 Renversement d'aimantation

I.4 Anisotropie magnétique

I.4.1 Anisotropie magnétocristalline

I.4.2 Anisotropie de surface

I.4.3 Anisotropie de forme

I.4.4 Anisotropie magnétoélastique

I.5 Les facteurs influents sur les paramètres ferromagnétiques

I.5.1 Le modèle de Kittel

I.5.2 Le modèle de Néel

I.5.3 Le modèle de Khapikov

I.6 Applications des matériaux magnétiques

I.6.1 Matériaux magnétiques doux

I.6.2 Matériaux magnétiques durs

I.6.3 Matériaux magnétiques supports pour l'enregistrement magnétique

I.7 Propriétés physiques fondamentales du Fer massif

I.8 Travaux antérieurs sur le Fer en couches minces

Références bibliographiques

I.1 Introduction

Durant les dernières décennies, un intérêt considérable est suscité par les couches minces à base de matériaux ferromagnétiques, en raison de propriétés inexistantes à l'état massif.

Afin de pouvoir interpréter les résultats obtenus dans le présent travail, nous allons exposer dans ce chapitre un résumé sur le magnétisme, les différentes classes de matériaux magnétiques: diamagnétiques, paramagnétiques, ferromagnétiques ...etc. Ensuite nous parlerons de l'origine du ferromagnétisme et ses caractéristiques, les différentes énergies d'anisotropies, les facteurs influents sur les paramètres ferromagnétiques, et l'application des matériaux ferromagnétiques selon la valeur du champ coercitif.

Nous décrirons également certaines propriétés physiques fondamentales du fer massif, et à la fin du chapitre, nous présenterons les différents travaux effectués sur l'élaboration de couches minces magnétiques de Fer afin d'en définir l'état de l'art actuel.

I.2 Origine du magnétisme

Le moment magnétique élémentaire d'un atome résulte de deux contributions provenant de ses couches électroniques incomplètes. Le moment magnétique orbital est associé au mouvement de l'électron sur son orbite autour du noyau, alors que le moment magnétique de spin est lié au spin de l'électron (**Figure I.1**).

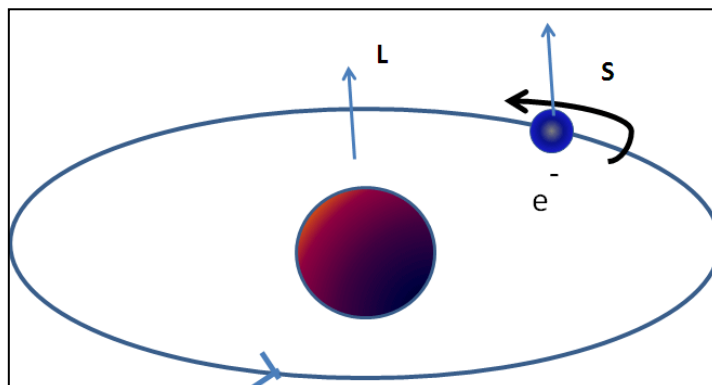


Figure I.1 : mouvement de l'électron.

À partir du moment magnétique individuel de l'atome constituant le corps, l'orientation et le comportement de tous ces moments à l'intérieur de la matière, les matériaux magnétiques sont classés dans les catégories suivantes [1]:

I.2.1 Diamagnétisme

Le diamagnétisme provient du courant induit lors de l'application du champ magnétique dans les couches électroniques remplies; ces courants induits engendrent un moment magnétique induit qui s'oppose au champ appliqué (donc une susceptibilité négative $\chi < 0$) (**Figure I.2**). Le diamagnétisme est une conséquence directe de la loi de Lenz [2]; il existe dans tous les matériaux mais est souvent négligé car son effet est très faible, surtout si d'autres phénomènes magnétiques son en jeu [1]. Les principales substances diamagnétiques sont les suivantes [3] :

- ✓ Les gaz rares monoatomiques : He, Ne, Ar,...
- ✓ Les gaz polyatomiques, H₂, N₂, ...
- ✓ Les solides ioniques : NaCl

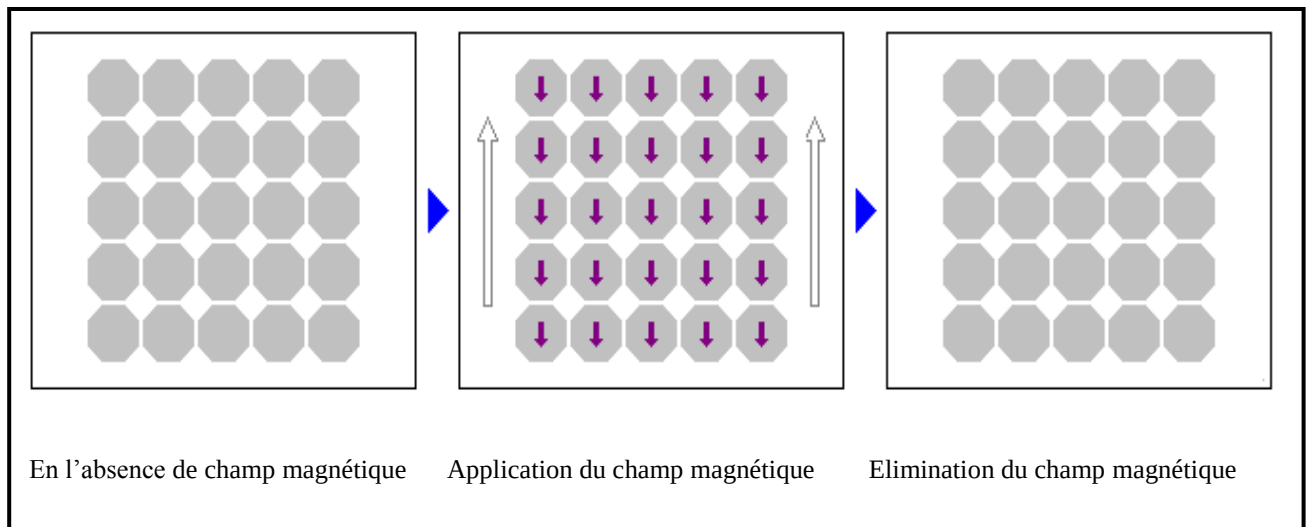


Figure I.2 : schéma illustratif du diamagnétisme.

I.2.2 Paramagnétisme

Les matériaux paramagnétiques sont caractérisés par un moment magnétique permanent à cause des électrons non appariés dans les couches électroniques partiellement remplies; ces moments sont orientés aléatoirement de sorte que l'aimantation M est nulle. Lors de l'application d'un champ magnétique, les moments vont s'aligner dans la direction du champ appliqué, ce qui conduit à une aimantation non nulle et une susceptibilité positive [4] (**Figure I.3**).

Le paramagnétisme se rencontre dans [3] :

- ✓ Les atomes, les molécules et les défauts cristallins possédant un nombre impair d'électrons : Na, Al,...
- ✓ Les actinides : U...
- ✓ Les métaux alcalinoterreux (Ba, Ca,)

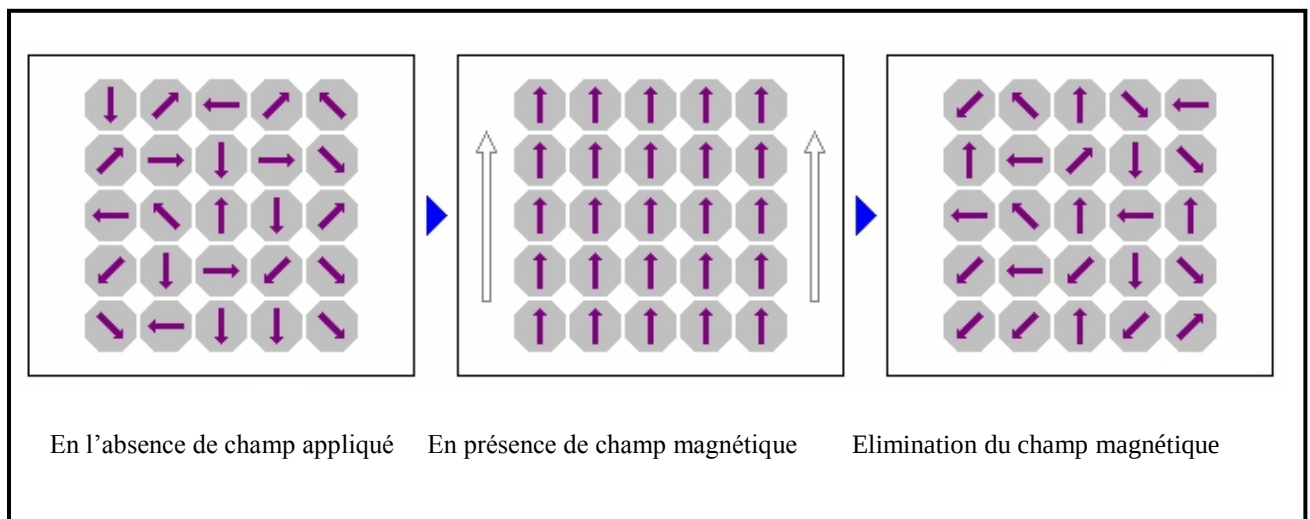


Figure I.3 : schéma illustratif du paramagnétisme.

I.2.3 Ferromagnétisme

Les matériaux ferromagnétiques sont caractérisés par une aimantation et un ordre magnétique spontané même en absence de champ magnétique appliqué (**Figure I.4**).

On distingue plusieurs types d'ordre magnétique :

- Ferromagnétisme : les moments magnétiques sont orientés dans le même sens.

- Antiferromagnétisme : les moments magnétiques voisins sont orientés dans des sens opposés.
- Ferrimagnétisme : cas particulier de l'antiferromagnétisme où les moments magnétiques opposés n'ont pas la même norme [3].

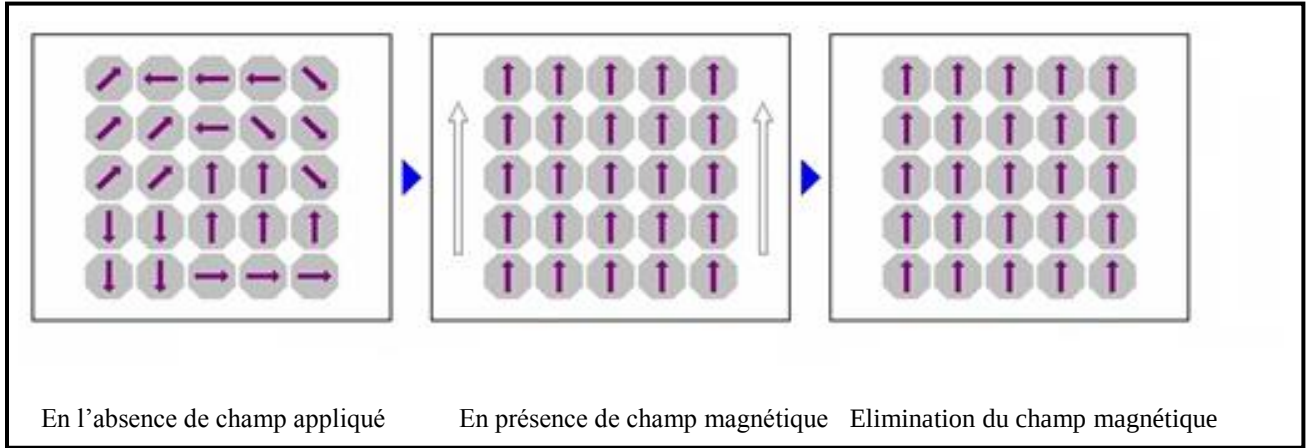


Figure I.4 : schéma explicatif du ferromagnétisme.

I.3 Le ferromagnétisme et l'échange

Comme nous l'avons rapporté au paragraphe précédent, les corps ferromagnétiques possèdent une aimantation même en absence de champ appliqué. Pour interpréter ce comportement, Weiss, en 1907, postula l'existence d'une interaction favorisant l'alignement des moments magnétiques des différents atomes, nommé plus tard champ moléculaire. La véritable origine de ce champ a été donnée par W. Heisenberg en 1928, qui a montré que l'interaction responsable de cet ordre magnétique est l'interaction entre les spins des électrons et appelée aussi l'interaction d'échange, dans lequel le Hamiltonien d'interaction s'écrit :

$$H = -J \sum_{i \neq j} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j$$

Où la sommation est effectuée sur les premiers voisins, J est l'intégrale d'échange.

Le signe de l'intégrale d'échange J définit l'orientation des spins $\vec{S}_i$ et $\vec{S}_j$

Ordre antiferromagnétique pour $J < 0$.

Ordre ferromagnétique pour $J > 0$ [5].

Le ferromagnétisme des métaux de transition qui se caractérise par l'orbite « d » incomplète est interprété par le magnétisme itinérant. Dans ces métaux l'interaction avec le champ cristallin est plus forte que le couplage spin-orbite, ce champ cristallin va lever la dégénérescence entre les orbitales « $3d$ », et conduit au blocage du moment magnétique orbital L ($L=0$), et le moment magnétique de ces atomes provient essentiellement du spin.

L'aimantation M est proportionnelle au magnétron de Bohr μ_B et à la différence de population d'électrons Δn de chaque spin(up et down) :

$$M = \mu_B \times \Delta n \text{ avec } \Delta n = (n \uparrow - n \downarrow) [6].$$

I.3.1 Cycle d'hystérésis

Le cycle d'hystérésis représente la réponse d'un matériau ferromagnétique à un champ magnétique appliqué [7]. A partir du cycle d'hystérésis on peut définir certaines propriétés magnétiques du matériel telles que l'aimantation rémanente (M_R), l'aimantation à saturation (M_s) et le champ coercitif (H_c) (**Figure I.5**).

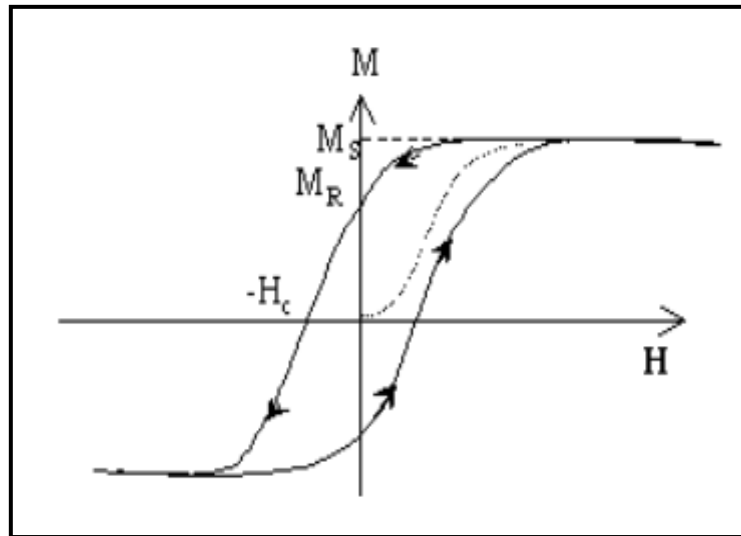


Figure I.5 : Cycle d'hystérésis.

Le champ coercitif H_c est le champ nécessaire pour amener l'aimantation de la rémanence à zéro, autrement dit c'est le champ qui doit être appliqué pour inverser l'aimantation [8].

Quand H_c est très faible, les matériaux sont dits doux, si H_c est suffisamment grand, ils sont dits durs [9].

L'aimantation rémanente M_r est l'aimantation restante une fois le champ magnétique appliqué étant retiré. C'est la quantité naturelle exprimant le fait qu'un corps ferromagnétique peut être spontanément aimanté même en l'absence de champ extérieur [8].

L'aimantation à saturation M_s correspond à l'aimantation où tous les moments magnétiques sont alignés. L'aire d'un cycle d'hystérésis nous donne une moyenne sur la mesure de la quantité d'énergie dissipée par chaleur pour renverser l'aimantation d'un matériau ferromagnétique.

I.3.2 Température de Curie

La température de Curie est une température critique caractérisant les matériaux ferromagnétiques. Au-delà de cette température, l'interaction d'échange n'est pas suffisante pour maintenir alignés les moments magnétiques entre eux, et le matériau se comporte alors comme un corps paramagnétique. La température de curie pour le fer massif se situe vers $T_c = 1043$ K [3].

I.3.3 Domaines magnétiques et parois

Afin d'expliquer le phénomène d'hystérésis, Pierre Weiss en 1907 a imaginé que les corps ferromagnétiques étaient divisés en domaines, toujours aimantés à saturation. En 1932, Bloch a montré l'existence d'une région nommée paroi de domaine qui sépare des domaines adjacents et ayant une aimantation à saturation différente [5] (**Figure I.6**).

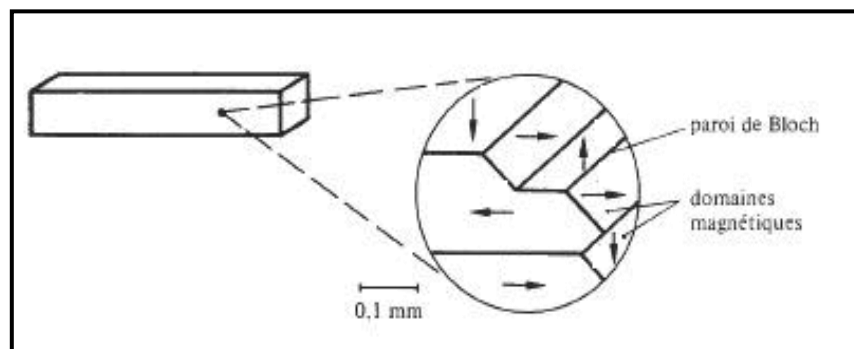


Figure I.6 : Division d'un corps ferromagnétique en domaines magnétiques.

En fonction de la rotation de l'aimantation à l'intérieur d'une paroi on peut définir deux types de parois :

- **Paroi de Bloch**

Pour ce type de paroi l'aimantation tourne parallèlement au plan de la paroi (**Figure I.7**). Ce type de paroi est favorable dans le cas des matériaux massifs, car aucune charge magnétique n'est créée [11].

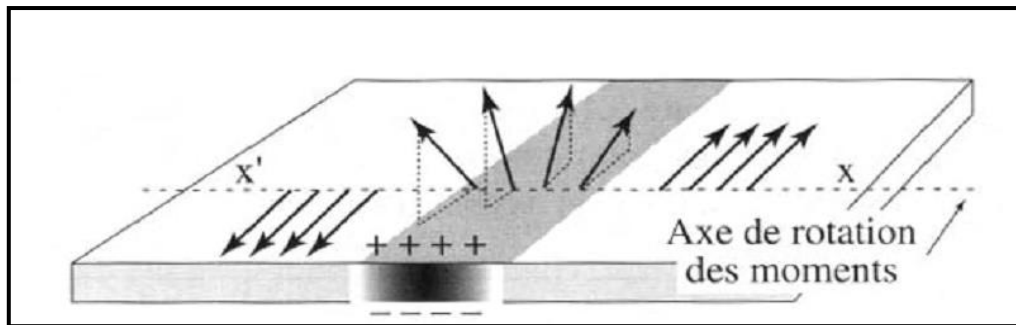


Figure I.7 : Paroi de Bloch.

- **Paroi de Néel**

Lorsque l'épaisseur d'un échantillon devient comparable à l'épaisseur de la paroi de domaine, la théorie des parois de Bloch n'est pas applicable. En effet, les charges magnétiques de surface ne sont plus nulles. Par contre, si on remplace la rotation de l'aimantation parallèle au plan par une rotation perpendiculaire au plan de la paroi, l'énergie totale du système diminuera. Ce nouveau type de paroi dans laquelle la rotation de l'aimantation s'effectue perpendiculairement au plan de la paroi s'appelle paroi de Néel [12] (**Figure I.8**).

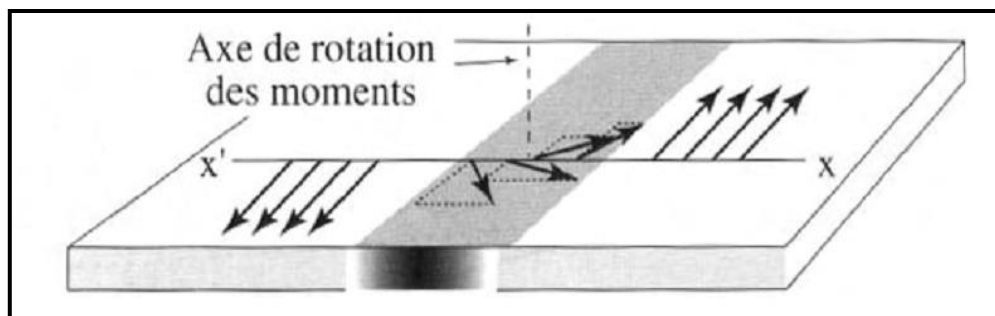


Figure I.8 : Paroi de Néel.

I.3.4 Renversement d'aimantation

Il existe plusieurs types de renversement de l'aimantation. Tout dépend des dimensions de l'échantillon, du type de champ appliqué et de sa direction (**Figure I.9**):

- 1) Renversement uniforme
- 2) Renversement non uniforme
- 3) Renversement par nucléation et propagation des parois [13]

Le modèle le plus simple est le renversement cohérent ou uniforme qui a été développé par Stoner-Wolfarth et Louis Néel [13]. Dans ce modèle, l'aimantation varie de manière identique en tous les points de l'échantillon. Cela ne veut pas dire que l'aimantation demeure uniforme tout au long du processus de retournement, mais seulement au début [14].

Un autre modèle de renversement est le renversement incohérent ou non-uniforme où les moments magnétiques ne tournent pas de manière uniforme telles les rotations incohérentes en mode flambage « *buckling* » et rotations incohérentes en mode enroulement « *curling* ».

Le dernier type de renversement caractérise les matériaux réels influencés par les défauts qui existent dans le matériau. Le processus débute avec la nucléation d'un domaine d'aimantation inverse proche d'un défaut, la paroi créée se propage ensuite dans tout le système [13].

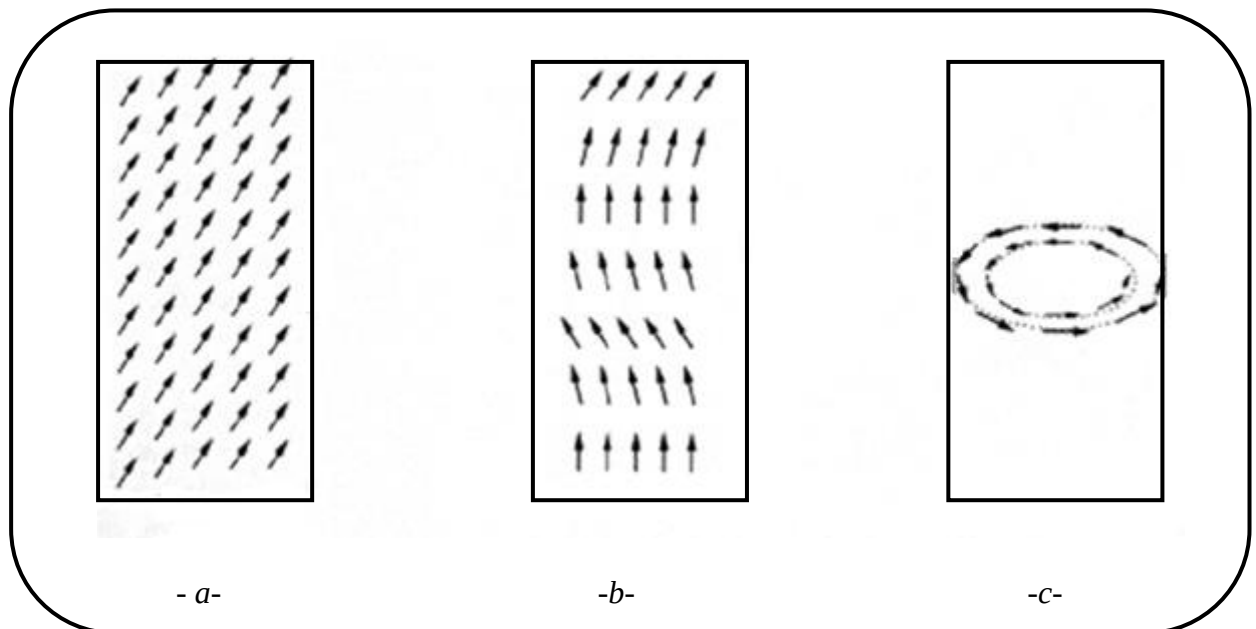


Figure I.9 : Modes de renversement possible dont les flèches schématisent les spins à l'intérieur de la structure : a) Rotation cohérente, b) Buckling, c) Curling.

I.4 Anisotropie magnétique

L'anisotropie est une propriété fondamentale des matériaux magnétiques. C'est la dépendance de l'énergie interne par rapport à l'orientation spontanée de l'aimantation [2]. Il existe des énergies qui orientent l'aimantation le long de certains axes définis coûtant le moins d'énergie possible appelés directions axes d'aimantation facile [3].

Il existe différentes anisotropies: anisotropie de forme, de surface, magnétocristalline,...

I.4.1 Anisotropie magnétocristalline

L'anisotropie magnétocristalline est liée à la structure cristallographique du matériau : il existe des directions cristallographiques dans lesquelles il sera plus facile d'aimanter le matériau, appelées axes de facile aimantation. Cette anisotropie peut être de type cubique ou uniaxiale. Dans la courbe d'aimantation du Fer en fonction du champ magnétique appliqué (Honda et Kaya **Figure I.10**) [3], on remarque que la direction (100) est une direction d'aimantation facile et la direction (111) est une direction défavorable (difficile). Ce type d'anisotropie magnétocristalline est appelée anisotropie magnétocristalline cubique. Le Fer est un cristal cubique, les directions d'aimantation facile sont les arrêtes du cube. L'expression de l'énergie (par unité de volume) d'anisotropie du Fer dans une direction arbitraire de cosinus directeurs $\alpha_1, \alpha_2, \text{ et } \alpha_3$ rapportés aux arrêtes du cube est donnée par :

$$E_K = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2)$$

K_1 et K_2 sont les constantes d'anisotropie cubique.

Un autre type d'anisotropie magnétocristalline est l'anisotropie uniaxe. Cette anisotropie est rencontrée dans les structures hexagonales (exemple le Cobalt). L'énergie d'anisotropie magnétocristalline uniaxe est donnée par :

$$E_K = K_u \sin^2 \theta$$

Où K_u est la constante d'anisotropie magnétocristalline uniaxe et θ l'angle entre $\mathbf{M}$ et l'axe de facile aimantation.

Les constantes d'anisotropie magnétocristalline cubique du Fer à température ambiante sont représentées dans la **table I.1** [1] :

Elément	Anisotropie cubique	
	K_1 (erg/ cm ³)	K_2 (erg/ cm ³)
Fe	$4,8 \cdot 10^5$	$0,5 \cdot 10^5$

Table I.1 : constantes d'anisotropie cubique de Fe à $T = 293^0$ k.

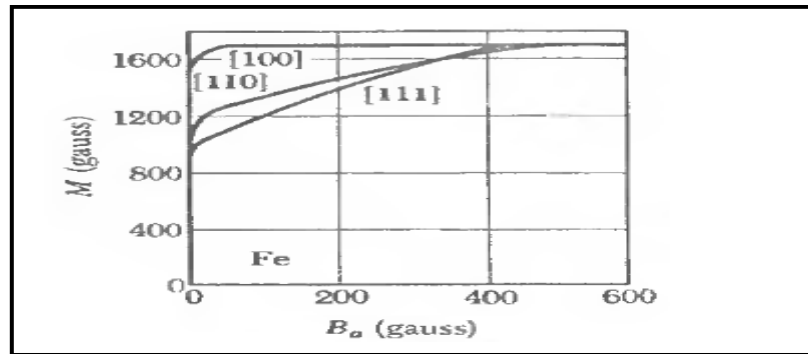


Figure I.10 : Courbes d'aimantation du Fer massif dans différentes directions cristallographiques.

I.4.2 Anisotropie de surface

L'anisotropie de surface apparait à cause de la rupture de symétrie à la surface et de la baisse du nombre de plus proches voisins par rapport au volume, comme suggéré par Néel. L'énergie associée s'écrit comme :

$$E_{an}^{surf} = \frac{2K_s}{t} \sin^2 \theta$$

Avec K_s l'anisotropie de surface, t l'épaisseur de la couche mince, et θ l'angle entre l'aimantation et la normale à la surface.

Elle peut devenir prépondérante pour des couches ultra-minces en raison de l'augmentation du rapport surface/volume [1, 15].

I.4.3 Anisotropie de forme

La forme d'un échantillon affecte son énergie d'anisotropie magnétique. On parlera alors de champ démagnétisant H_d [16]: lorsqu'un corps ferromagnétique est aimanté, des

pôles magnétiques sont créés sur la surface. Ces pôles vont établir un champ démagnétisant proportionnel et antiparallèle à $\mathbf{M}$.

$$\mathbf{H}_d = -N\mathbf{M}$$

N est le facteur démagnétisant et dépend de la forme de l'échantillon. Pour des couches minces, $N=4\pi$ dans la direction normale au plan du film. Par conséquent

$$\mathbf{H}_d = -4\pi\mathbf{M}$$

L'énergie d'anisotropie de forme s'écrit [17] :

$$E_{an}^{forme} = -\frac{1}{2} H_d M$$

I.4.4 Anisotropie magnétoélastique

Lorsqu'une substance est exposée à un champ magnétique ses dimensions changent. Cet effet est appelé magnétostriction et a été découvert par Joule en 1842 [12]. Aussi l'effet magnétostrictif inverse, où toute déformation du réseau cristallin sous l'action d'une contrainte extérieure induit une modification des propriétés magnétiques [8].

Dans le cas de films minces, il existe souvent une différence entre le paramètre de maille du film et celui du substrat, ce qui peut induire des contraintes élastiques à l'interface. Celles-ci dépendent non seulement de la différence de paramètre de maille mais aussi de l'épaisseur déposée. En effet, les contraintes peuvent relaxer au-delà d'une certaine épaisseur. L'anisotropie magnétoélastique associée à cet effet s'exprime par :

$$E_{an}^m = \frac{3}{2} \lambda_s \sigma \sin^2 \theta$$

σ la contrainte, λ_s la constante de magnétostriction à saturation qui peut être soit positive ou négative [1].

I.5 Les facteurs influents sur les paramètres ferromagnétiques

Il existe plusieurs facteurs influents sur les propriétés ferromagnétiques (H_c , H_s , M_s , et S), ces facteurs ont fait l'objet d'un certain nombre de travaux théoriques et expérimentaux, ces facteurs sont :

- La rugosité de surface fait perturber le processus de retournement d'aimantation.
- L'épaisseur modifie l'énergie du champ démagnétisant.
- La forme et la taille des grains modifient l'anisotropie magnétique de surface.
- Les contraintes modifient l'anisotropie magnétoélastique.

Dans la partie suivante, nous ne présentons que les modèles directement liés aux rugosités, épaisseur, et taille des grains [18].

I.5.1 Le modèle de Kittel

Ce modèle établit que le champ coercitif H_c est inversement proportionnel au diamètre moyen D du grain considéré comme sphérique et monodomaine (une seule orientation magnétique) :

$$H_c = H_0 \left(1 - \frac{D_0}{D} \right)$$

Avec H_0 et D_0 deux constantes propres au matériau [19].

I.5.2 Le modèle de Néel

Néel a montré les limites de la loi de Kittel, il a trouvé que le champ coercitif d'un petit grain multi-domaine cubique de côté D varierait ainsi comme la puissance 2/3 de l'inverse de son diamètre, ce qui cadre assez bien avec les résultats expérimentaux [19].

$$H_c \propto D^{-2/3}$$

J.C. Lloyd et R.S. Smith en 1960 ont repris les travaux de Néel et ont trouvé que :

$$H_c = Ct^n$$

n variant entre -1,4 et 0, valeur fortement liée aux conditions de préparation. Ils ont montré que le champ coercitif est perturbé par la rugosité:

$$\ln(H_c) = \ln C + n \ln(t) \Rightarrow \frac{dH_c}{H_c} = n \frac{dt}{t} \Rightarrow \Delta H_c = \left(\frac{n \cdot H_c}{t} \right) \cdot \Delta t$$

On peut assimiler Δt à la rugosité σ , d'où [18] :

$$\Delta H_c \propto \sigma$$

I.5.3 Le modèle de Khapikov

Ce modèle rend compte de l'effet de la rugosité sur le processus de retournement de l'aimantation.

Si le retournement de l'aimantation se fait par rotation cohérente des spins, on a :

$$\frac{H_C^{SR} M_S}{1 - \sqrt{1 - \frac{M_r}{M_S}}} \approx \text{constante}$$

H_C^{SR} , le champ coercitif, M_S l'aimantation à saturation et M_r l'aimantation rémanente.

Si le retournement se fait par nucléation-propagation des parois de domaines, on a alors [18] :

$$2H_c^{DW} M_r \approx \text{constante}$$

I.6 Applications des matériaux magnétiques

Selon la valeur du champ coercitif, les matériaux magnétiques sont classés en trois grandes classes: matériaux magnétiques doux, matériaux magnétiques durs et matériaux magnétiques supports pour l'enregistrement magnétique (**Figure I.11**). Cette classification est importante en termes d'applications pratiques des matériaux magnétiques [16].

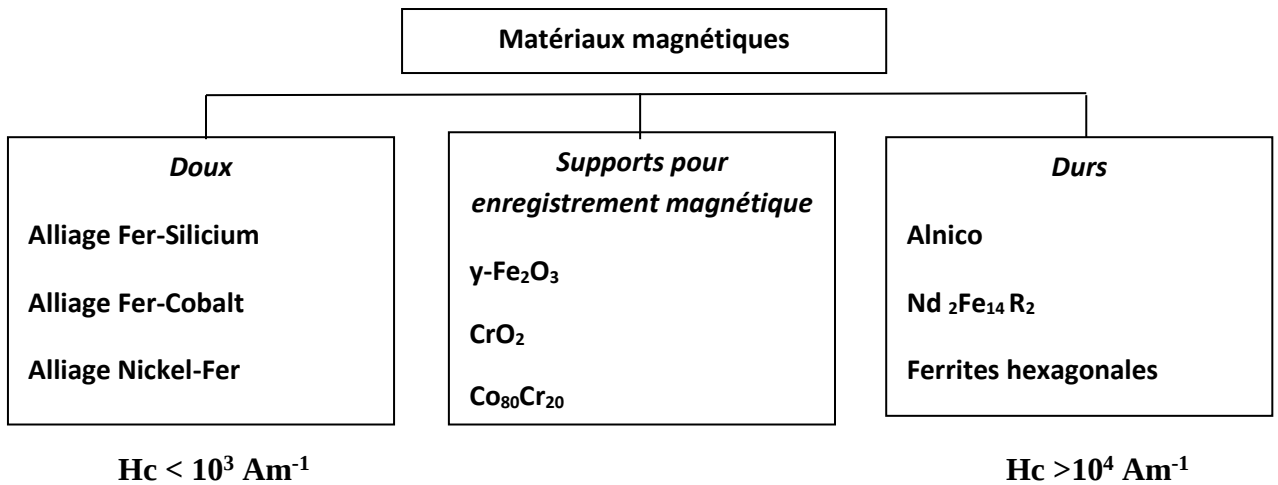


Figure I.11: Classification des matériaux magnétiques

I.6.1 Matériaux magnétiques doux

Les matériaux ferromagnétiques doux sont des matériaux qui peuvent être facilement aimantés [8]. Ils sont caractérisés aussi par un faible champ coercitif (**Figure I.11.c**), une haute perméabilité et une faible perte par hystérésis [2].

Les matériaux ferromagnétiques doux présentent un champ coercitif inférieur à 1000 A/m [16]. Citons par exemple le fer, certains aciers de fer et de nickel, des ferrites (NiFe_2O_4) ... [20]. Les matériaux magnétiques doux sont utilisés dans plusieurs applications tels les noyaux des transformateurs, les inducteurs, les boucliers magnétiques, moteurs, générateurs, ... [2,16].

I.6.2 Matériaux magnétiques durs

Ce sont des matériaux qui sont difficiles à aimanter et désaimanter [17]. Ils nécessitent un très fort champ magnétique extérieur pour arriver jusqu'à saturation. Leur aimantation peut être considérée comme rémanente et permanente. Ces matériaux ont un cycle d'hystérésis large (**Figure I.11.a**). Après élimination du champ extérieur, ces matériaux ont une faible perméabilité.

Les matériaux ferromagnétiques durs présentent un champ coercitif supérieur à 10000 A/m, on cite par exemple NdFeB, AlNiCo, CoPt, ...etc

Les matériaux magnétiques durs sont utilisés dans la fabrication des aimants permanents [16].

I.6.3 Matériaux magnétiques supports pour l'enregistrement magnétique

Matériaux magnétiques supports pour l'enregistrement magnétique sont caractérisés par un champ coercitif intermédiaire ($1000 \text{ A/m} < H_c < 10000 \text{ A/m}$), ni trop grand, pour pouvoir effacer l'information à volonté, ni trop faible, pour résister à des champs magnétiques parasites (**Figure I.12.b**).

Les supports d'enregistrement les plus répandus à ce jour sont : Fe_2O_3 , Cr_2O_3 , CoNiCr... Ces matériaux sont utilisés dans l'enregistrement audio, vidéo, technologie de traitement des données informatiques ainsi que dans les ordinateurs.

Une information peut être inscrite en orientant localement l'aimantation dans deux directions possibles, réalisant ainsi un stockage binaire (0 = aimantation positive ou 1 = aimantation négative), on détecte la direction de son aimantation par une tête de lecture inductive ou magnétorésistive, ou par effet magnéto-optique [16,21].

On peut enregistrer les données de deux façons différentes, on parle d'enregistrement longitudinal lorsque l'aimantation est dans le plan de la couche (exemple : CoNiCr, CoPtCr) et d'enregistrement perpendiculaire lorsque l'aimantation est perpendiculaire au plan de la couche (exemple : CoPt, CoCr, TbFeCo amorphe).

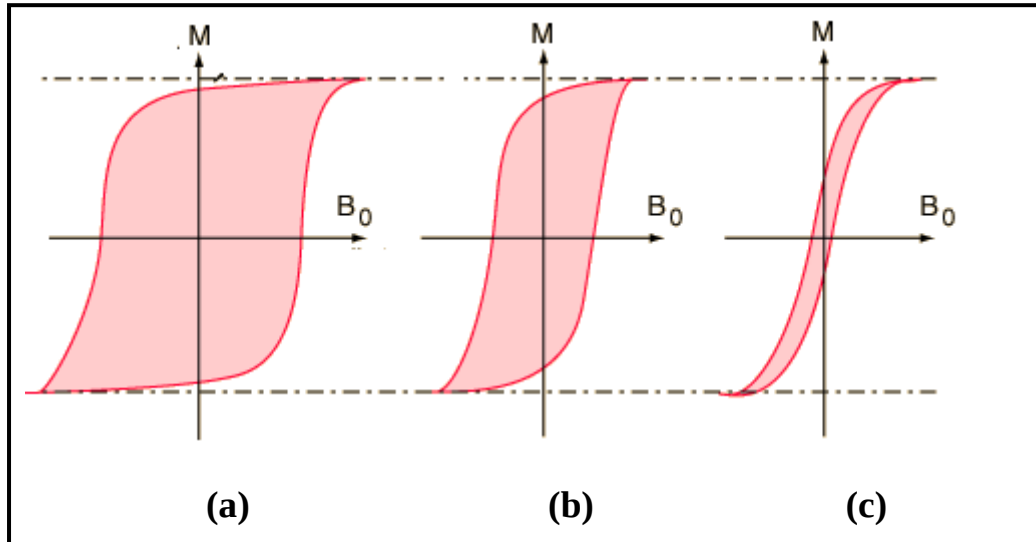


Figure I.12 : Cycles d'hystérésis typiques pour : a) matériau magnétique dur b) matériau magnétique support pour l'enregistrement et c) matériau magnétique doux.

I.7 Propriétés physiques fondamentales du Fer massif

Le fer est l'élément de transition le plus abondant, constituant 5,6% en masse de la croûte terrestre. Il a joué un rôle important dans le développement de la société industrielle, et même aujourd'hui, il n'a pas perdu de son importance. Afin d'étudier le fer en couches minces, il est indispensable de connaître certains paramètres physiques à l'état massif[22].

Le fer est un élément de la première série des métaux de transitions «**3d**» avec une configuration électronique de **[Ar] 3d⁶4s²**. La phase dite « Alpha~ α » de Fer cristallise dans une structure cubique centrée (bcc ~ body centered cubic) avec un paramètre de maille $a=2.8662 \text{ \AA}$ (à 295K). Cette phase α est stable jusqu'à 1184K; entre 1184K et 1665K le Fer change de phase et devient cubique à faces centrées (fcc ~ face centered cubic), en phase γ . Au delà de 1665 K et jusqu'à la température de fusion, le Fer retrouve sa structure bcc (δ -Fe). Une autre phase de fer ' ϵ Fe'' est obtenue à hautes pressions où le Fer devient ' hcp '.

Dans ce travail, le Fer α qui nous intéresse, sa structure est cubique centrée et son paramètre de maille est $2.8662 \text{ \AA}$ à la température ambiante ($T=295 \text{ K}$).

D'autres paramètres de Fe massif sont montrés dans **la table I.2**.

Masse atomique (A)	55.9
Numéro atomique (Z)	26
Structure électronique	[Ar] 3d ⁶ 4s ²
Paramètres de maille (Å)	2.8662
Rayon métallique (Å)	1.27
Point de fusion (°C)	1535
Résistivité à 20 °C (10 ⁻⁸ Ω.cm ⁻¹)	10
Etat magnétique	ferromagnétique
Moment magnétique (μ _B)/atome	2.2
Température de Curie (K)	1043
Aimantation à saturation à température ambiante (G)	1707
Champ coercitif (Oe)	0.01

Table I.2 : Caractéristiques physiques du Fer.

I.8 Travaux antérieurs sur le Fer en couches minces

Cette partie a pour but de présenter les différents travaux effectués sur les couches minces de fer afin d'en définir l'état de l'art actuel.

Ghebouli et al. [23] ont étudié les couches minces de Fe évaporées sur des substrats de Si(111), Si(100) et verre. Les épaisseurs sont dans la gamme 6 à 110 nm, les films ont une texture initiale (110) et quand l'épaisseur augmente cette texture devient faible pour le système Fe/ Si, tandis que pour Fe/verre, la texture devient (211), la résistivité électrique est plus grande dans le système Fe/verre que dans les couches Fe/Si pour la même épaisseur.

Mebarki et al. [24] ont montré que les couches minces de Fe/Si(100) et Fe/ verre déposées par évaporation thermique, présentent une texture $\langle 110 \rangle$ pour Fe/Si et une texture initiale $\langle 100 \rangle$ pour Fe/verre et lorsque l'épaisseur augmente, elle devient $\langle 110 \rangle$.

A. Radkovskaya et al. [25] ont déposé des couches de fer d'épaisseur variant entre 0,1 μm et 1,8 μm sur des substrats de mylar par pulvérisation magnétron. Ils ont trouvé une grande dépendance du champ coercitif et d'aimantation rémanente avec l'épaisseur, et que l'axe de facile aimantation est dans le plan.

Des films minces de fer ont été déposés par Kewei Liu et al. [26] sur des substrats de GaAs(001) par LP-CVD. Les mesures de DRX ont prouvé que tous les films ont un seul pic intense de Fe(110). Les mesures magnétiques ont prouvé que les films sont ferromagnétiques avec un axe facile parallèle à la surface des films et un axe difficile perpendiculaire.

R. Brajpuriya et al. [27] ont étudié les propriétés structurales et magnétiques des multicouches de Fe/Al(10Å). Les résultats suggèrent que ces multicouches montrent une texture (110), et une taille des grains qui augmente avec l'épaisseur. Ils ont trouvé aussi que la rugosité de surface des multicouches augmente avec l'épaisseur puis devient moins prononcée à une épaisseur critique. Les mesures magnétiques montrent un comportement magnétique doux avec une aimantation facile dans le plan, ce comportement étant dû à la faible anisotropie magnétocristalline et à la magnétostriction négligeable.

J.L.Costa- Kramer et al. [28] ont montré que les couches minces de Fe/MgO(001) déposées par pulvérisation à incidence normale, présentent une petite anisotropie magnétique uniaxiale dans le plan qui se superpose à une autre anisotropie cubique biaxiale. Ceci a un effet prononcé sur le processus de renversement de l'aimantation et sur la structure de domaines.

Des films monocristallins (BCC) de Fe ont été stabilisés sur des substrats de GaAs(100) et InAs(100) à température ambiante par Y.B. Xu et al. [29]. Les propriétés magnétiques des films de Fe/GaAs passent par trois phases déterminées par la morphologie de la croissance : une phase non magnétique, une phase superparamagnétique et une phase ferromagnétique. Une anisotropie uniaxiale a été observée pour les couches ultraminces Fe/InAs(100) dans un intervalle de faible épaisseur de l'ordre de 5 à 10 ML. L'axe facile est le long de la direction [011] plutôt que [0-11]. Comme les films ultraminces de Fe ont tendance à être comprimés dans le plan sur GaAs et élargis sur InAs, ce comportement différent d'anisotropie dans le Fe/GaAs (100) et le Fe / InAs (100) montre l'importance des interactions magnéto-élastiques. Dans les multicouches de Fe/Al réalisées par F. D'orazio et al. [30] par pulvérisation magnétron (rf) sur un substrat Si(100), une anisotropie magnétique uniaxiale dans le plan est observée. Le champ coercitif est compris entre 2 et 8 Oe.

J. Swerts et al. [31] ont déposé des couches de Fe (300 Å)/SiO₂ par épitaxie par jet moléculaire (MBE) avec une sous couche d'Argent d'épaisseur (0- 50- 100- 150 Å). La rugosité de la surface de Ag augmente avec l'épaisseur, ainsi le processus de renversement de l'aimantation et la coercivité sont affectés par la rugosité de la surface.

M.A. Morales et al. [32] ont élaboré des multicouches de Fe/Zn sur des substrats de verre et de Kapton par évaporation, dont l'épaisseur de Fe varie entre 10 et 145 Å et l'épaisseur de Zn constante et égale à 20Å. Les mesures de DRX montre un pic de Fe de la phase α lorsque l'épaisseur de Fe >20Å; ils ont trouvé aussi que l'aimantation à saturation diminue avec la diminution de l'épaisseur lorsque l'épaisseur de Fe <20Å.

F. Chemam et al. [33] ont déposé des super-réseaux de Fe/Ag sur des substrats MgO(001) par la technique d'épitaxie par jet moléculaire (MBE). Ils ont montré que les couches de fer déposées sur MgO(001) croissent suivant l'orientation <110>par rapport à la direction <100>du substrat.

Y. Chye et al. [34] ont élaboré des films de Fe/GaAs(001) par épitaxie par jet moléculaire (MBE), ces couches montrent des cycles d'hystérésis carrés. Un axe d'aimantation facile est le long de la direction [110] alors que l'axe difficile sera le long de la direction [-1 1 0].

M. Doi et al. [35] ont déposé des couches de Fe (70 Å)/ GaAs avec une sous couche de ⁵⁷Fe (7.2 Å) isotope. Une anisotropie magnétique uniaxiale le long de la direction [110] est observée et une petite coercivité (≈ 10 Oe).

R. Meckenstock et al. [36] ont travaillé sur les films Fe (001)/ GaAs et Fe(001)/ZnSe qui présentent des pas dans les cycles d'hystérésis. Pour Fe/GaAs le pas est attribué à un rapport critique de 0.58 de l'anisotropie uniaxiale dans le plan et l'anisotropie cristalline, et pour le Fe (60 nm)/ZnSe le pas est causé par les différentes anisotropies en haut et en bas de la surface.

Pyung Woo Jang et al. [37] montrent que les films Fe(001) en croissance épitaxiale sur un substrat Pd(001)/Cu(001)/Si(001) présentent une anisotropie uniaxiale dont l'origine est une déformation orthorhombique. Une phase fcc γ -Fe se forme en haut de la couche à cause des contraintes dans le film.

B. Scholz et al. [38] ont réalisé des multicouches déposées en alternance de Fe (10Å) et de Tb (26Å) sur des substrats en Kapton à la température de 295 K. Les mesures montrent une anisotropie perpendiculaire, interdiffusion de Tb dans Fe, et à 4.2 K les moments magnétiques de Fe sont antiparallèles aux moments de Tb.

Soon C. Hong et al. [39] ont étudié les structures magnétiques des atomes de Fe en croissance sur une surface GaAs(001). Fe est plus stable en présence d'une sous couche.

L'antiferromagnétisme des atomes de Fe est dû à la diffusion des atomes d'Arsenic vers l'extérieur de la surface.

M. Tselepi et al. [40] ont étudié les films ultraminces de Fe(BCC) en croissance épitaxiale sur des substrats InAs à la température ambiante; ils ont trouvé qu'une transition de phase superparamagnétique à une phase ferromagnétique se produit à une épaisseur critique de $3.5 \pm 0.05\text{ML}$.

I. Chiba et al. [41] ont étudié l'effet de la monocristallinité et la polycristallinité des échantillons de Fe/Au avec une sous couche de MgO(001) sur les propriétés structurales et magnétiques. Les analyses ont montré que la rugosité d'interface et/ ou le désordre de la structure du super-réseau sont plus grands dans des échantillons polycristallins que ceux dans les échantillons monocristallins. Ils ont aussi constaté que l'anisotropie magnétique perpendiculaire est très sensible à la morphologie de l'interface, tandis que l'amplitude du moment de Fe et les spectres magnéto-optiques de Kerr ne sont pas sérieusement influencés par la morphologie d'interface.

Références bibliographiques

- [1] A. Layadi, *introduction au magnétisme*, OPU, Alger, 2004.
- [2] K. H. J. Buschow, F. R. De Boer, *Physics of Magnetism and Magnetic materials*, New York, 2004.
- [3] C. Kittel, *physique de l'état solide*, 5^{ème} edition Dunod, (1983).
- [4] B. V. Neamtu, *Thèse de Doctorat de l'Université de Grenoble*, 2010.
- [5] P. Bruno, *Thèse de Doctorat de l'Université de Paris-Sud*, 1989.
- [6] A. Mougin, *Thèse de Doctorat de l'Université de Paris-Sud11*, 2011.
- [7] D. Jiles, *Introduction to magnetism and magnetic materials*, CRC press, 1998.
- [8] G. Bertotti, *Hysteresis in magnetism*, academic press, USA, 1998.
- [9] R.K. Verma, *text book of magnetism*, Discovery Publishing House, Delhi, 2006.
- [10] G.O. Hernandez, *Thèse de Doctorat de l'Université de Toulouse*, 2013.
- [11] A. Hubert, R. Schäfer, *Magnetic domains*, Springer, 2009.
- [12] B. D. Cullity, C. D. Graham, *Introduction to magnetic materials*, IEEE press, 2009.
- [13] A. P. Popa, *Thèse de Doctorat de l'Université de Grenoble*, 2004.
- [14] E. Bonet, *Thèse de Doctorat de l'Université de Grenoble*, 1999.
- [15] J. S. Miller, M. Drillon, *Magnetism: Molecules to Materials III*, Wiley-VCH Verlag GmbH, 2002.
- [16] A. P. Guimaraes, *Magnetism and magnetic resonance in solids*, John Wiley & Sons, 1998.
- [17] M. Ohring, *The Materials Science of Thin Films*, Academic Press, 1992.

- [18] L. Nzoghe Mendomee, *Thèse de Doctorat de l'Université de Reims*, 2007.
- [19] L. Néel, *Le journal de Physique et le Radium*, 17 (1956) 250.
- [20] K. Younsi, *Thèse de Doctorat de l'Université de Paris- Est*, 2011.
- [21] J. P. Nozières, *Ferromagnétisme*, Techniques de l'ingénieur, E1730.
- [22] W. Pepperhoff, M. Acet, *Constitution and Magnetism of Iron and its Alloys*, springer, 2001.
- [23] B. Ghebouli, S.-M. Chérif, A. Layadi, B. Helifa, M. Boudissa, *J. Magn. Magn. Mater*, 312 (2007) 194–199.
- [24] M. Mebarki, A. Layadi, A. Guittoum, A. Benabbas, B. Ghebouli, M. Saad, N. Menni, *Appl. Surf. Science*, 257 (2011) 7025–7029.
- [25] A. Radkovskaya, N. Perov, A. Sivov, A. Getman, N. Sudarikova, *J. Magn. Magn. Mater*, 258-259 (2003) 57–60.
- [26] Kewei Liu, Dezhen Shen, Jiying Zhang, Xiaojie Wu, Binghui Li, Bingsheng Li, Youming Lu, Xiwu Fan, *Solid State Communications*, 140 (2006) 33–37.
- [27] R. Brajpuriya, S. Tripathi, A. Sharma, T. Shripathi, and S.M. Chaudhari, *Eur. Phys. J. B51*, 131–136 (2006).
- [28] J.L. Costa-Kramer, J.L. Menéndez, A. Cebollada, F. Briones, D. Garcia, A. Hernando, *J. Magn. Magn. Mater*, 210 (2000) 341-348.
- [29] Y.B. Xu, E.T.M. Kernohan, D.J. Freeland, M. Tselepi, A. Ercole, J.A.C. Bland, *J. Magn. Magn. Mater*, 198-199 (1999) 703-706.
- [30] F.D'Orazio, G.Gubbiotti, F.Lucari, E.Tassoni, *J. Magn. Magn. Mater*, 242–245 (2002) 535–537.
- [31] J. Swerts, K. Temst, N. Vandamme, C. Van Haesendonck, Y. Bruynseraede, *J. Magn. Magn. Mater*, 240 (2002) 380–382.

- [32] M.A. Morales,, H. Lassri, H.D. Fonseca Filho, A.M. Rossi, E. Baggio-Saitovitch, , *J. Magn. Magn. Mater*, 256 (2003) 100–105.
- [33] F. Chemam ,R. Halimi ,A.Bouabellou ,M.-F. Mosbah, *Sciences & Technologie – N°12*, Décembre (1999).
- [34] Y. Chye, V. Huard, M.E. White, B. Gerardot, P.M. Petroff, *Physica E 13* , (2002) 1135–1138.
- [35] M. Doi, B.Roldan Cuenya, W. Keune, T. Schmitte, A. Nefedov, H. Zabel, D. Spoddig, R. Meckenstock, J. Pelzl,, *J. Magn. Magn. Mater*, 240 (2002) 407–409.
- [36] R. Meckenstock, D. Spoddig, K. Himmelbauer, H. Krenn, M. Doi, W. Keune, Z. Frait, J. Pelzl, , *J. Magn. Magn. Mater*, 240 (2002) 410–413.
- [37] Pyung Woo Jang, Won Tae Kim, Tae Won Choi, Seong-Cho Yu, Jongryul Kim, *J. Magn. Magn. Mater*, 215-216 (2000) 557-559.
- [38] B. Scholz, R.A. Brand, W. Keune , U. Kirschbaum, E. F. Wassermann, K. Mibu, and T. Shinjo, *J. Magn. Magn. Mater*, 93 (1991) 499-502.
- [39] Soon C. Hong, Moon S. Chung, Byung-G. Yoon, Jae I. Lee, *J. Magn. Magn. Mater* 239 (2002) 39–41.
- [40] M. Tselepi, Y.B. Xu, D.J. Freeland, T.A. Moore, J.A.C. Bland, *J. Magn. Magn. Mater*, 226-230 (2001) 1585-1587.
- [41] I. Chiba, K. Himi, K. Saito, S. Mitani, K. Takanashi, K. Hayata, K.Sato, H. Fujimori, *J. Magn. Magn. Mater*, 226-230 (2001) 1720-1721.

Chapitre III

Techniques expérimentales

II.1 Introduction**II.2 Techniques expérimentales d'élaboration des couches minces****II.2.1 Dépôt chimique en phase vapeur (CVD)****II.2.2 Méthode Sol- Gel****II.2.3 Electrodeposition****II.2.4 Pulvérisation cathodique****II.2.5 Epitaxie par jet moléculaire (MBE)****II.2.6 Ablation Laser (PLD)****II.3 Evaporation sous vide****II.3.1 Description de l'évaporateur**

- Chambre de travail
- Groupe de pompage
- Système de mesure
- Système d'alimentation
- Système de commande

II.4 Techniques expérimentales de caractérisation**II.2.1 Profilomètre mécanique****II.2.2 Diffraction des rayons X (DRX)****II.4.3 Microscopie à force atomique (AFM)****II.4.4 Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)****II.5 Conclusion****Références bibliographiques**

II.1 Introduction

Les couches minces sont des fines pellicules de matériau d'épaisseur fortement réduit déposée sur un support que l'on appelle substrat. Ces couches présentent des propriétés physico-chimiques inexistantes dans les matériaux à l'état massif; ces propriétés dépendent fortement des conditions et des méthodes de dépôt.

Dans ce chapitre, nous allons décrire les méthodes pour élaborer des couches minces, en précisant la méthode utilisée pour élaborer nos échantillons, ainsi que les différents paramètres expérimentaux qui influent sur la qualité de notre dépôt. Par la suite nous passerons aux techniques expérimentales utilisées pour leur caractérisation structurale et magnétique.

II.2 Techniques expérimentales d'élaboration des couches minces

Il existe de nombreuses techniques de dépôt des couches minces qui sont réparties en deux grandes classes, dépôts chimiques et dépôt physiques.

- **Dépôts chimiques** : le dépôt se fait par réaction chimique à la surface du substrat. Le matériau à déposer est utilisé sous forme de solution gazeuse (dépôt chimique en phase vapeur CVD) ou liquide (tels que l'électrodéposition et le sol-gel).
- **Dépôts physiques** : le matériau à déposer est sublimé afin d'obtenir un gaz qui pourra être condensé à la surface du substrat. Citons l'évaporation sous vide, l'épitaxie par jet moléculaire, l'ablation laser et la pulvérisation.

Généralement, ces techniques nécessitent d'être réalisées sous vide, afin que le matériau, sous phase vapeur, puisse atteindre la surface du substrat sans avoir réagi avec d'autres éléments.

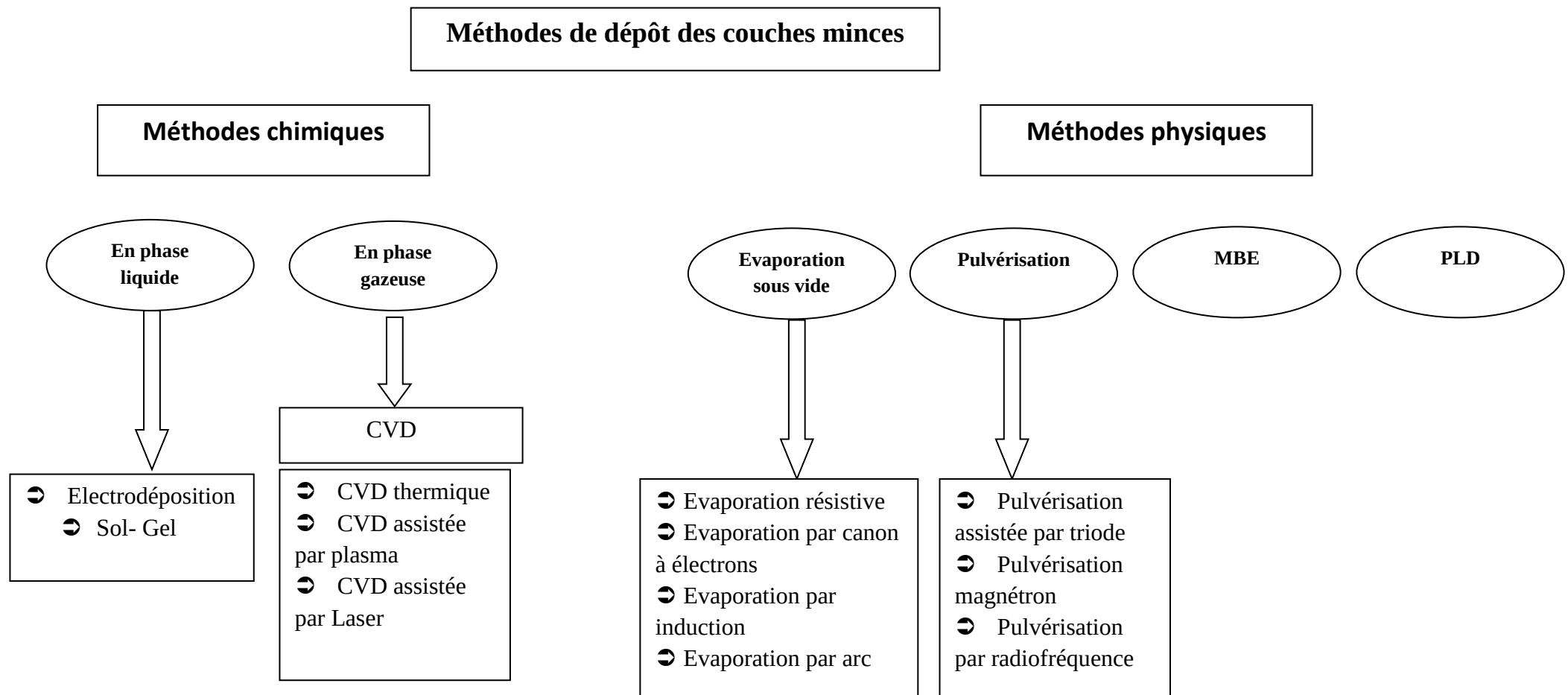


Figure II.1 : Les méthodes de dépôt des couches minces.

II.2.1 Dépôt chimique en phase vapeur (CVD)

Le dépôt chimique en phase vapeur (CVD pour chemical vapor deposition) est une technique qui consiste à mettre en réaction chimique un composé volatil du matériau à déposer, avec un autre gaz, pour produire un solide non volatile qui se dépose sur un substrat. Les dépôts par la technique CVD sont utilisés dans la fabrication des appareils électroniques tel que l'industrie des semi-conducteurs, la fabrication des diodes lumineuses et pour la fabrication des pièces massives telles que des creusets et des tubes en tungstène. Il existe plusieurs types de CVD, comme la CVD assistée par laser, la CVD thermique et la CVD assistée par plasma (PCVD). [1]

II.2.2 La méthode Sol-Gel

Le procédé Sol-Gel est utilisé pour fabriquer des couches minces d'oxydes métalliques ou des verres [2]. Il permet l'élaboration de matériaux à partir de précurseurs moléculaires en solution, par une suite de réactions chimiques à une température proche de la température ambiante [3].

Le dépôt des couches minces par la méthode sol-gel peut être réalisé par les méthodes de dip-coating (trempage-retrait), spin-coating (enduction-centrifuge) ou de dépôt micro-gouttes [4].

II.2.3 L'électrodéposition

L'électrodéposition est une technique simple utilisée pour l'élaboration des couches métalliques. Elle consiste à élaborer le matériau à partir de bain électrolytique contenant les éléments du composé sous forme d'ions. Lors de l'application d'un potentiel convenable entre deux électrodes, les particules chargées positivement sont attirées pour former un lien physique, suivi d'un phénomène d'adsorption qui fixe en permanence les particules à la surface de la cathode qui constitue le substrat [2].

II.2.4 La pulvérisation cathodique

La pulvérisation cathodique est une technique de dépôt des couches minces découverte en 1852 par Groove [1]. Elle est utilisée pour déposer toutes sortes des matériaux : métaux, métaux réfractaires, diélectriques, et céramiques [5].

Cette technique consiste à bombarder la surface d'un matériau par les ions d'un gaz neutre, très souvent l'argon, et de transférer ces atomes éjectés qui vont se déposer sur les substrats.

Il existe différentes variantes et améliorations de la pulvérisation cathodique :

- Pulvérisation cathodique DC
- Pulvérisation cathodique RF
- Pulvérisation magnétron [6]

II.2.5 L'Épitaxie par Jet Moléculaire

L'épitaxie par jet moléculaire (MBE pour Molecular Beam Epitaxy) est une technique très importante dans l'industrie des semi-conducteurs. Son principe consiste à évaporer sur un substrat où la température est contrôlée, un matériau à l'aide d'une cellule de Knudsen ou par bombardement électronique. Cette technique se caractérise par un rythme de croissance très lent (de l'ordre d'une monocouche par seconde), ce qui permet la croissance des couches de très grande qualité cristalline. Le système nécessite un vide très poussé (aux alentours de 10^{-11} Torr) [6, 7].

II.2.6 L'ablation laser

L'ablation laser (PLD pour Pulsed Laser Deposition) est une technique de dépôt qui consiste à focaliser un faisceau laser pulsé sur un matériau, dans le but de le vaporiser, puis de condenser les particules ionisées sur un substrat dans une enceinte sous vide. Elle est utilisée pour le dépôt des couches supraconductrices à T_c élevée, des couches diélectriques très cristallisées, et des couches épitaxiées de semiconducteurs composés [8].

II.3 L'Évaporation sous vide

Cette technique consiste à chauffer le matériau que l'on veut déposer, afin que l'agitation thermique des atomes soit suffisante pour qu'ils puissent être libérés et puissent former une phase vapeur du matériau. Le matériau évaporé est déposé par la condensation sur le substrat à recouvrir, et donc une couche mince de ce matériau sera formée sur le substrat. Cette technique nécessite un vide poussé pour faciliter l'évaporation du matériau source et minimiser tous les risques de contamination [6-8].

L'évaporation se scinde en différentes techniques suivant le mode de chauffage du matériau évaporé, les plus utilisés sont [8, 9]:

- **Evaporation résistive (par effet Joule)**

Le matériau à vaporiser est chauffé à une température suffisamment élevée par effet joule. Les sources d'évaporation les plus simples sont représentées dans la figure II.2, qui sont des métaux réfractaires tels que : Tungstène(W), Tantale(Ta),...

- **Evaporation par canon à électrons**

Le matériau à évaporer est placé dans un creuset en cuivre refroidi par eau, où il est bombardé par un faisceau d'électrons. L'énergie des électrons de bombardement entraîne la fusion locale du matériau, puis son évaporation.

- **Evaporation par induction**

Dans ce cas, le matériau à évaporer est mis dans un creuset diélectrique entouré d'une bobine alimentée en courant alternatif de haute fréquence, ce qui induit un courant électrique dans le matériau qui sera chauffé.

- **Evaporation par arc**

L'évaporation est réalisée par une décharge électrique entre la cathode (le creuset) et l'anode.

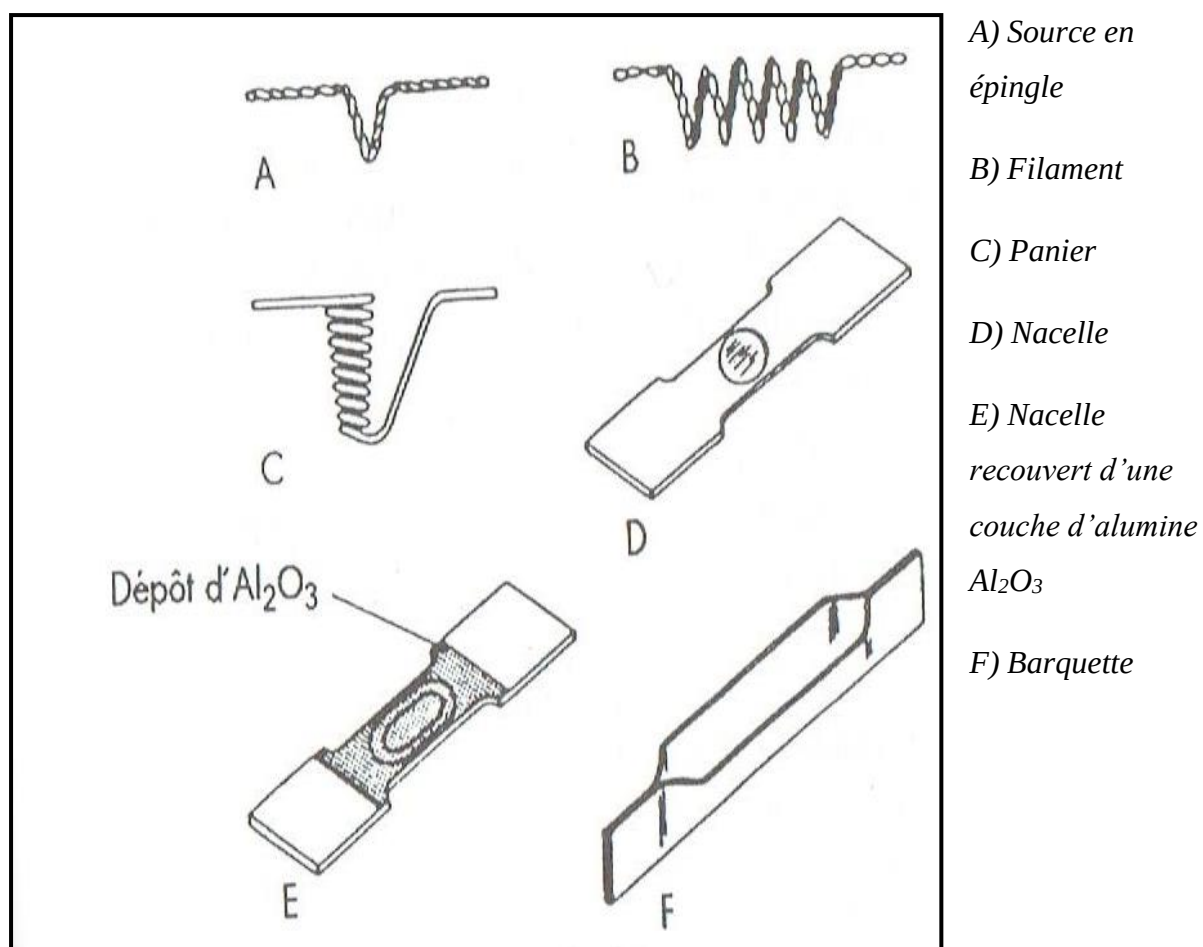


Figure II.2 : Sources à résistances.

II.3.1 Description de l'évaporateur

L'élaboration de nos couches se fait par l'évaporation sous vide par effet Joule. L'évaporateur utilisé dans ce travail est constitué de 5 parties :

- ✓ Chambre de travail
- ✓ Groupe de pompage
- ✓ Système de mesure
- ✓ Système d'alimentation
- ✓ Système de commande



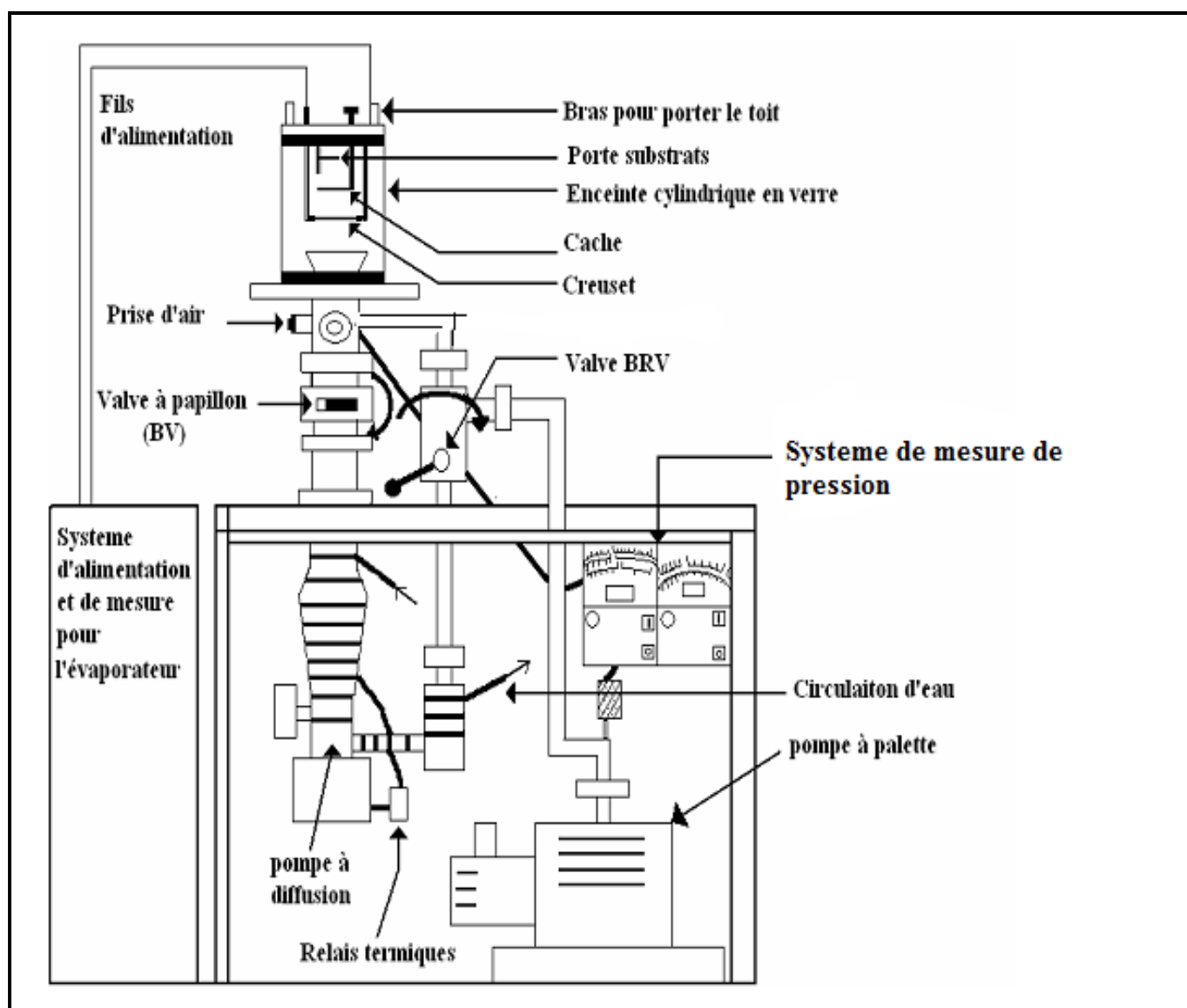


Figure II.3 : Bâti d'évaporation.

Chambre de travail :

Une enceinte en forme de cloche en verre, avec deux joints en caoutchouc, graissés à l'extrémité et qui assurent l'étanchéité. A l'intérieur de l'enceinte on peut créer un vide de 10^{-7} mbar. On trouve dans l'enceinte :

- Un porte substrat en acier, démontable, fixé sur le toit.
- Un creuset de tungstène recouvert d'une couche d'alumine fixé par deux bras métalliques et terminé par deux fils en cuivre et relié au système d'alimentation.
- Un cache mobile, qui est une tôle métallique, est placé entre le porte substrat et le creuset. Il est fixé à un bras mobile de l'extérieur.

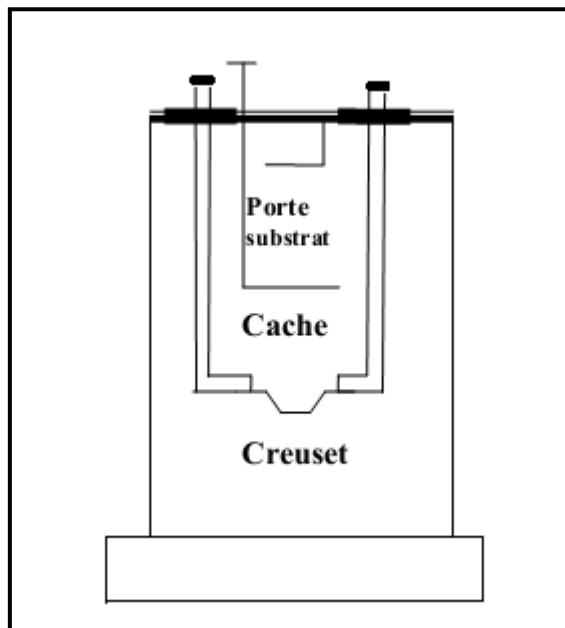


Figure II.4 : *Chambre de travail.*

Groupe de pompage :

Afin d'assurer un niveau de propreté élevée dans la chambre de travail, un vide est créé par deux pompes montées en série et raccordées à la partie inférieure de l'enceinte.

➤ *Une pompe à palettes* : c'est une pompe rotative constituée d'un rotor et un stator muni de plusieurs lames (palettes). Lorsque le rotor tourne, il aspire de l'air à partir de l'orifice d'entrée de la pompe, ce volume d'air aspiré sera évacué vers l'atmosphère par l'orifice de sortie. Cette pompe assure un vide primaire entre 10^{-2} et 10^{-3} mbar dans l'enceinte et la pompe à diffusion d'huile (figure II.5).

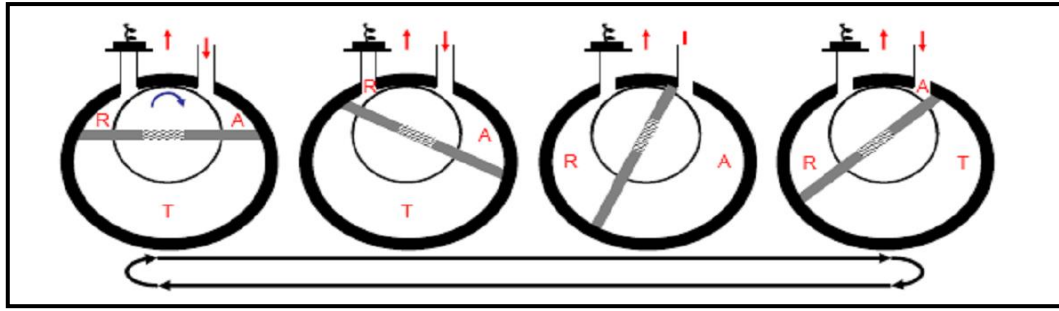


Figure II.5 : Principe de la pompe à palettes.

➤ Une pompe à diffusion d'huile : son principe est de réaliser un jet de vapeur en portant à ébullition une huile minérale. Les vapeurs vont fixer les molécules et se condensent grâce à un système de refroidissement à l'eau. L'huile redescend vers la partie chaude en descendant les molécules d'air fixées qui sont évacuées vers la pompe à palettes. Cette pompe assure un vide secondaire entre 10^{-7} et 10^{-8} mbar dans l'enceinte (figure II.6).

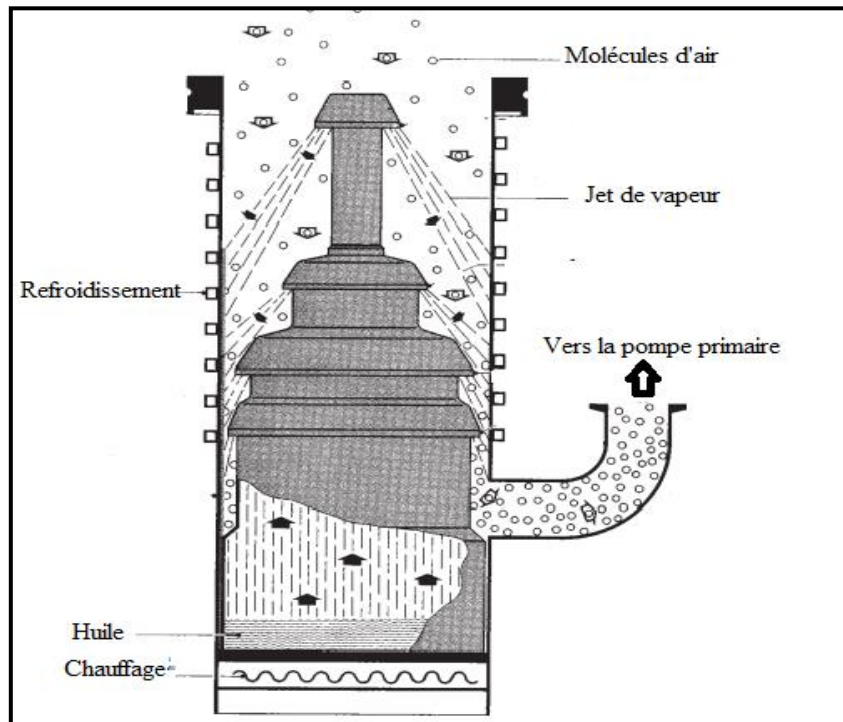


Figure II.6 : Principe de la pompe à diffusion d'huile.

Système de mesure :

Les mesures de pression dans la chambre se font par deux jauges :

➤ Jauge Pirani : elle permet de mesurer un vide primaire entre 1 et 10^{-3} mbar.

- Jauge Penning : elle permet de mesurer un vide secondaire entre 10^{-3} et 10^{-7} mbar.

Système d'alimentation électrique :

Pour évaporer la matière déposée dans le creuset, ce dernier sera connecté à deux serre-fils massifs en cuivre reliés à un système électrique délivrant un courant électrique de l'ordre de 10 A au primaire.

Système de commande:

Vanne BRV (Backing Roughing Valve)

C'est une vanne qui met en communication la pompe primaire tantôt avec l'enceinte et tantôt avec la pompe à diffusion d'huile.

- Vanne papillon (Butterfly Valve)

C'est une vanne qui permet d'isoler la pompe à diffusion de l'enceinte, lors de l'amorçage du vide ou lors de l'entrée de l'air.

- Prise d'air

C'est une vanne qui met l'enceinte à la pression atmosphérique.

Il existe plusieurs facteurs expérimentaux qui vont avoir une influence sur la qualité du dépôt et qu'il faut prendre en considération avant l'évaporation, tels que [8]:

- Le vide dans la chambre : il doit être le plus poussé possible.
- La forme de la source d'évaporation : elle doit être choisie selon la quantité de matériau à évaporer que peut contenir la source.
- La distance entre le creuset et le substrat: elle doit être la plus grande possible, pour assurer au mieux l'uniformité de l'épaisseur du dépôt sur le substrat.
- La répartition symétrique des substrats sur le porte substrat, pour assurer la même épaisseur sur tous les substrats.

II.4 Techniques expérimentales de caractérisation

II.4.1 Profilomètre mécanique

Le profilomètre mécanique est un outil qui permet de mesurer l'épaisseur d'une couche mince, la rugosité d'une surface, et ainsi le stress induit. Son principe est de mesurer la variation de hauteur d'une pointe en diamant (stylet) qui se déplace horizontalement sur la surface de l'échantillon. L'enregistrement du profil de l'échantillon est assuré par une caméra fixée sur le dispositif de pointage. Un ordinateur relié au dispositif et équipé d'un logiciel permet l'affichage des résultats sous forme d'un profilogramme.

Pour mesurer l'épaisseur de nos couches minces, il est nécessaire de masquer une partie de notre substrat lors de dépôt, pour créer une marche entre ce dernier et la couche déposée.

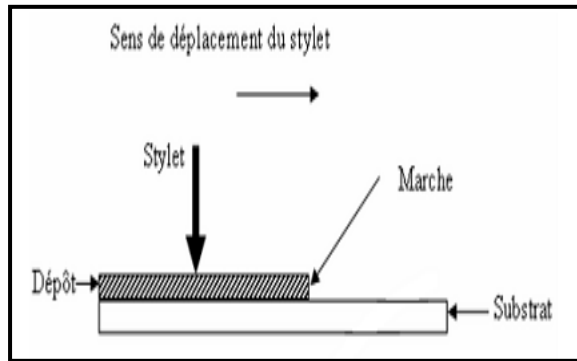
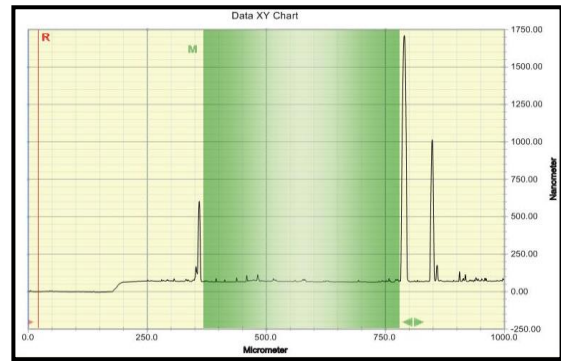


Figure II.7: a) Principe du profilomètre



b) Profil établi sur un échantillon comportant une marche créée durant le dépôt.

II.4.2 Diffraction des rayons X (DRX)

La diffraction des rayons X est une technique de caractérisation privilégiée pour l'étude de dépôt des couches minces. Cette technique non destructive permet d'identifier les phases cristallines et de mesurer certaines propriétés, telles que le paramètre de maille, les distances entre plans cristallins, la taille des grains, l'orientation préférentielle, ...

Le principe de la diffraction des rayons X consiste à envoyer un faisceau de rayons X monochromatique produit par un générateur à anticathode sur l'échantillon à analyser. Lorsque le faisceau des rayons X frappe l'échantillon, il aura une réflexion par les atomes du réseau. Il faut en effet que les ondes réfléchies soient en phase de sorte à interférer de manière constructive pour être ensuite mesurées par le détecteur, comme il est illustré à la figure II.8.

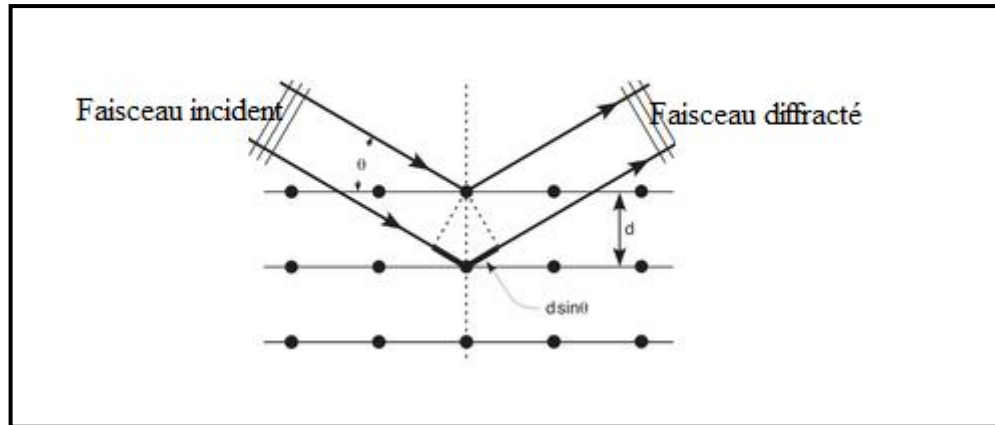


Figure II.8 : Illustration de la diffraction des rayons X (loi de Bragg)

Les conditions nécessaires à cette interférence constructive sont données par la loi de Bragg :

$$2d_{hkl} \sin \theta = n\lambda$$

Avec d_{hkl} : la distance entre les plans (hkl) d'un réseau cristallin.

θ : l'angle entre le faisceau de rayon X incident et la normale au plan (hkl),

n : l'ordre de la réflexion,

λ : la longueur d'onde [10-11].

Détermination de la taille de grains : formule de Scherrer

En général, la taille des cristallites est déterminée en mesurant la largeur à mi-hauteur du pic de Bragg et en utilisant la formule de Scherrer en première approximation donnée ci-dessous. Cette formule montre que l'élargissement (caractérisé par la largeur intégrale) est inversement proportionnel à la dimension apparente des domaines de diffraction cohérente (B) [11]:

$$B = \frac{K\lambda}{\Delta(2\theta) \cos \theta}$$

B: la taille des cristallites,

K : constante de Scherrer dont la valeur dépend de la forme des cristallites (généralement proche de 1)

λ : la longueur d'onde,

$\Delta(2\theta)$: la largeur à mi-hauteur du pic de Bragg d'intensité maximale.

θ : position du pic.

➤ La distorsion (la microcontrainte) peut aussi être évaluée selon la relation de Stokes-Wilson [12]:

$$\varepsilon = \frac{\Delta d}{d} = \frac{\beta}{4 \tan \theta}$$

ε : distorsion,

β : Largeur integrale.

II.4.3 Microscopie à force atomique

Le microscope à force atomique a été inventé en 1986 par Benning, Quate et Gerber[13-15]. Il sert à visualiser la topographie de surface d'un échantillon, et au-delà on peut avoir des renseignements sur la morphologie de la surface et aussi la rugosité de la surface analysée.

Principe de la microscopie AFM

Cette technique consiste à mesurer les forces d'interaction (attraction ou de répulsion) entre les atomes d'une pointe et ceux de la surface d'un matériau. Un faisceau laser est dirigé sur la pointe, et lorsque l'échantillon est déplacé, la hauteur de la pointe varie suivant la topographie de l'échantillon ce qui provoque le mouvement du faisceau réfléchi du laser. Le mouvement de ce faisceau est dirigé vers une photodiode qui enregistre le signal lumineux. On distingue deux modes d'utilisation de du microscope AFM et qui sont schématisés sur la figure II.9.

➤ *Le mode contact*

Il consiste à mettre en contact la pointe et la surface de l'échantillon, les nuages électroniques des atomes de la pointe appuient sur les nuages électroniques des atomes situés en surface de la zone analysée créant une force répulsive. Les variations des forces de répulsion imposées par le relief sont alors exploitées pour enregistrer des images.

➤ *Le mode vibrant*

Dans ce mode, la sonde frôle la surface sans la toucher. Le cantilever oscille sur la surface de l'échantillon à une fréquence proche de sa fréquence de résonance. Le gradient des forces de van der Waals, dues à l'interaction entre la pointe et la surface de l'échantillon modifie alors la réponse en fréquence et l'amplitude d'oscillation du ressort. Dans ce cas, la morphologie est obtenue soit en enregistrant la modification d'amplitude d'oscillation à une fréquence donnée

(technique de modulation d'amplitude), soit le déplacement de la fréquence de résonance (technique de modulation de fréquence).

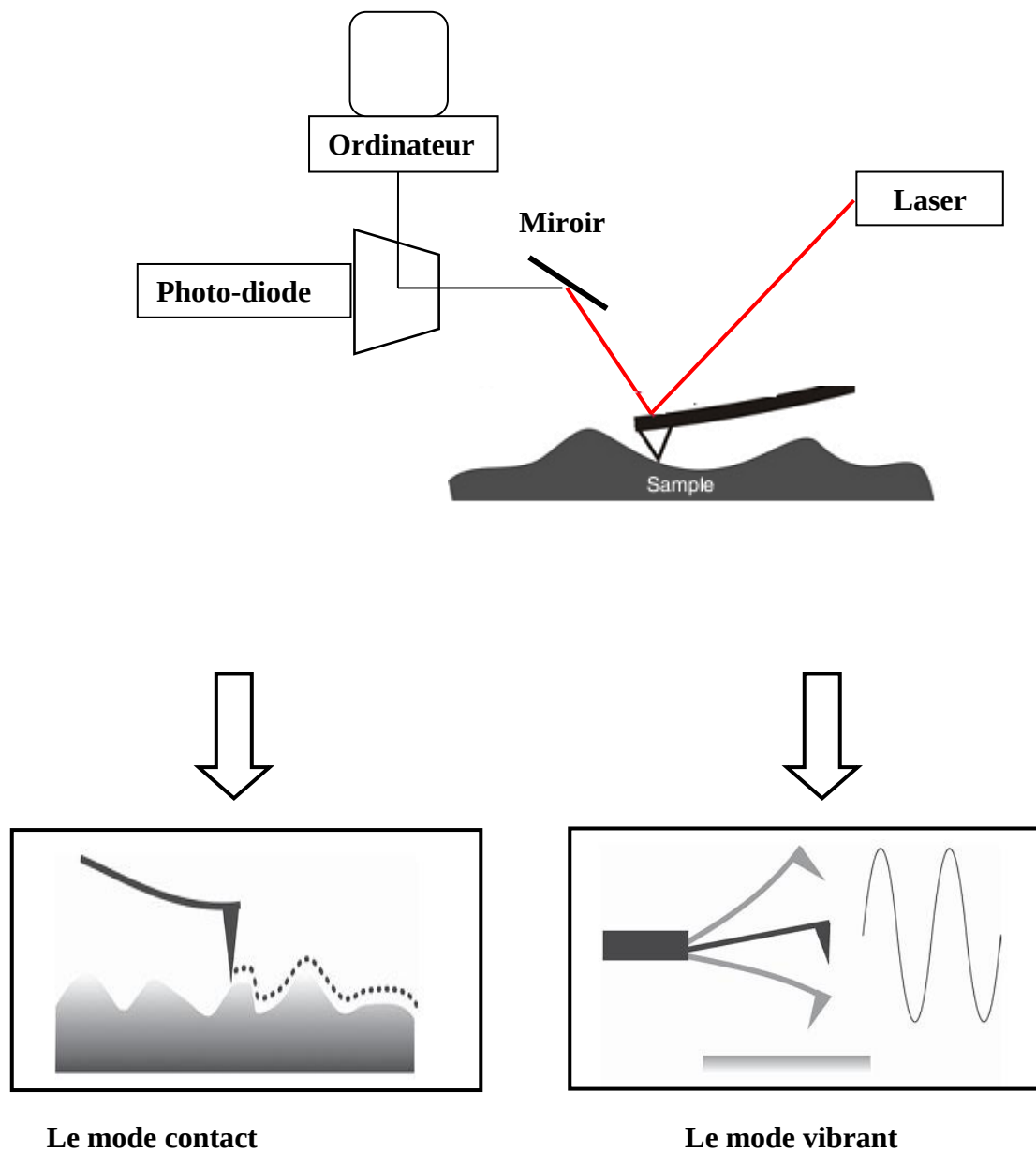


Figure II.9 : Principe de fonctionnement d'un microscope à force atomique.

II.4.4 Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)

Ce magnétomètre (VSM « Vibrating Sample Magnetometer ») permet de mesurer directement l'aimantation d'un échantillon en fonction du champ appliqué; il permet aussi de déterminer les propriétés magnétiques des couches minces. Le principe de cet appareil est de mesurer le flux induit F dans un bobinage par un déplacement périodique de l'échantillon. Plus précisément, on fait vibrer verticalement (axe z) à une fréquence f un échantillon placé au centre d'un bobinage de mesure avec une amplitude constante. La tension e induite dans les bobines de détection par un échantillon de moment magnétique μ est obtenue à partir du théorème :

$$F = \left(\frac{B}{I}\right)\mu$$

Où B est le champ magnétique qui serait produit par un courant fictif I circulant dans les bobines de détection. La tension induite e est donnée par la relation :

$$e = \frac{dF}{dt} = -\mu d \frac{B/I}{dz} \frac{dz}{dt}$$

L'un des intérêts de cette méthode de mesure est sa rapidité car les dérives parasites gênantes sont des signaux pseudo continus facilement éliminés par la détection synchrone (figure II.10). [16-17]

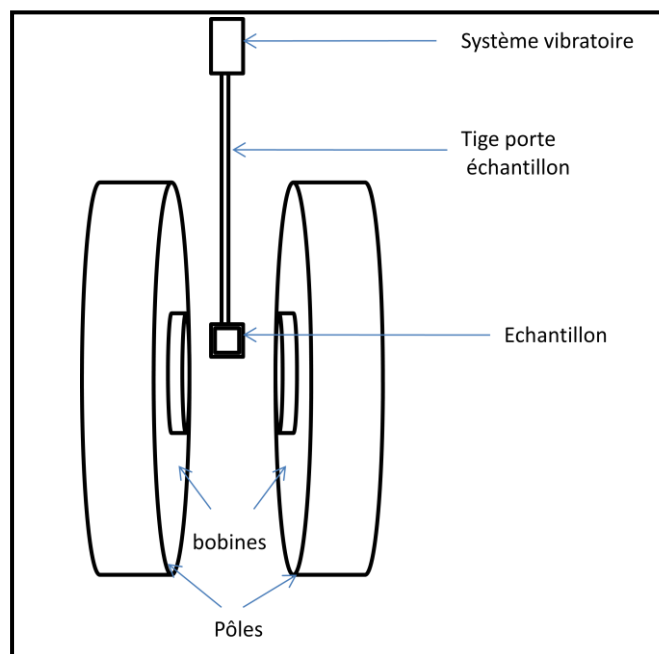


Figure II.10 : Principe de fonctionnement d'un VSM.

Le champ magnétique extérieur peut être appliqué dans le plan du film ou perpendiculaire au film comme il est illustré à la figure II.11.

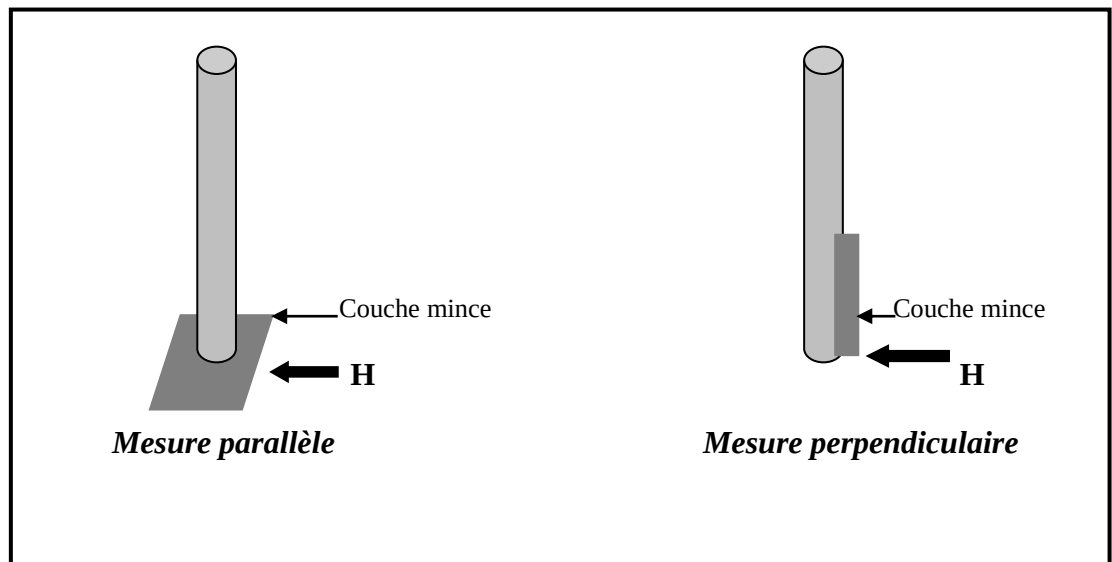


Figure II.11 : Configurations de mesure dans le VSM.

II.5 Conclusions

Nous avons passé en revue, en premier lieu de ce chapitre, les différentes méthodes d'élaboration d'une couche mince, telles que la pulvérisation, l'épitaxie par jet moléculaire, l'électrodéposition ... Ainsi, nous avons exposé la méthode d'évaporation sous vide utilisée pour l'élaboration de nos échantillons.

En second lieu, nous avons décrit les techniques de caractérisations utilisées pour étudier les propriétés structurales, morphologiques et magnétiques de nos couches minces de Fer.

Références bibliographiques

- [1] M. Ohring, *The Materials Science of Thin Films*, Academic Press, 1992.
- [2] R. Boudissa, *Thèse de Magister de l'Université de Constantine*, 2011.
- [3] F. Choueikani, *Thèse de Doctorat de l'Université de Saint- Etienne*, 2008.
- [4] Plinio Innocenzi, *The Sol to Gel Transition*, Springer, 2016.
- [5] E. Defay, *Thèse de Doctorat de l'Université de Lyon*, 1999.
- [6] H.H. Gatzert, *Micro and Nano Fabrication*, Springer, 2015.
- [7] G.O. Hernandez, *Thèse de Doctorat de l'Université de Toulouse*, 2013.
- [8] A. Richardt, I. Richardt, *Les évaporations sous vide*, Edition INFINE Paris, 2000.
- [9] H.Frey, H.R. Khan, *Handbook of Thin Film Technology*, Springer, 2015.
- [10] H. Lüth, *Solid Surfaces, Interfaces and Thin Films*, Springer, 2015.
- [11] H. Borchert, *Solar Cells Based on Colloidal Nanocrystals*, Springer International Publishing Switzerland, 2014.
- [12] R.E. Smallman, R. J. Bishop, *Modern Physical Metallurgy and Materials Engineering*, Elsevier Science Ltd, 1999.
- [13] G.C.K. Roberts, *Encyclopedia of Biophysics*, European Biophysical Societies Association (EBSA), 2013.
- [14] P. C. Braga, D. Ricci, *Atomic Force Microscopy*, Humana press, 2004.
- [15] F. Marinello, *Encyclopedia of Production Engineering*, 2014.
- [16] B. D. Cullity, C. D. Graham, *Introduction to magnetic materials*, IEEE press, 2009.
- [17] L. Nzoghe Mendomee, *Thèse de Doctorat de l'Université de Reims*, 2007.

Chapitre III

Propriétés structurales

III.1 Introduction**III.2 Elaboration des couches minces de Fer****III.2.1 Présentation des substrats de dépôt****III.2.2 Conditions d'élaboration****III.2.3 Mesure de l'épaisseur****III.3 Analyse de la structure des couches minces de Fer****III.3.1 Structure cristalline**

- Spectres de DRX des échantillons de Fe/Si (100)
- Spectres de DRX des échantillons de Fe/Si (111)
- Spectres de DRX des échantillons de Fe/Cu

III.3.2 Texture**III.3.3 Paramètre de maille****III.3.4 Contraintes suivant l'orientation (110)****III.3.5 Taille des grains****III.4 Morphologie et topographie des couches minces de Fer****III.4.1 La morphologie****III.4.2 La topographie****III.5 Conclusions****Références bibliographiques**

III.1 Introduction

L'étude des propriétés structurales, morphologiques ou topographiques telles que la texture ou l'orientation préférentielle, la taille des grains, le paramètre de maille et la distance interréticulaire, les contraintes...est essentielle dans l'étude des couches minces, d'une part, pour comprendre les processus de croissance des matériaux en couches minces, et d'autre part, pour connaître leur influence sur les propriétés physiques (magnétiques, électriques, mécaniques...).

Dans le but d'étudier les propriétés structurales et morphologiques des couches minces de Fer, une série de ces dernières est déposée sur trois types de substrat, Si(100), Si(111) et Cu. Les spectres de diffraction de rayons x ont été obtenus au Centre de Recherche Nucléaire de Ain Ouassara, par un diffractomètre X'Pert Pro MPD (Panalytical), et les images de la morphologie des couches ont été observées par microscopie à force atomique à l'Université Ferhat Abbas Sétif1. Dans ce chapitre, après avoir précisé les conditions d'élaboration des couches minces de Fer, nous étudierons les effets de l'épaisseur et le type de substrat sur :

- La structure cristalline ainsi que la texture des couches minces de Fer.
- La taille des grains, le paramètre de maille, et la contrainte
- La morphologie des couches minces.

III.2 Elaboration des couches minces de Fer

III.2.1 Présentation des substrats de dépôt

- ***Le substrat de silicium***

Le Silicium est couramment utilisé comme substrat pour la croissance de couches minces. Il est disponible et bon marché relativement à d'autres substrats.

Le Silicium cristallise dans la structure diamant qui est constituée de l'imbrication de deux réseaux cubiques à faces centrées (CFC) décalés l'un par rapport à l'autre de $(1/4, 1/4, 1/4)$ avec un paramètre de maille de 0,357 nm. Dans cette étude, nous avons utilisé deux types de substrats de Si :

Si(100) : c'est-à-dire un cristal de Silicium orienté parallèlement au plan (100).

Si(111) : c'est-à-dire un cristal de Silicium orienté parallèlement au plan (111).

Les deux substrats sont des lames avec une surface vicinale, une épaisseur de 500 μm , et une résistivité $> 500 \mu\Omega\cdot\text{cm}$.

- **Le substrat de cuivre :**

Les substrats de cuivre sont des pastilles de 0,5 cm de diamètre, polycristallines, de structure cubique à faces centrées, avec un paramètre de maille de 0,362 nm, et une résistivité de 1,7 $\mu\Omega\cdot\text{cm}$.

III.2.2 Conditions d'élaboration

Nos échantillons ont été réalisés par la technique de l'évaporation sous vide par effet Joule au laboratoire d'Etudes des Surfaces et d'Interfaces des Matériaux Solides (LESIMS), du Département de Physique de la Faculté des Sciences de l'Université Ferhat Abbas Sétif1.

Avant l'évaporation, le porte substrat, le cache, et les tiges de connexion sont dégraissées et nettoyées de leurs impuretés par l'eau, frottés par du papier verre, puis par nettoyage chimique à l'éthanol. Ensuite ces accessoires sont rincés avec de l'eau distillée. Les substrats sont fournis nettoyés et prêts à l'emploi.

Le matériau à évaporer est une poudre de fer (pure à 99,99%), déposée en petite quantité dans un creuset en tungstène placé à une distance de 8 cm du porte substrat. Le porte substrat et le creuset sont séparés par un cache mobile. Une fois le système mis en place, le groupe de pompage est mis en service pendant des heures. Lorsque la pression de base atteint une valeur de l'ordre de 10^{-7} mbar on envoie un courant électrique à travers le creuset. On fait varier la tension du courant jusqu'à ce que le creuset commence à rougir. Pendant l'évaporation la pression est égale $2 \cdot 10^{-6}$ mbar (pression de travail). On déplace le cache pour obtenir la condensation des atomes de Fe sur les substrats. On laisse le matériau s'évaporer pendant des durées déterminées, puis on ferme le cache.

Dans ce travail, nous avons réalisé sept (07) dépôts; dans chaque dépôt, nous avons élaboré trois (03) échantillons, la table ci- dessous illustre les paramètres de chaque dépôt.

numéro de dépôt	temps de dépôt (S)	pression avant le dépôt (mbar)	pression d'évaporation (mbar)	la tension (V)
01	30	10^{-7}	$2 \cdot 10^{-6}$	230
02	60	10^{-7}	$2 \cdot 10^{-6}$	200
03	120	$8 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-6}$	270
04	90	10^{-7}	$4 \cdot 10^{-6}$	275
05	100	10^{-7}	$3 \cdot 10^{-6}$	275
06	60	$8 \cdot 10^{-7}$	$3 \cdot 10^{-6}$	274
07	180	$8 \cdot 10^{-7}$	$2 \cdot 10^{-6}$	273

Table III.1 : Les paramètres de dépôt des couches de Fer.

III.2.3 Mesure de l'épaisseur

Les mesures d'épaisseur des couches minces de Fer élaborées, ont été menées au moyen d'un profilomètre mécanique Dektak 150, à l'Université Abderrahmane Mira de Béjaia. Les valeurs des épaisseurs obtenues sont présentées dans **la table III.2**

Numéro de dépôt	1	2	3	4	5	6	7
Epaisseur (nm)	48	27	13	22	52	15	69

Table III.2 : Les épaisseurs des couches minces de Fer de chaque dépôt.

III.3 Analyse de la structure des couches minces de Fer

III.3.1 Structure cristalline

Les mesures de diffraction des rayons X ont été effectuées à température ambiante sur un diffractomètre X'Pert Pro MPD (Panalytical) au Centre de Recherche Nucléaire de Berin CRNB. La puissance utilisée est de 1,2 Kw (30 KV et 40 mA), le rayonnement utilisé est celui du cuivre de longueur d'onde $\lambda=1,54056\text{\AA}$ avec un filtre Nickel. La géométrie de mesure est la configuration Θ - 2Θ , c'est-à-dire que l'échantillon tourne d'un angle Θ tandis

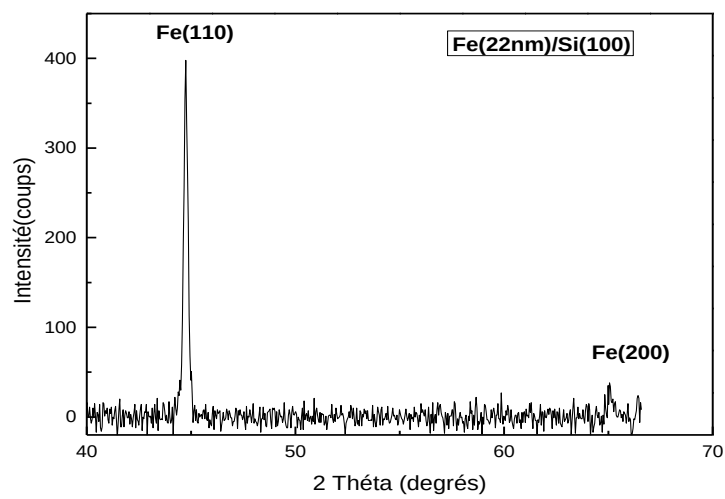
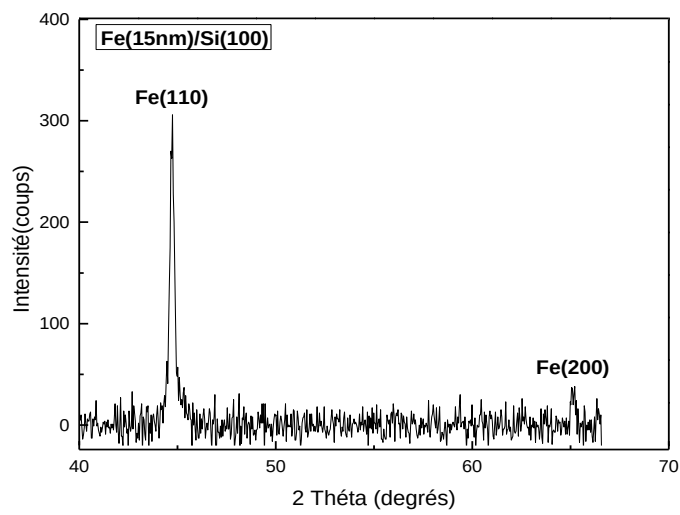
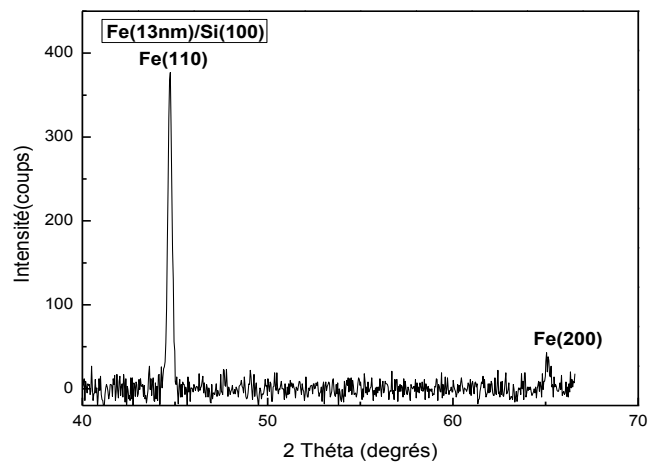
que le détecteur tourne d'un angle 2Θ . Les spectres R-X ont été enregistrés avec un pas de $0,04^\circ$ et un temps d'acquisition de 2 secondes par pas.

La structure cristalline est évaluée à l'aide du logiciel Match, et par comparaison aux données des fiches A.S.T.M (American Society for Testing and Materials), qui permet l'identification des phases cristallines ainsi que les pics de diffraction.

III.3.1.1 Spectres de DRX des échantillons de Fe/Si(100)

Les spectres de diffraction de rayons X pour les films de Fe évaporé sur Si(100) pour diverses épaisseurs (13, 15, 22, 27, 48, 52 et 69 nm), montrent deux pics. Le premier situé à 2Θ compris entre $44,68$ et $44,75^\circ$, et le deuxième pic situé à 2Θ compris entre $64,98$ et $65,12^\circ$. Ces deux pics de Fe ont été identifiés respectivement comme provenant des plans (110) et (200), de la structure cubique centrée.

Sur la figure **III.1**, nous présentons des exemples de spectres de DRX de la série Fe/Si(100). Le pic (110) est le plus intense pour tous les échantillons, ce qui suggère l'orientation préférentielle pour la série de Fe/Si(100).



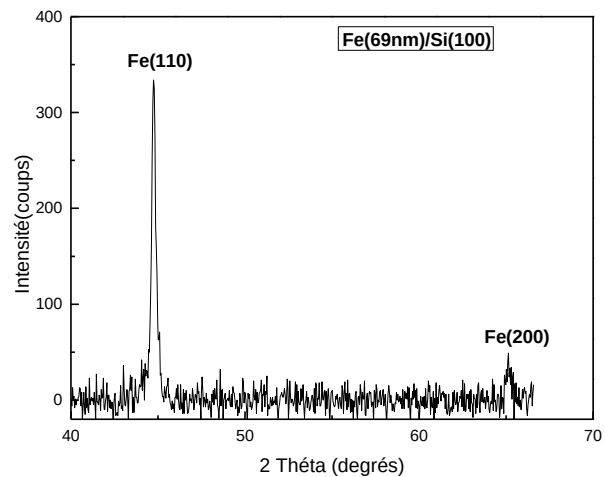
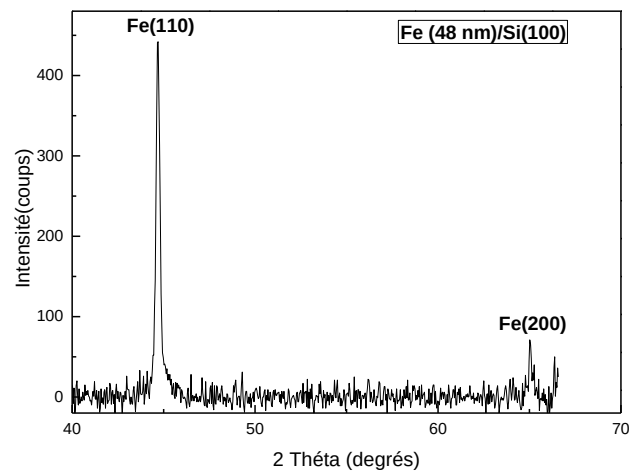
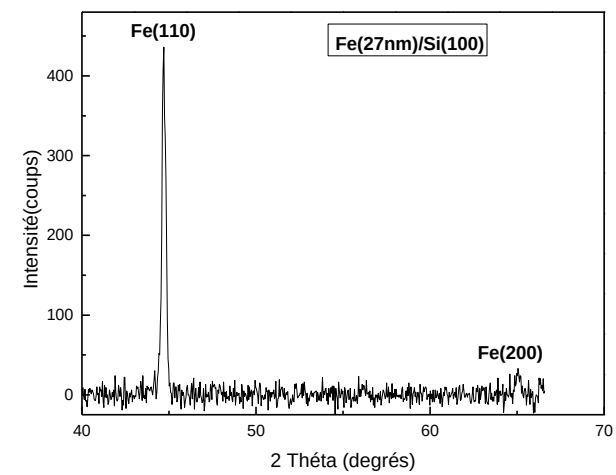
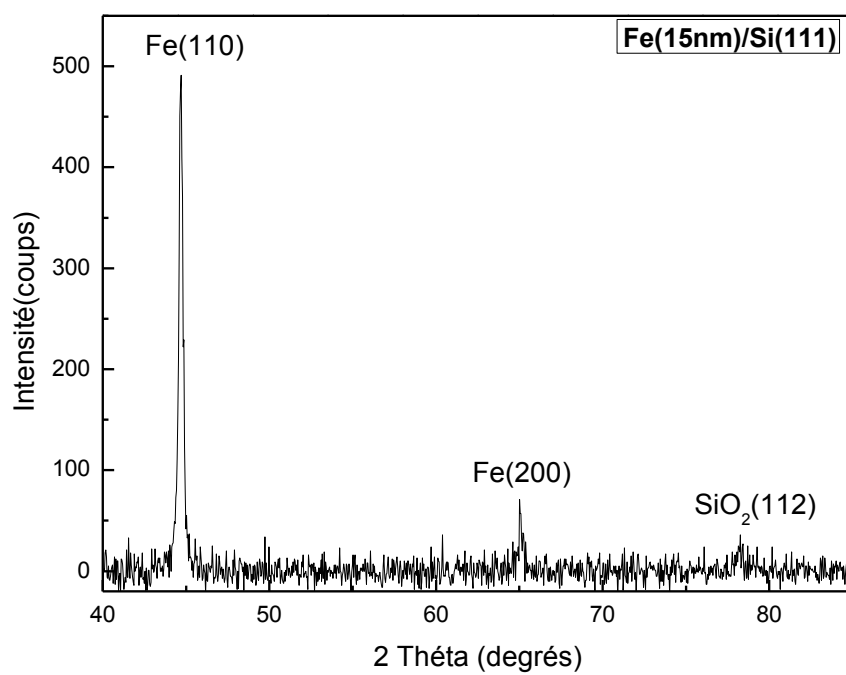
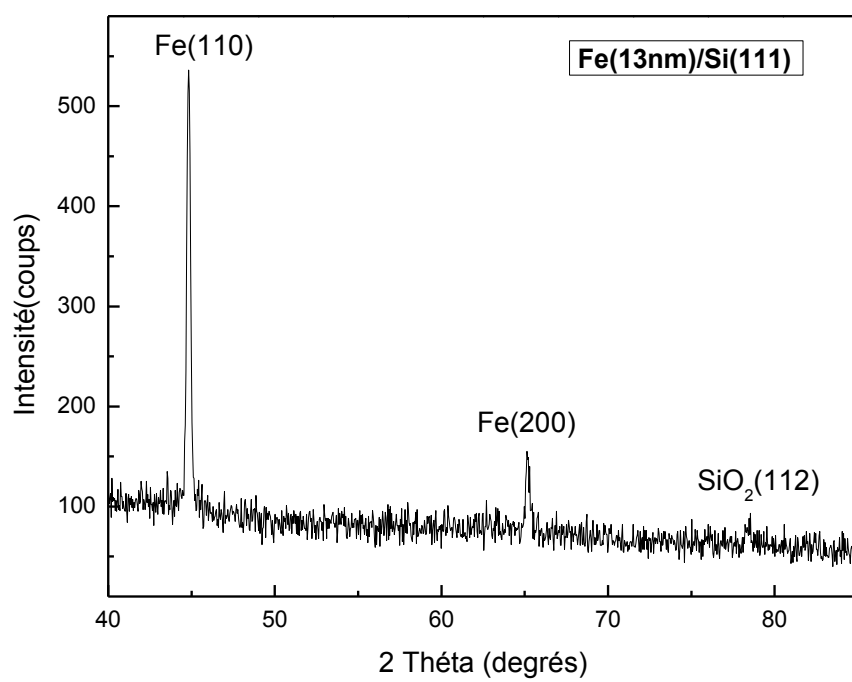


Figure III.1 : Spectres de DRX des échantillons de Fe/Si(100).

III.3.1.2 Spectres de DRX des échantillons de Fe/ Si(111)

Pour les spectres de DRX des films de Fe évaporé sur Si(111), on observe un pic de diffraction du silicium situé à $2\Theta=28,6^\circ$ degrés pour les couches d'épaisseur de 15 nm et 52 nm (non représenté ici), un pic de Fe situé à 2Θ compris entre $44,59$ et $44,74^\circ$. Ce pic a été identifié comme provenant du plan (110) de la structure cubique centrée. On observe aussi un autre pic de Fe situé à 2Θ compris entre $64,93$ et $65,07^\circ$ et identifié comme provenant du plan de diffraction (200). Là également, le pic (110) est le plus intense pour tous les échantillons, ce qui suggère la même orientation préférentielle pour cette série de Fe/Si(111). Des exemples de spectres de DRX de la série Fe/Si(111) sont montrés dans la figure **III.2**.



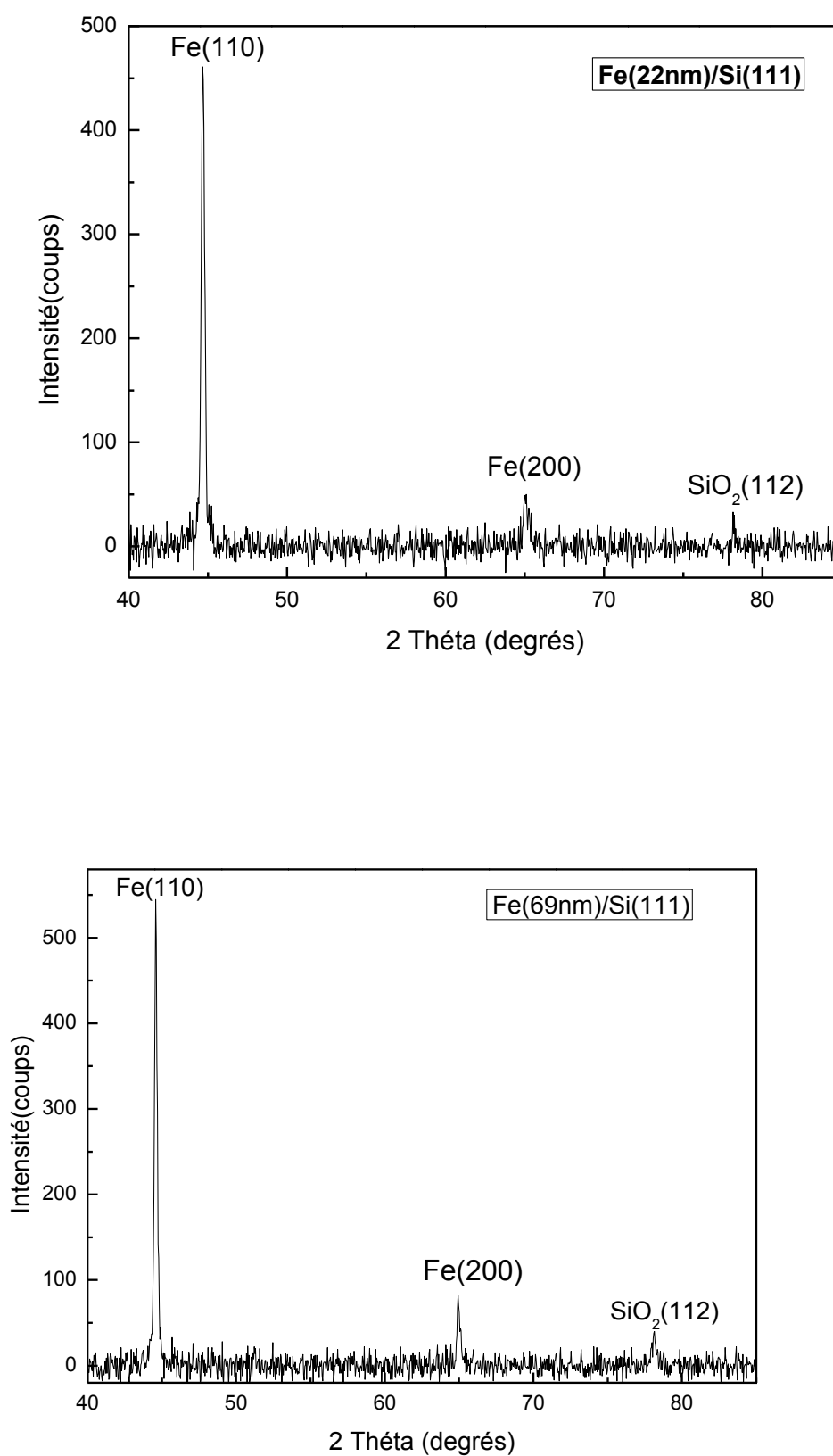
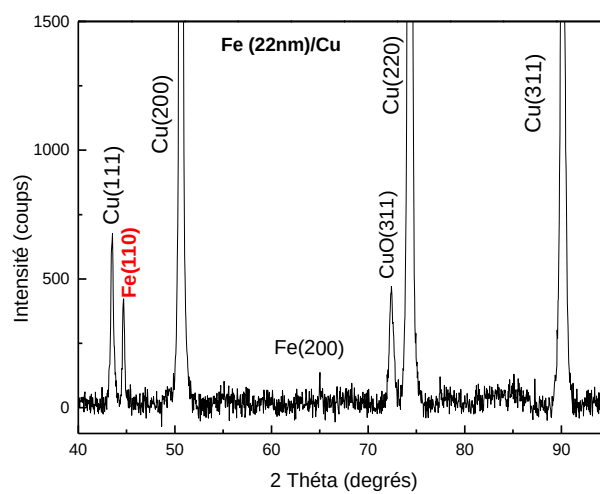
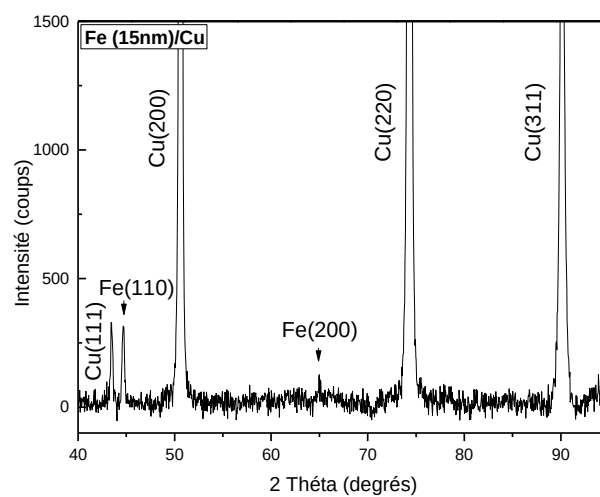
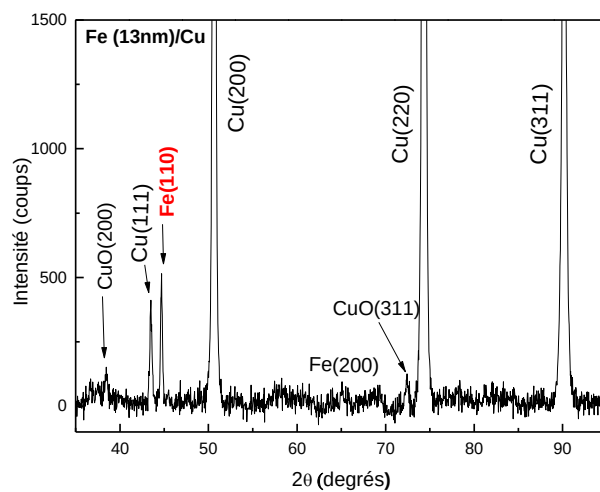


Figure III.2 : Spectres de DRX des échantillons de Fe/Si(111).

III.3.1.3 Spectres de DRX des échantillons de Fe/ Cu

Les spectres de diffraction des rayons X des films de Fe/Cu pour diverses épaisseurs (figure **III.3**) montrent des pics de Cu situés aux positions $2\theta = 43,26^\circ$, $50,61^\circ$, $74,26^\circ$ et $90,08^\circ$ pour tous les échantillons. Ces pics sont identifiés comme provenant des plans de diffraction Cu(111), Cu(200), Cu(220) et Cu(311) respectivement.

On observe aussi deux pics de Fe de la structure cubique centrée, l'un situé à 2θ compris entre $44,67^\circ$ et $44,6^\circ$ étant identifié comme provenant du plan (110), et l'autre situé à 2θ compris entre $64,95^\circ$ et $65,03^\circ$, et identifié comme issu du plan (200). On remarque aussi que la grande intensité du pic de Fe(110) correspond à la couche la plus mince, alors que l'intensité la plus faible correspond à la couche la plus épaisse.



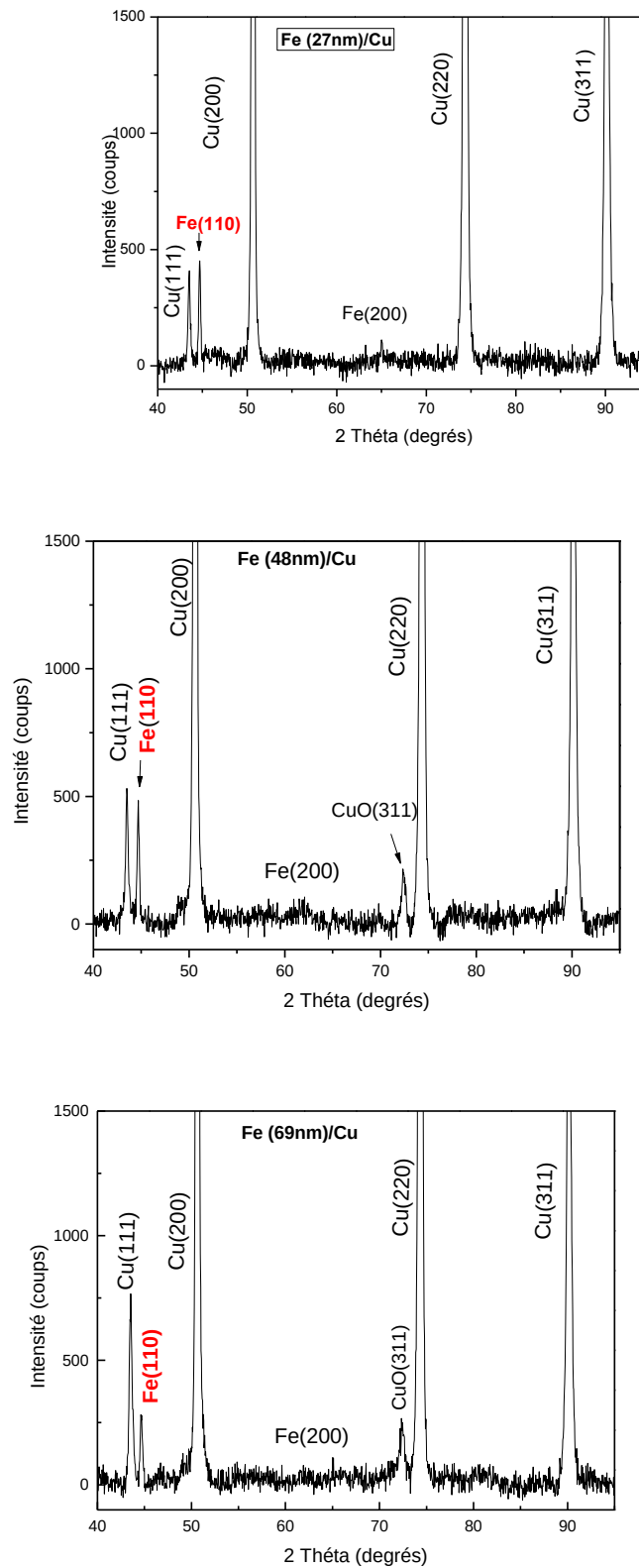


Figure III.3 : Spectres de DRX des échantillons de Fe/Cu.

III.3.2 Texture

Un matériau polycristallin présente une texture cristalline lorsque ses grains n'ont pas une orientation cristallographique tout-à-fait aléatoire. Caractériser la texture d'une couche mince revient à déterminer la distribution de ses orientations cristallographiques. Ces dernières jouent un rôle prépondérant sur les propriétés physiques des couches minces.

Sur les spectres de DRX de nos échantillons, le pic (110) du fer est très intense par rapport à celui de Fe(200) qui a une intensité beaucoup plus réduite, et cela quels que soient l'épaisseur de l'échantillon, le type de substrat, et son orientation. Par conséquent, on déduit que les couches de Fe/Si(100), Fe/Si(111) et Fe/Cu ont la texture (110). Cette texture est observée par d'autres auteurs. Citons les films minces de fer déposés par Kewei Liu et al. [1] sur des substrats de GaAs(001), les multicouches de Fe/Al(10Å) déposées par évaporation à bombardement électronique [2], les films de Fe/ Si(100) déposés par pulvérisation magnétron [3]. On note aussi que les films de Fe d'épaisseur 100 nm en croissance sur des substrats en saphir montrent une structure cubique centrée avec une texture (110) [4].

III.3.3 Paramètre de maille

La position des pics (2θ) déduite à partir des spectres de DRX nous fournit les distances interréticulaires d_{hkl} et donc les paramètres de maille de nos échantillons qui ont une structure cubique, à partir de la relation suivante :

$$\frac{a^2}{h^2 + k^2 + l^2} = \frac{\lambda^2}{4 \sin^2 \theta}$$

Où $a(\text{\AA})$ est le paramètre de maille, λ est la longueur d'onde des rayons X et est égale à 1,54056Å, θ est l'angle de diffraction et h, k, l sont les indices de Miller.

La table en dessous regroupe les valeurs du paramètre de maille des films de Fe en fonction de l'épaisseur de la couche magnétique déposée, pour les systèmes Fe/Si(100), Fe/Si(111) et Fe/Cu.

On observe que le paramètre de maille varie entre une valeur minimale de 2,8629 Å qui correspond à la couche de Fe/Si(100) pour $t=69$ nm et une valeur maximale de 2,8728 Å qui correspond à la couche de Fe/Si(111) de la même épaisseur.

La couche de Fe/Si(100) à $t = 27\text{nm}$ a un paramètre de maille sensiblement égale au paramètre de maille du Fer massif.

	Paramètre de maille relatif à la raie de diffraction (110)						
Epaisseur (nm)	13	15	22	27	48	52	69
Paramètre de maille Fe/Si(100) (Å)	2,8648	2,8648	2,8635	2,8659	2,8666	2,8669	2,8629
Paramètre de maille Fe/Si(111) (Å)	2,8639	2,8670	2,8670	2,8683	2,8673	2,8668	2,8728
Paramètre de maille Fe/Cu (Å)	2,8667	2,8667	2,8667	2,8667	2,8667	--	2,8668

Table III.3: Les paramètres de maille des couches minces de Fer.

La figure **III.4** illustre l'évolution du paramètre de maille en fonction de l'épaisseur du film de Fe sur les trois substrats.

Pour la série des échantillons de Fe/Si (111), le paramètre de maille augmente en fonction de l'épaisseur d'une valeur minimale égale à 2,8639 Å pour $t=13\text{nm}$ jusqu'à une valeur maximale de 2,8728 Å pour $t=69\text{ nm}$. Pour la série des échantillons de Fe/Cu, le paramètre de maille reste stable autour d'une valeur de 2,8667 Å pour la plupart des échantillons, et de 2,8668 Å pour la couche la plus épaisse ($t= 69\text{ nm}$).

L'évolution du paramètre de maille pour la série des échantillons de Fe/Si(100) est pratiquement différente de celle des autres séries (Fe/Cu et Fe/Si (111)). La série de Fe/Si(100) ne montre pas une variation claire du paramètre de maille en fonction de l'épaisseur. On observe une légère diminution de la valeur de 2,8648 Å à une valeur de 2,8635 Å pour $t=22\text{ nm}$, ensuite une augmentation jusqu'à une valeur maximale de 2,8669 Å pour $t=52\text{nm}$ puis une autre diminution à une valeur minimale de 2,8629 Å pour $t=69\text{ nm}$.

Le changement du paramètre de maille, des couches minces de Fer déposées sur les trois substrats est dû probablement à la présence des impuretés comme les atomes d'oxygène dans les grains, et aussi à l'effet du substrat qui peut jouer un rôle important dans l'origine des contraintes.

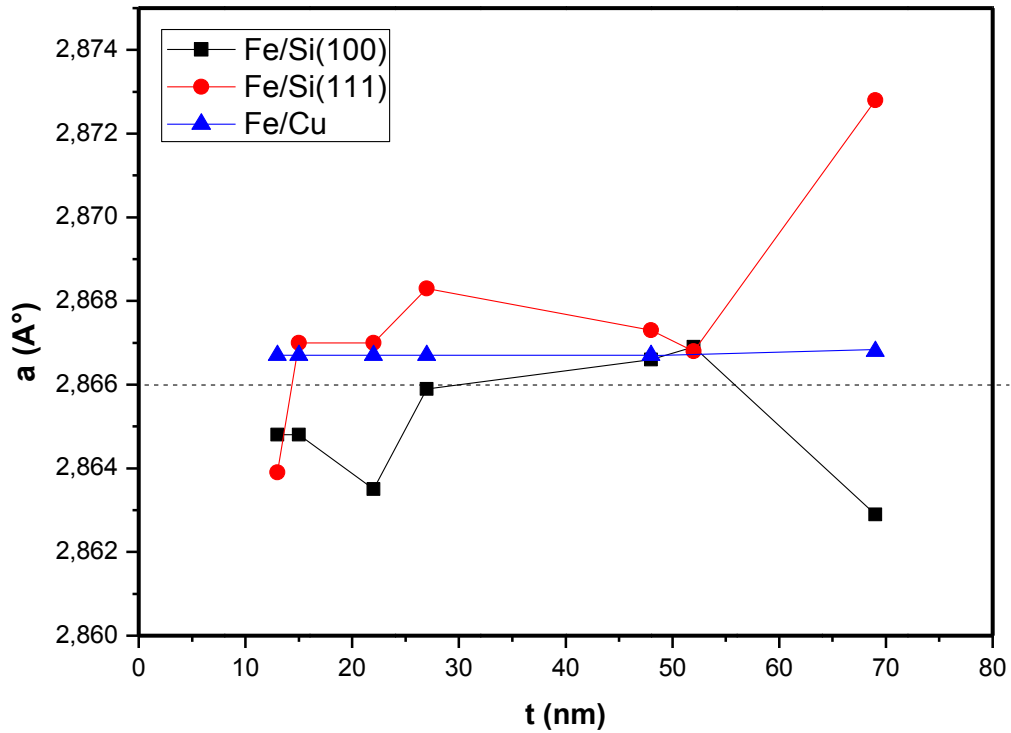


Figure III.4 : Evolution du paramètre de maille en fonction de l'épaisseur de la couche de Fe déposée sur Si(100), Si(111) et Cu.

III.3.4 Contraintes suivant l'orientation (110)

L'effet des contraintes se traduit sur les diffractogrammes par un déplacement des pics de diffraction. A partir du paramètre de maille calculé, on peut renseigner sur les contraintes (stress) qui s'exercent sur le film. La différence entre la valeur du paramètre de maille massif (bulk) et la valeur mesurée par la diffraction des rayons X nous donne le stress ϵ_{hkl} .

$$\epsilon_{hkl} = \frac{a_{\text{mesuré}} - a_{\text{massif}}}{a_{\text{massif}}}$$

- $\epsilon_{hkl} > 0$: le film soumis à des contraintes de dilatation.
- $\epsilon_{hkl} < 0$: le film soumis à des contraintes de compression.
- $\epsilon_{hkl} = 0$: absence de contraintes.

Dans la **table III.4** on présente l'évolution des contraintes des films de Fe en fonction de l'épaisseur de la couches pour les systèmes Fe/Si(100), Fe/Si(100), et Fe/Cu.

Epaisseur (nm)	13	15	22	27	48	52	69
ε_{110} pour Fe/Si(100) (%)	- 0 ,042	-0 ,042	-0 ,087	0,003	0 ,034	0,031	-0 ,108
ε_{110} pour Fe/Si(111) (%)	-0 ,073	0.035	0.035	0,080	0,045	0,027	0,237
ε_{110} pour Fe/Cu (%)	0,023	0,023	0,023	0,023	0,023	--	0,027

Table III.4: Les contraintes subies par les couches minces de Fer.

La première observation est que la plupart des échantillons sont sous contrainte de dilatation. Pour la série des échantillons de Fe/Si(100), quelques échantillons sont sous contrainte de compression. La grande valeur de la contrainte est observée pour la couche la plus épaisse pour chaque série. On observe aussi qu'il y a plus de contraintes dans les films Fe/Si(111) que dans les séries de Fe/Si(100) et Fe/Cu. Les films de Fe/Cu présentent le minimum de contraintes, relativement aux films de Fe déposés sur les substrats de Si.

Les contraintes dans les couches minces de Fe proviennent de contraintes intrinsèques dues à la présence de défauts, et au désaccord de maille (mismatch) qui est égale à 47% pour le Fe/Si (100), 25 % pour Fe/Si (111) et à 21% pour le Fe/Cu. A titre de comparaison, on cite les couches minces de Fe déposées par évaporation sous vide, sur Si(100), Si(111) et du verre, qui présente des contraintes de compression [5], même chose pour les multicouches de Fe/Al(10Å) déposées par évaporation et bombardement électronique [4].

III.3.5 Taille des cristallites

L'évaluation de la taille des cristallites a une importance considérable dans toute étude des couches minces, en raison de la dépendance du champ coercitif H_c et la taille des grains. Nous avons vu dans le chapitre II que nous pouvons calculer la taille des grains à l'aide des spectres de diffraction des rayons X, en utilisant la formule de Scherrer [6]. Les valeurs obtenues sont présentées dans la **table III.5**.

	Taille de la cristallite relative à la raie de diffraction (110)						
Epaisseur (nm)	13	15	22	27	48	52	69
D (nm) pour Fe/Si(100)	32,1	31,1	34,7	32,0	34,6	37,5	29,3
D (nm) pour Fe/Si(111)	33,3	29,3	33,0	38,6	37,3	32,3	37,1
D (nm) pour Fe/Cu	35,8	23,3	38,0	41,8	35,4	--	14,6

Table III.5: Taille des cristallites des couches minces de Fer.

Pour la série des échantillons de Fe/Si(100), on trouve que la taille des cristallites varie entre une valeur minimale de $D = 29,3$ nm correspondant à la couche d'épaisseur $t = 69$ nm, et une valeur maximale de $D = 37,5$ nm correspondant à la couche d'épaisseur $t = 52$ nm.

Pour la série des échantillons de Fe/Si(111), la taille des cristallites varie entre une valeur minimale de $29,3$ nm pour $t = 15$ nm et une valeur maximale de $38,6$ nm pour $t = 27$ nm.

Les échantillons de la série de Fe/Cu présentent la plus faible valeur de la taille des cristallites, $D = 14,6$ nm pour l'épaisseur $t = 69$ nm, de même que dans l'échantillon Fe/Si(100) qui présente une valeur minimale à la même épaisseur. Alors que la plus grande taille des cristallites $D = 41,8$ nm correspondant à l'épaisseur $t = 27$ nm, à la même épaisseur où l'échantillon Fe/Si(111) présente une valeur maximale de la taille des cristallites.

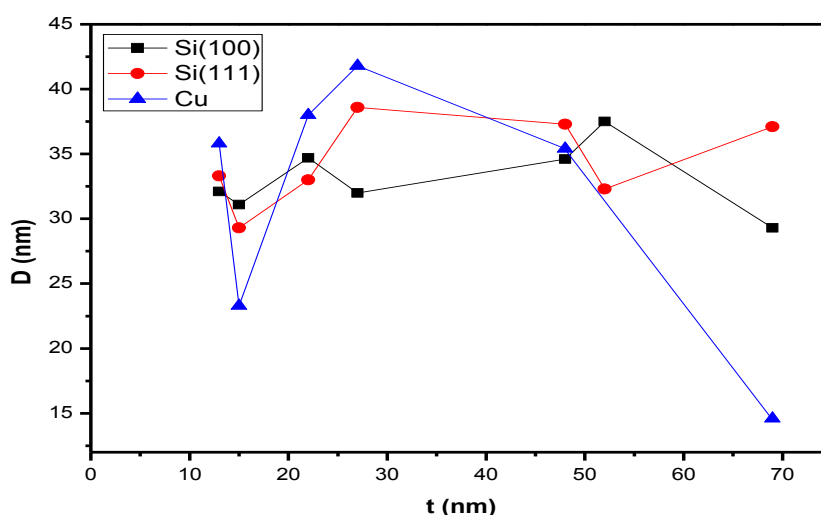


Figure III.5 : Evolution de la taille des cristallites en fonction de l'épaisseur de la couche de Fe déposée sur Si(100), Si(111) et Cu.

Sur la figure **III.5**, nous avons montré l'évolution de la taille des cristallites en fonction de l'épaisseur du film de Fe sur Si(100), Si(111) et Cu. On observe que la taille des cristallites montre deux comportements selon l'épaisseur :

- ✓ Pour les faibles épaisseurs $t < 27\text{nm}$, l'évolution de la taille des grains est similaire pour les trois substrats, une diminution de la taille des cristallites suivi par une augmentation.
- ✓ Pour les grandes épaisseurs $t > 27\text{ nm}$, le comportement de la taille des cristallites est totalement différent pour les trois substrats. On trouve pour la série de Fe/Cu que la taille des cristallites présente une diminution monotone en fonction de l'épaisseur, alors que la série de Fe/Si(100) l'évolution de la taille des cristallites montre une augmentation jusqu'à une valeur maximale suivie par une diminution à une valeur minimale de la taille des cristallites. Pour la série de Fe/Si(111) une diminution de la taille des cristallites, suivie par une augmentation de cette dernière en fonction de l'épaisseur. Le type de substrat et son orientation ont donc un effet notable sur la taille des cristallites.

III.4 Morphologie et topographie des couches minces de Fer

Une surface est généralement décrite par sa morphologie et sa topographie. La morphologie est liée aux aspects qualitatifs de la surface (forme et répartition des grains) tandis que la topographie correspond à la quantification des aspects morphologiques (hauteur et densité des grains, rugosité,...) [7].

L'état de surface est un paramètre très important dans l'étude des propriétés des couches minces, particulièrement les couches minces magnétiques. C'est pourquoi, il est nécessaire d'analyser l'état de surface de nos couches minces de Fer élaborées par évaporation sous vide. Et, pour cela, les couches ainsi élaborées ont été observées au microscope à force atomique (AFM).

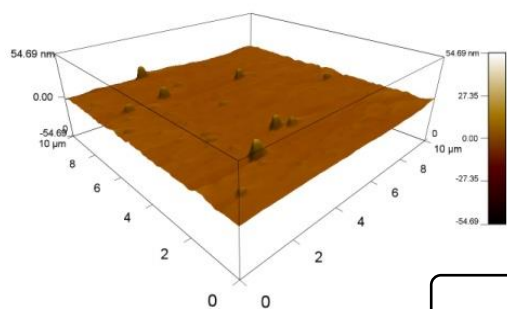
III.4.1 La morphologie

La figure **III.6** montre les images AFM (3D et 2D) des couches minces de Fe/Si(100) en fonction de l'épaisseur, sur une zone de $10\mu\text{m} \times 10\mu\text{m}$. Globalement, ces images révèlent que

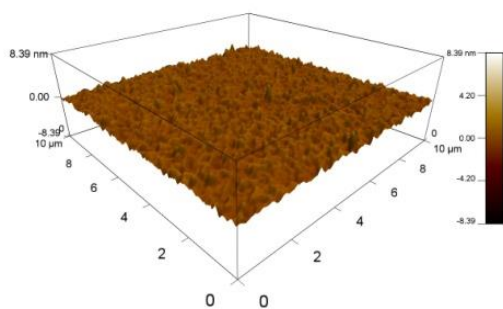
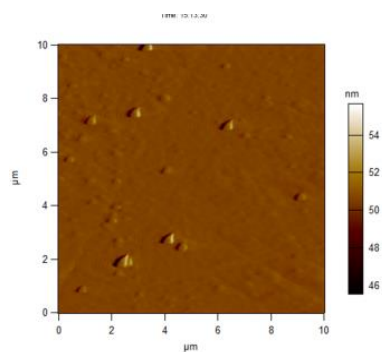
les surfaces des couches élaborées ne sont pas assez rugueuses. Pour des épaisseurs $t = 15, 22, 27$ et 48 nm, les couches sont lisses et pour $t = 52, 69$ et 13 nm les couches sont plus rugueuses. La surface de la couche d'épaisseur 15 nm est plus dense, compacte et homogène. On remarque aussi la formation d'îlots (clusters) sur les couches les plus épaisses ($t=52$ et 69 nm).

La figure **III.7** montre les images AFM (3D et 2D) des couches minces de Fe/Si(111) en fonction de l'épaisseur sur une zone de $5\text{ }\mu\text{m} \times 5\text{ }\mu\text{m}$. Ces images nous indiquent que les films d'épaisseur $t = 15, 48$ et 52 nm sont lisses et homogènes avec une structure granulaire, alors que les films d'épaisseur $t= 13, 22$ et 27 nm sont rugueux et présentent des îlots.

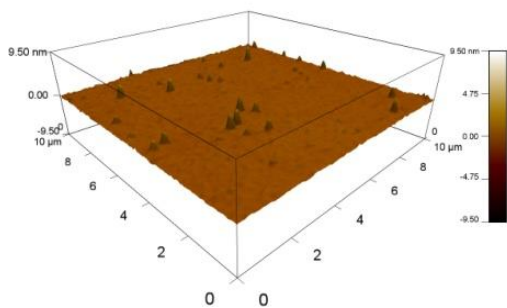
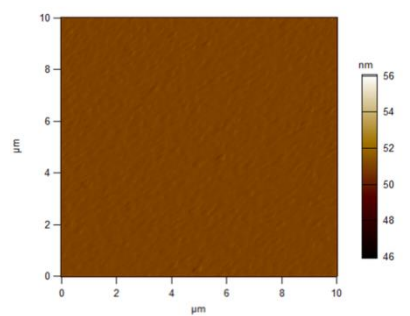
Lorsqu'on compare les images AFM des couches de Fe/Si(100) et de Fe/Si(111), on observe que dans les mêmes conditions de dépôt, les couches de Fe présentent des morphologies différentes d'un substrat à l'autre. Parce que lors de la croissance des couches minces, la nucléation des couches est influencée par la structure cristallographique du substrat de dépôt, l'énergie libre de surface (mouillabilité), l'énergie d'adhésion et le désaccord de maille.



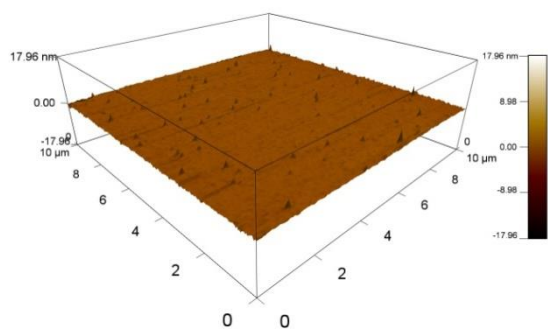
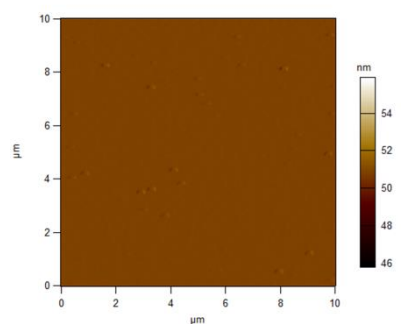
$t = 13\text{nm}$



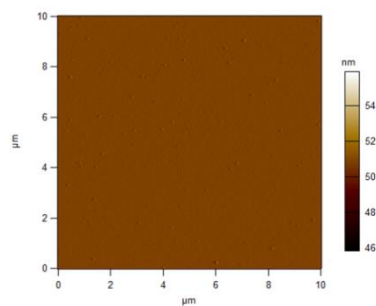
$t = 15\text{nm}$



$t = 22\text{nm}$



$t = 27\text{nm}$



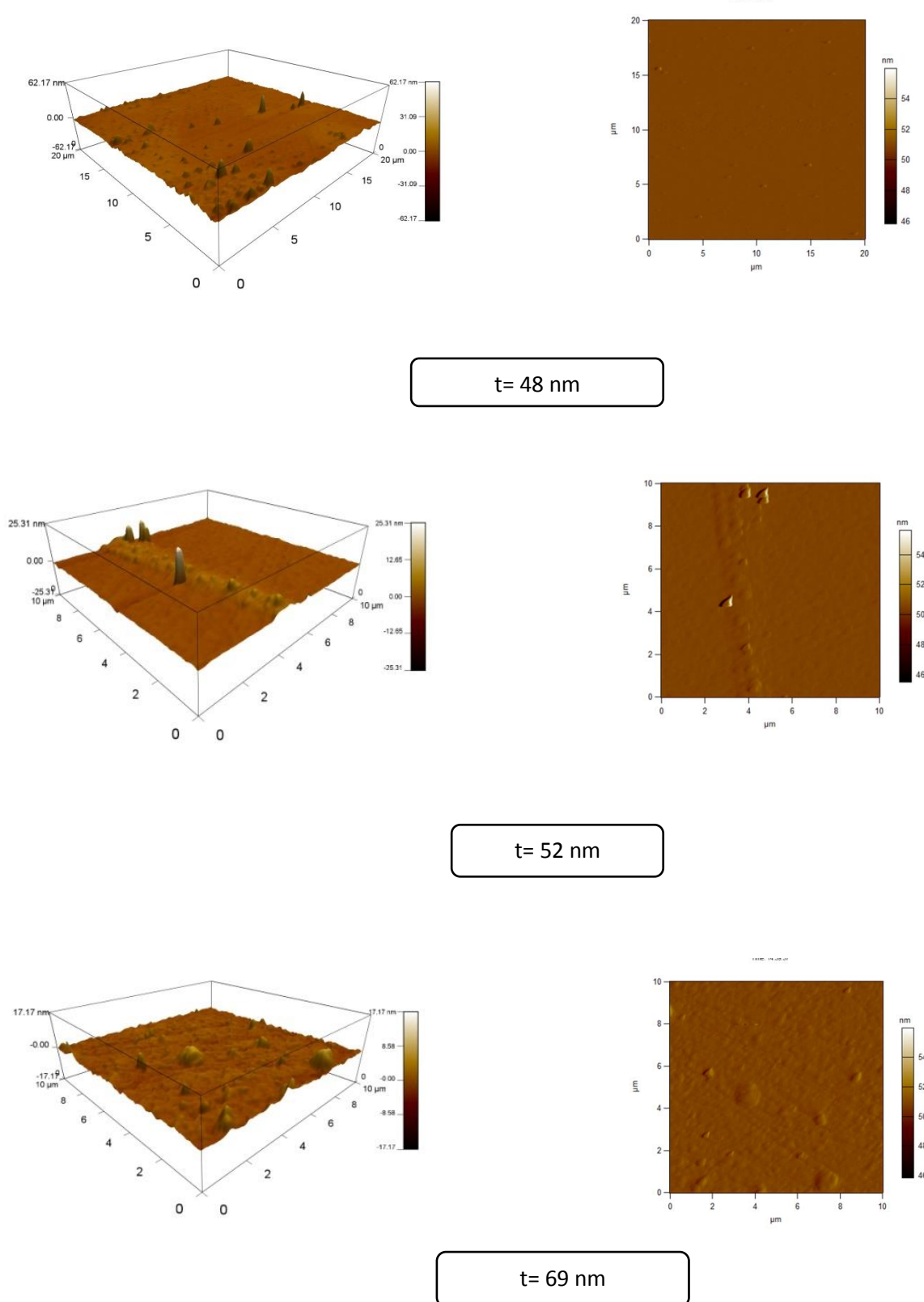
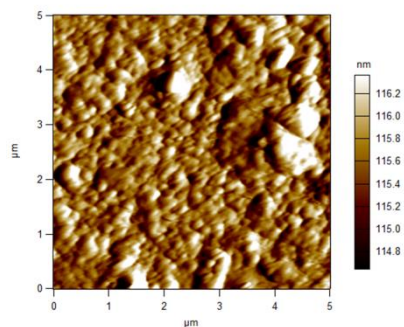
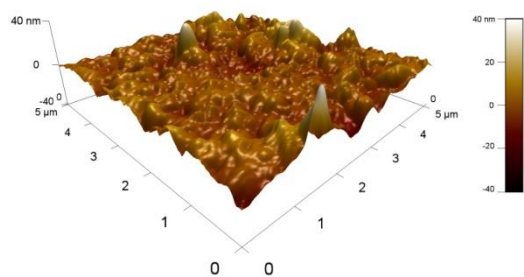
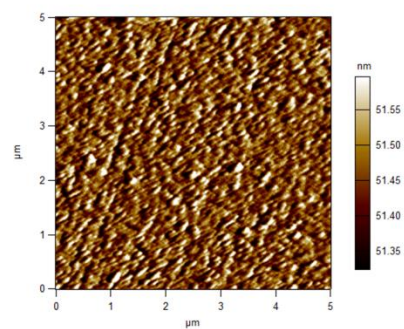
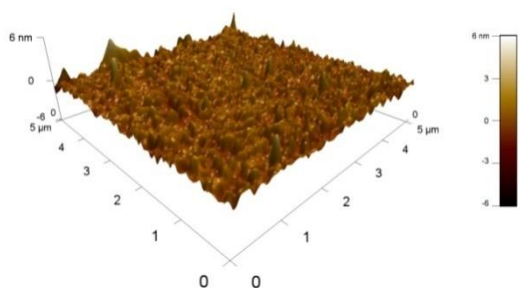


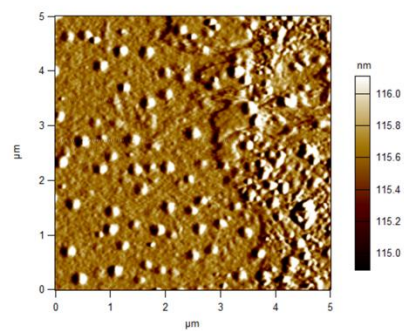
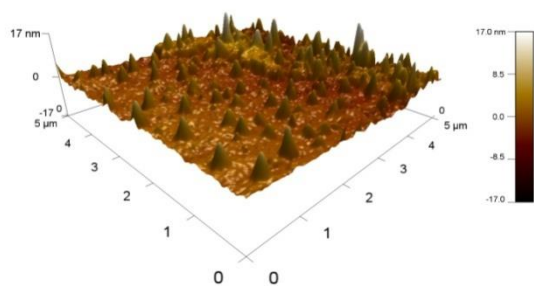
Figure III.6 : Les images AFM (3D et 2D) des couches minces de Fe/Si(100) en fonction de l'épaisseur.



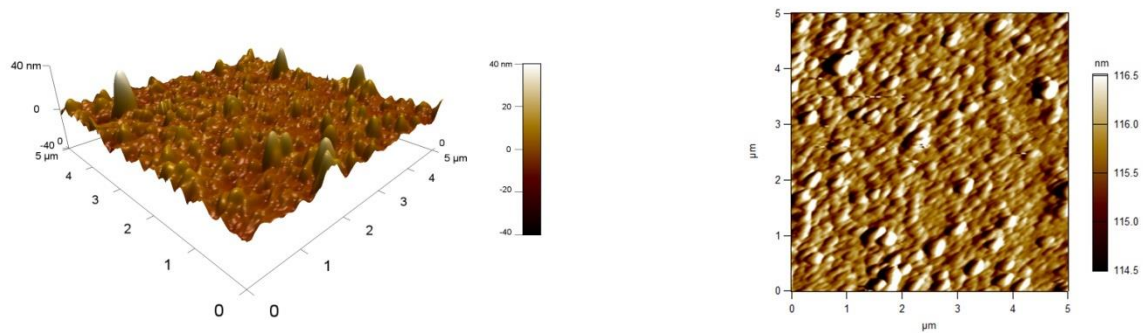
$t=13 \text{ nm}$



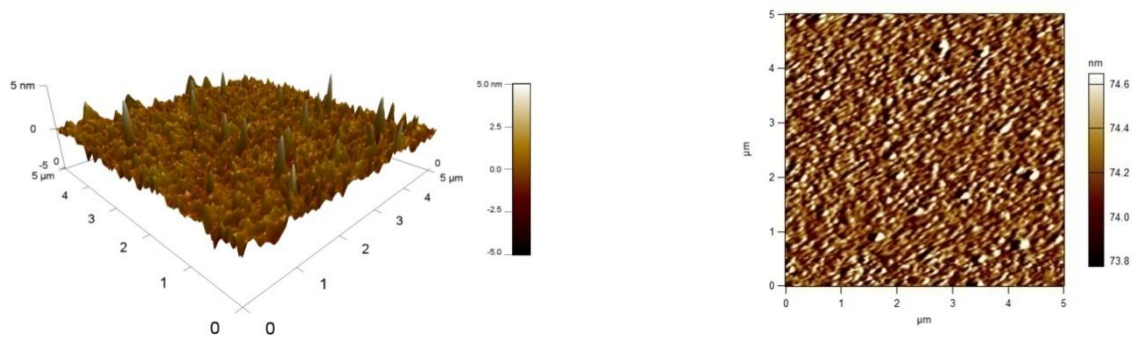
$t = 15 \text{ nm}$



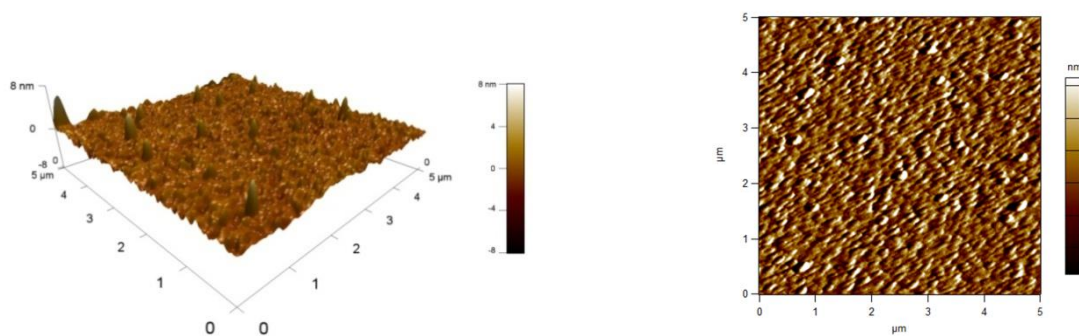
$t = 22 \text{ nm}$



$t=27$ nm



$t=48$ nm



$t=52$ nm

Figure III.7 : Les images AFM (3D et 2D) des couches minces de Fe/Si(111) en fonction de l'épaisseur.

III.4.2 La topographie

➤ **La rugosité** : la rugosité est le résultat de la modification microgéométrique d'une surface. Ce changement microgéométrique peut se caractériser par l'apparition d'aspérités sous forme de pics et de vallées (creux) de sorte que sur une coupe perpendiculaire à la surface traitée (profil) les pics et les creux se répartissent respectivement au-dessus ou au-dessous d'une ligne centrale appelée ligne moyenne, voir **figure III.8**.

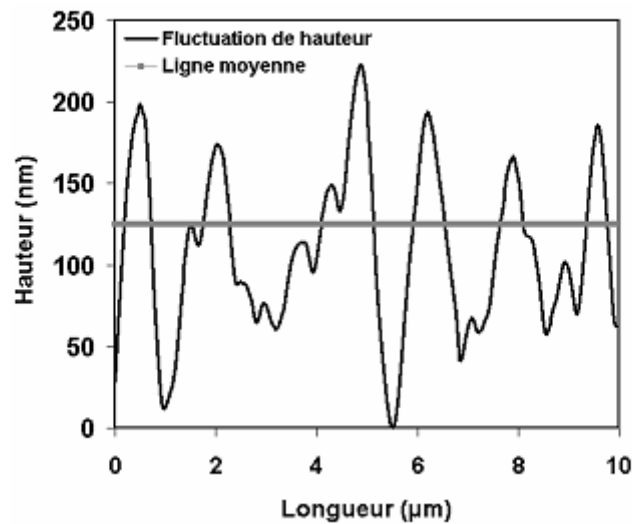


Figure III.8 : Illustration de la répartition des pics et des creux et la ligne moyenne.

La rugosité moyenne arithmétique **Ra** et la rugosité moyenne quadratique **RMS** sont les paramètres universellement les plus utilisés pour le contrôle de la qualité de surface. La rugosité **RMS** (root mean square) est définie par la moyenne quadratique de toutes les valeurs au profil de rugosité **R** calculées sur la longueur d'estimation **L** [8].

$$RMS = \sqrt{\frac{1}{L} \int_0^L Z^2(x) dx}$$

La table **III.6** ci-dessous résume les valeurs de la rugosité des couches minces de Fe/Si(100) et de Fe/Si(111) en fonction de l'épaisseur. Les valeurs de la rugosité des échantillons de Fe/Si(100) varient entre une valeur de 0,3 et 4,0 nm correspondant aux couches d'épaisseur de 22 et de 13 nm respectivement, alors que ces valeurs varient entre 0,5 nm et 5,5 nm pour les couches d'épaisseur 15 et 13 nm respectivement, pour la série des échantillons de Fe/Si(111).

	t (nm)	13	15	22	27	48	52	69
RMS(nm)	Fe/Si(100)	4,0	0,5	0,3	0,5	1,9	1,8	2,6
	Fe/Si(111)	5,5	0,5	2,1	4,3	0,5	0,5	--

Table III.6 : Rugosité des surfaces des couches minces Fe/Si(100) et Fe/Si(111) en fonction de l'épaisseur.

La figure **III.9** montre l'évolution de la rugosité surfacique en fonction de l'épaisseur des couches minces de Fe sur Si (100) et Si(111). On observe clairement que les valeurs de la rugosité sont différentes d'un substrat à l'autre. On observe aussi que la rugosité surfacique montre deux comportements selon l'épaisseur. Pour $t \leq 15 \text{ nm}$, l'évolution de la rugosité de surface est la même pour les deux substrats, elle diminue d'une valeur de 5,5 à 0,5 nm pour la série des échantillons de Fe/Si(111) et d'une valeur de 4,0 à 0,5 nm pour la série des échantillons de Fe/Si(100). Pour $t > 15 \text{ nm}$, une augmentation de la rugosité est observée en fonction de l'épaisseur pour la série des échantillons de Fe/Si(100), alors que la série des échantillons de Fe/Si(111) montre une augmentation de la rugosité jusqu'à un maximum de RMS = 4,3 nm pour $t = 27 \text{ nm}$, puis elle diminue.

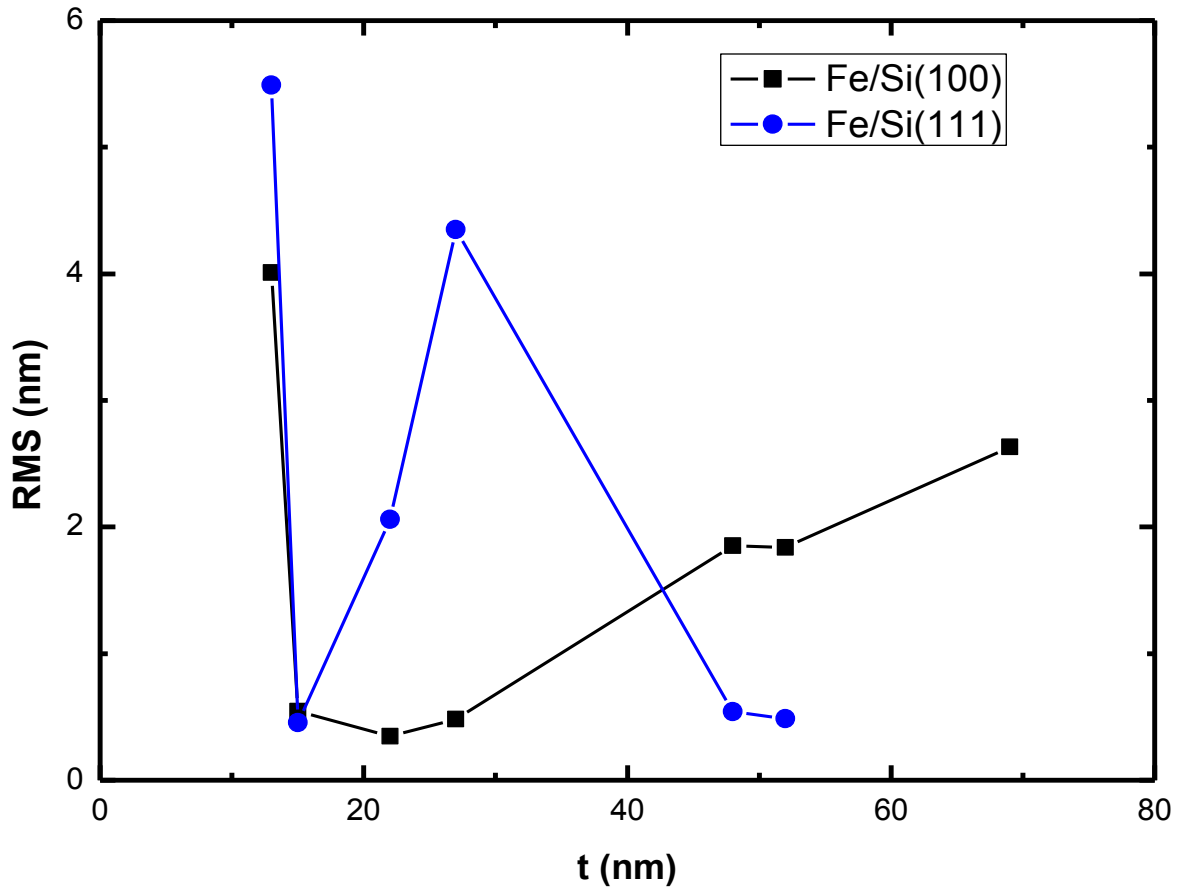


Figure III.9 : Evolution de la rugosité en fonction de l'épaisseur de la couche de Fe déposée sur Si(100) et Si(111).

III.5 Conclusion

Trois séries de couches minces de Fer sont déposées par évaporation sous vide par effet Joule, sur Si(100), Si(111) et Cu. Les épaisseurs sont comprises entre 13 et 69 nm.

Les mesures par diffraction des rayons X montrent que $\langle 110 \rangle$ est l'orientation préférentielle pour tous les échantillons, et que les couches sont sous faible contrainte ($\epsilon < 0,24 \%$). La taille des grains a été estimée par la formule de Scherrer. Les mesures pour la série des échantillons de Fe/Si(100) ont donné une taille des grains variant entre 29,3 nm et 37,5 nm. Pour la série Fe/ Si(111), D varie entre 29,3 et 38,6 nm. Pour la série Fe/Cu, D varie entre 14,6 et 41,8 nm. Ces valeurs de la taille des grains influent d'une manière directe sur la valeur

du champ coercitif. La microscopie à force atomique (AFM) révèle des images de surfaces très lisses pour la plupart des échantillons, alors que quelques échantillons présentent des topographies de surfaces rugueuses. La rugosité de surface varie entre 0,3 et 4,0 nm pour la série des échantillons de Fe/Si(100), et varie entre 0,5 et 5,5 nm pour la série des échantillons de Fe/Si(111).

Références bibliographiques

- [1] Kewei Liu, Dezhen Shen, Jiying Zhang, Xiaojie Wu, Binghui Li, Bingsheng Li, Youming Lu, Xiwu Fan, *Solid State Communications*, 140 (2006) 33–37.
- [2] R. Brajpuriya, S. Tripathi, A. Sharma, T. Shripathi, and S.M. Chaudhari, *Eur. Phys. J. B51*, 131–136 (2006).
- [3] A. Javed, N.A. Morley, M.R.J. Gibbs, *Appl. Surf. Science*, 257 (2011) 5586–5590.
- [4] U. Ruediger, J. Yu, S. Zhang, and A. D. Kent, *Phys. Rev. Letter.* 80 (1998), 5639-5642.
- [5] B. Ghebouli, S.-M. Chérif, A. Layadi, B. Helifa, M. Boudissa, *J. Magn. Magn. Mater.*, 312 (2007) 194–199.
- [6] J.P. Eberhart, *Analyse Structurale et Chimiques des Matériaux*, Bordas, Paris, 1989.
- [7] L. Nzoghe Mendomee, *Thèse de Doctorat de l'Université de Reims*, 2007.
- [8] A. Cappella, *Thèse de Doctorat de l'Université de Bordeaux*, 2012.

Chapitre IV

Propriétés magnétiques

IV.1 Introduction

IV.2 Cycles d'hystérésis

IV.2.1 Cycles d'hystérésis des échantillons de Fe/Si(100)

IV.2.2 Cycles d'hystérésis des échantillons de Fe/Si(111)

IV.2.3 Cycles d'hystérésis des échantillons de Fe/Cu

IV.3 Paramètres intrinsèques des couches minces de Fer

IV.3.1 Champ coercitif

IV.3.1.1 Effet de l'épaisseur

IV.3.1.2 Effet de la taille des grains

IV.3.1.3 Effet de la rugosité

IV.3.2 Champ de saturation

IV.3.1.1 Effet de l'épaisseur

IV.3.1.2 Effet de la taille des grains

IV.3.1.3 Effet de la rugosité

IV.3.3 La squareness

Effet de l'épaisseur

IV.4 Conclusion

Références bibliographiques

IV.1 Introduction

Ce chapitre est consacré aux propriétés magnétiques statiques des couches minces de Fer, issues des courbes d'aimantation mesurées à l'aide d'un magnétomètre à échantillon vibrant (VSM). Les cycles d'hystérésis (moment magnétique en fonction du champ appliqué) ont été réalisés en deux configurations, parallèle et perpendiculaire, avec deux orientations ($\Theta = 0^\circ$ et $\Theta = 90^\circ$) pour chaque configuration. Les effets de l'épaisseur, de la taille des grains et de la rugosité sur les propriétés magnétiques de ces couches, tels que le champ coercitif, le champ de saturation et la squareness, seront exposés et discutés.

IV.2 Cycles d'hystérésis

Nous avons utilisé un magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) pour obtenir le moment magnétique en fonction du champ appliqué à température ambiante.

Les mesures ont été faites en appliquant le champ magnétique dans le plan de l'échantillon (configuration parallèle) et perpendiculairement à ce plan (configuration perpendiculaire). Dans la configuration parallèle, la mesure a été réalisée dans deux directions perpendiculaires afin de rechercher une éventuelle anisotropie planaire. Après soustraction du signal diamagnétique provenant du substrat, nous disposons du moment magnétique de la couche de Fer seule en fonction du champ magnétique appliqué.

IV.2.1 Cycles d'hystérésis des échantillons de Fe/Si(100)

Les mesures montrent que tous les films de Fer déposés sur Si(100) sont ferromagnétiques en raison des cycles d'hystérésis en fonction du champ appliqué présentés sur les figures ci-dessous. D'autre part, nous avons constaté que les couches minces de Fe/Si(100) sont d'axe perpendiculaire difficile et de plan facile (voir **figure IV.5**), cette observation est rapportée par d'autres auteurs. Citons, les couches minces de Fe électrodéposé sur Si(100) [1], Fe/GaAs(001) [2], Fe/Cu [3], Fe/mylar[4] . On observe aussi que tous les cycles présentent une forme carrée où le moment de saturation a une valeur très proche de la valeur du moment rémanent, ce qui indique que nos couches minces sont caractérisées par un axe facile dans le plan. Tous les échantillons de Fe/Si(100) montrent le même cycle, lorsqu'on applique le champ magnétique dans le plan en deux orientations ($\Theta=0^\circ$ et $\Theta= 90^\circ$), ceci

indique qu'il ya pas une orientation préférée dans le plan, c'est-à-dire, isotropie planaire. Ce comportement est observé par d'autres auteurs [5-8].

Une bonne squareness ($S=1$) avec un champ coercitif faible est observée pour les couches de d'épaisseurs 48 et 22 nm.

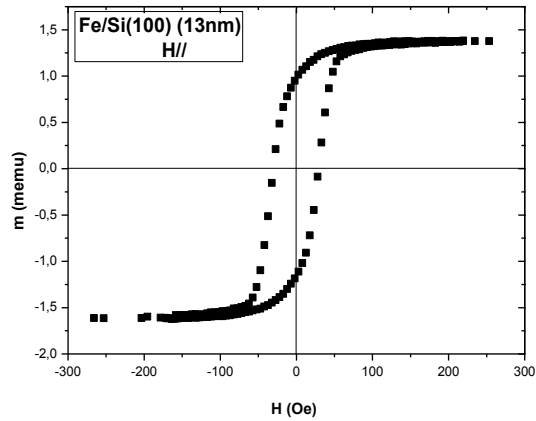


Figure IV.1 : Cycle d'hystérésis de la couche de $Fe(t=13nm)/Si(100)$.

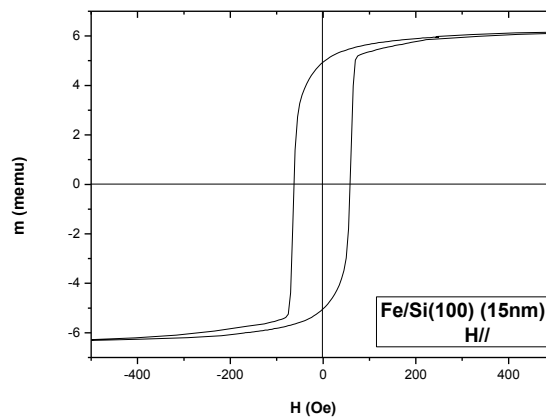


Figure IV.2 : Cycle d'hystérésis de la couche de $Fe(t=15nm)/Si(100)$.

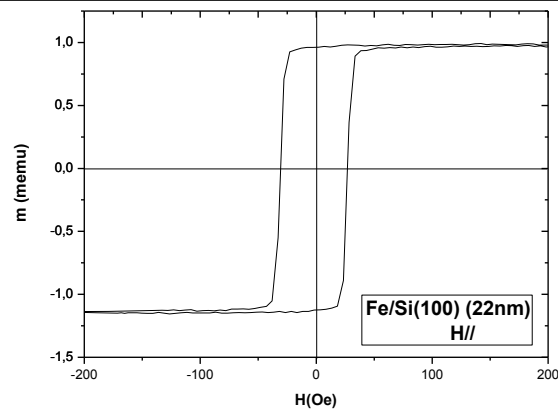


Figure IV.3 : Cycle d'hystérésis de la couche de Fe($t=22\text{nm}$)/Si(100).

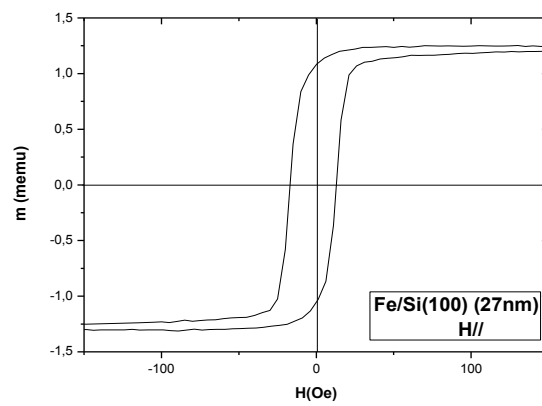


Figure IV.4 : Cycle d'hystérésis de la couche de Fe($t=27\text{nm}$)/Si(100).

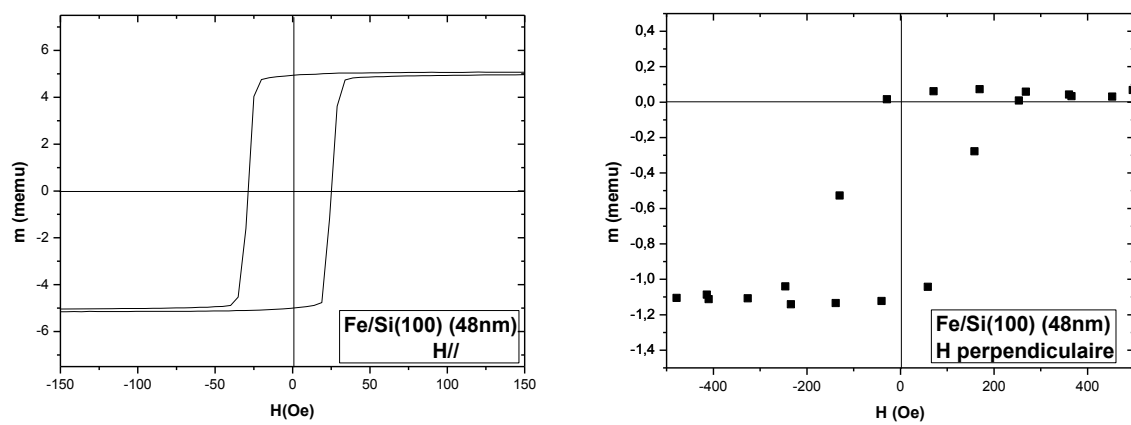


Figure IV.5 : Cycle d'hystérésis de la couche de Fe($t=48\text{nm}$)/Si(100).

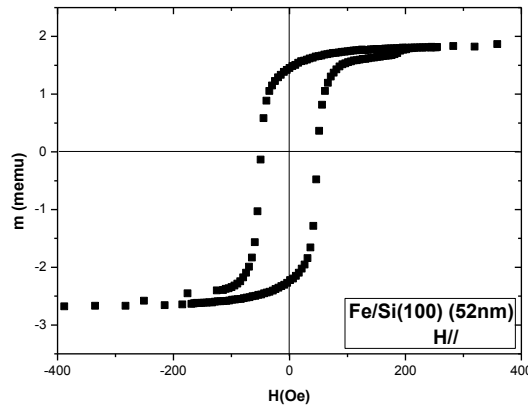


Figure IV.6 : Cycle d'hystérésis de la couche de Fe($t=52\text{nm}$)/Si(100).

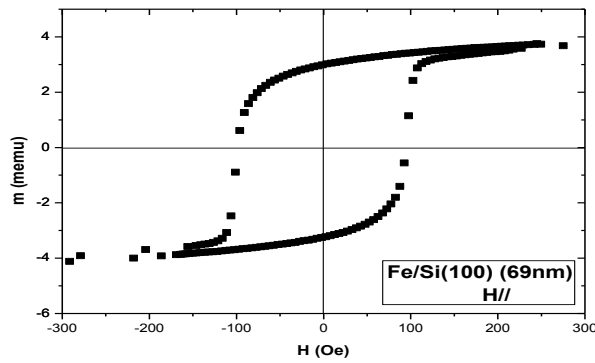


Figure IV.7 : Cycle d'hystérésis de la couche de Fe($t=69\text{nm}$)/Si(100).

IV.2.2 Cycles d'hystérésis des échantillons de Fe/Si(111)

Les cycles d'hystérésis des échantillons de Fe/Si(111) sont présentés sur les figures ci-dessous. Les échantillons de la série Fe/Si(111) sont ferromagnétiques, avec un axe perpendiculaire difficile et de plan facile avec plusieurs orientations préférentielles (**Figure IV.9**). La majorité des cycles d'hystérésis ont une forme carrée, excepté les cycles des couches d'épaisseur 22 et 27 nm, présentées sur la **figure IV.10** et la **figure IV.11**. Ces courbes ont une forme étroite, où l'aimantation à saturation est beaucoup plus grande que l'aimantation rémanente.

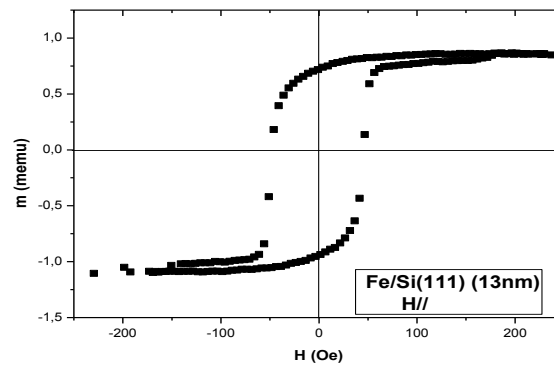


Figure IV.8 : Cycle d'hystérésis de la couche de $Fe(t=13nm)/Si(111)$.

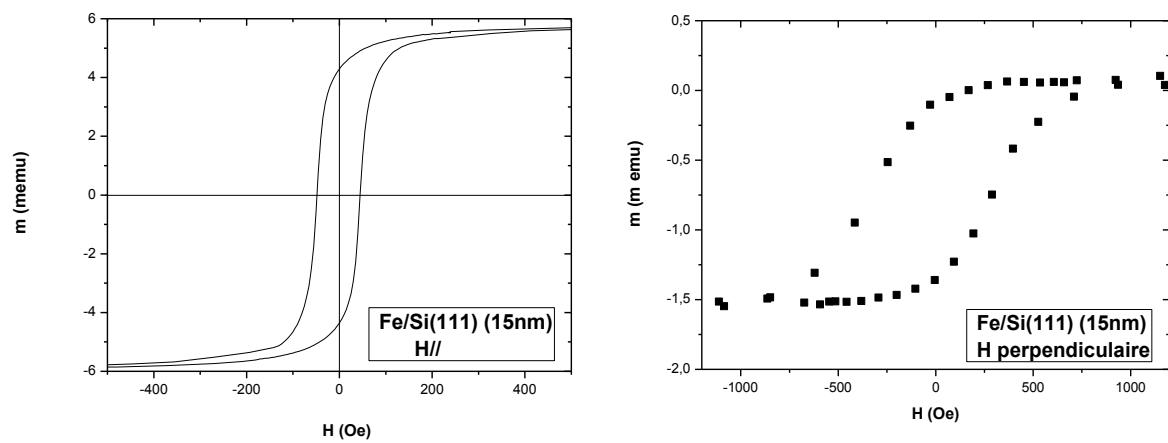


Figure IV.9 : Cycle d'hystérésis de la couche de $Fe(t=15nm)/Si(111)$.

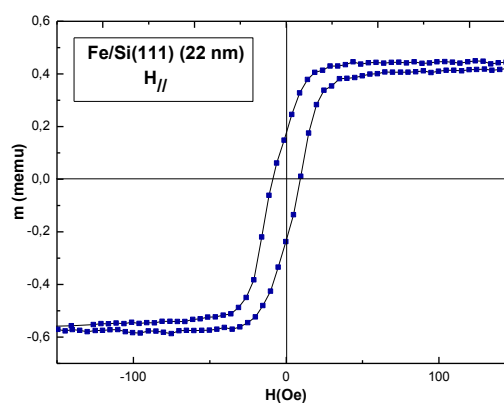


Figure IV.10 : Cycle d'hystérésis de la couche de $Fe(t=22nm)/Si(111)$.

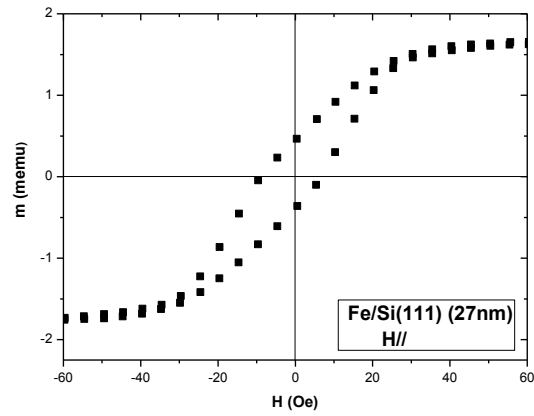


Figure IV.11 : Cycle d'hystérésis de la couche de $Fe(t=27nm)/Si(111)$.

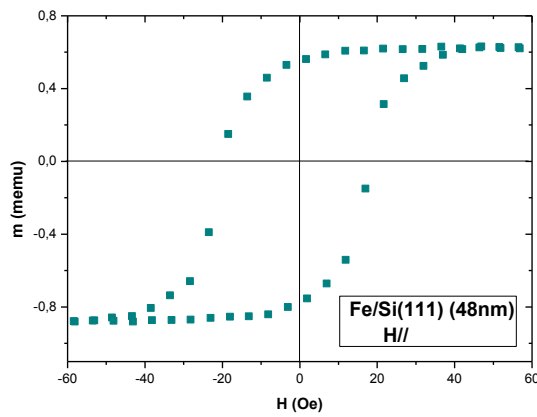


Figure IV.12 : Cycle d'hystérésis de la couche de $Fe(t=48nm)/Si(111)$.

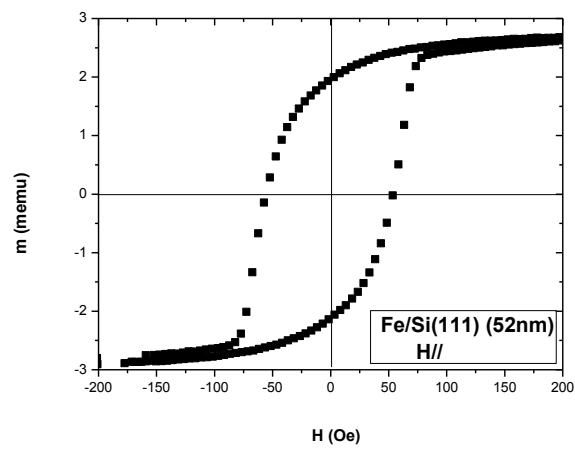


Figure IV.13 : Cycle d'hystérésis de la couche de $Fe(t=52nm)/Si(111)$.

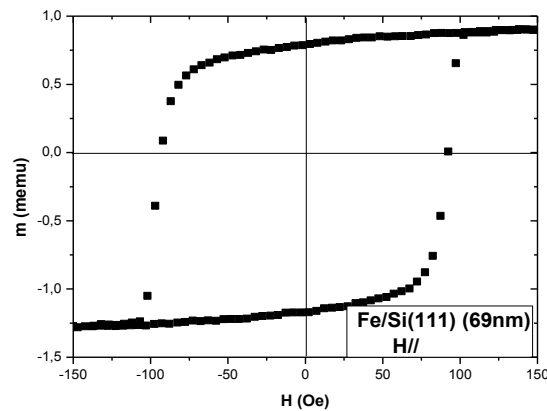


Figure IV.14 : Cycle d'hystérésis de la couche de $\text{Fe}(t=69\text{nm})/\text{Si}(111)$.

IV.2.3 Cycles d'hystérésis des échantillons de Fe/Cu

Là également, les échantillons de Fe/Cu sont tous ferromagnétiques, avec un axe facile dans le plan et un axe difficile perpendiculaire à la surface du film. On note aussi une forme des cycles quasi carrée pour tous les échantillons, et l'absence d'anisotropie planaire.

Un décalage de cycle vers les valeurs négatives de moment magnétique est observé pour certains échantillons ($t=13\text{ nm}$ et $t=22\text{nm}$), voir **figure IV.15** et **figure IV.17**. Ce décalage peut être attribué à l'anisotropie d'échange.

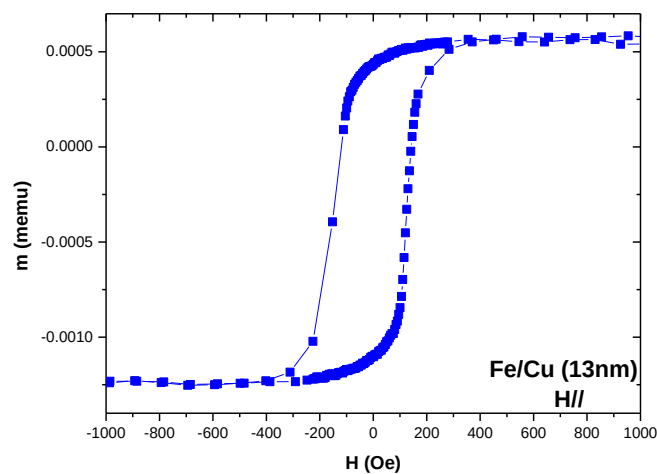


Figure IV.15 : Cycle d'hystérésis de la couche de $\text{Fe}(t=13\text{nm})/\text{Cu}$.

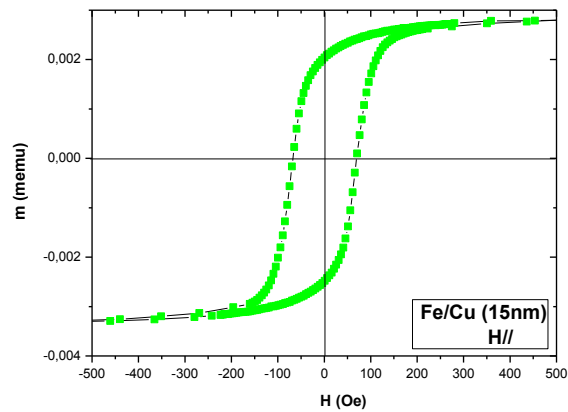


Figure IV.16 : Cycle d'hystérésis de la couche de $\text{Fe}(t=15\text{nm})/\text{Cu}$.

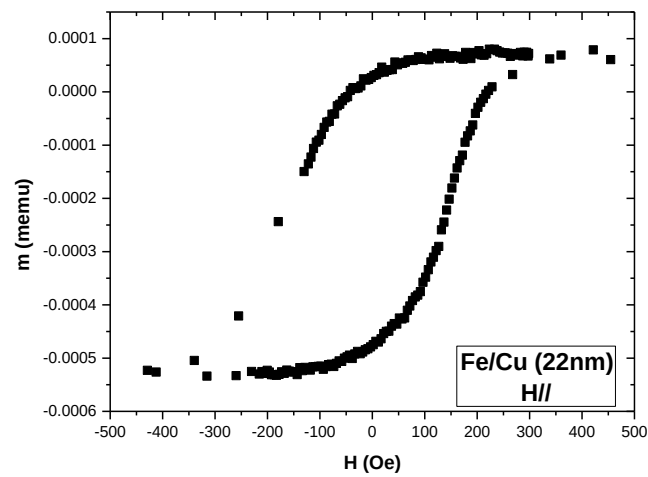


Figure IV.17 : Cycle d'hystérésis de la couche de $\text{Fe}(t=22\text{nm})/\text{Cu}$.

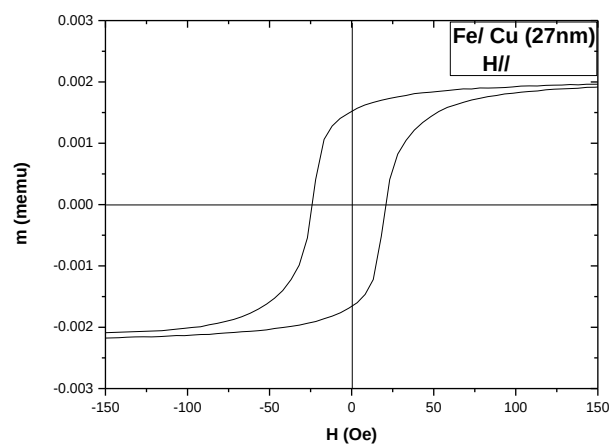


Figure IV.18 : Cycle d'hystérésis de la couche de $\text{Fe}(t=27\text{nm})/\text{Cu}$.

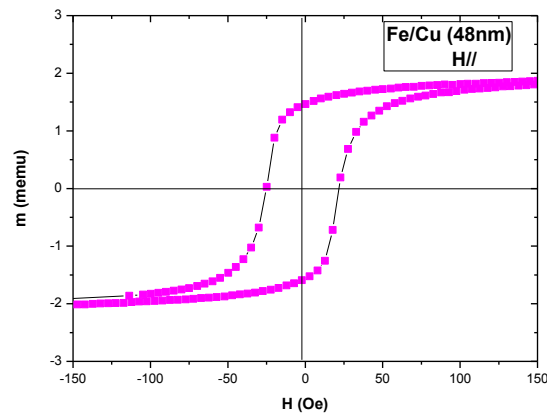


Figure IV.19 : Cycle d'hystérésis de la couche de Fe($t=48\text{nm}$)/Cu.

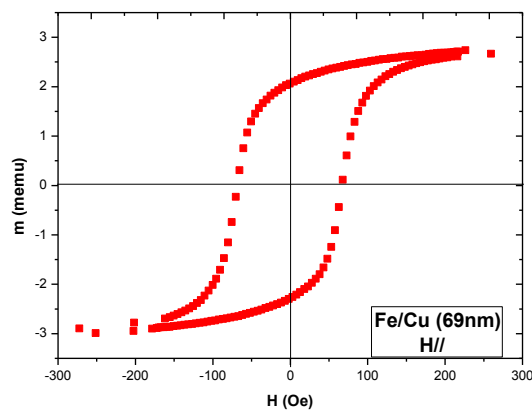


Figure IV.20 : Cycle d'hystérésis de la couche de Fe($t=69\text{nm}$)/Cu.

IV.3 Paramètres intrinsèques des couches minces de Fer

A partir des courbes d'hystérésis qui sont présentées dans le paragraphe IV.2, nous avons accès à la mesure des paramètres intrinsèques des couches minces de Fer, tels que le champ coercitif, le champ de saturation, et la squareness. Les résultats sont reportés sur les tables IV.1, IV.2 et IV.3.

Epaisseur (nm)	champ coercitif (Oe)	champ de saturation (Oe)	squareness
13	30	63	0.72
15	60	270	0.83
22	29	43	1
27	15	68	0.83
48	27	35	1
52	50	179	0.82
69	96	127	0.82

Table IV.1: Paramètres magnétiques intrinsèques des films Fe/Si(100) en fonction de l'épaisseur.

Epaisseur (nm)	champ coercitif (Oe)	champ de saturation (Oe)	squareness
13	47	120	0.85
15	45	400	0.78
22	10	102	0.43
27	7	45	0.25
48	19	43	0.90
52	54	83	0.75
69	92	104	0.92

Table IV.2: Paramètres magnétiques intrinsèques des films Fe/Si(111) en fonction de l'épaisseur.

Epaisseur (nm)	champ coercitif (Oe)	champ de saturation (Oe)	squareness
13	130	375	0.85
15	72	151	0.76
22	26	/	0.78
27	23	174	0.79
48	21	90	0.80
69	68	157	0.74

Table IV.3: Paramètres magnétiques intrinsèques des films Fe/Cu en fonction de l'épaisseur.

IV.3.1 Champ coercitif

Le champ coercitif est un paramètre très important dans les propriétés des couches minces ferromagnétiques. Une forte corrélation est trouvée entre le champ coercitif et les paramètres de dépôt, citons le temps de dépôt, ce dernier permet de régler le champ coercitif voulu pour une application donnée [7]. Les valeurs du champ coercitif sont également tributaires des défauts, de la taille des grains, des joints de grains, des impuretés, de l'état de surface et d'interface [6, 7, 9]. Dans ce paragraphe, nous étudierons l'effet de l'épaisseur, de la taille des grains et de la rugosité sur le champ coercitif.

IV.3.1.1 Effet de l'épaisseur

La **figure IV.21** montre l'évolution du champ coercitif H_c en fonction de l'épaisseur des couches de Fer sur Si(100), Si(111) et Cu. Le comportement de H_c en fonction de l'épaisseur diffère d'un substrat à l'autre. Le champ coercitif diminue avec l'épaisseur jusqu'à une épaisseur limite (27nm) où il atteint sa valeur minimale, qui est de 15 Oe pour Fe/Si(100), 7 Oe pour Fe/Si(111), et 21 Oe pour Fe/Cu à $t = 48\text{nm}$. Puis il augmente à mesure que l'épaisseur augmente jusqu'à la valeur de 96 Oe pour Fe/Si(100), 92 Oe pour Fe/Si(111) et 68 Oe pour Fe/Cu. Cette évolution en deçà de la valeur d'épaisseur critique suit la loi bien connue en t^{-n} du modèle de Néel, où t est l'épaisseur de la couche mince et n un nombre réel. Cette évolution du champ coercitif peut donc être attribuée aux fluctuations de l'épaisseur de la couche magnétique, modèle approprié pour les parois de Bloch. Au delà de la valeur de l'épaisseur critique, l'augmentation du champ coercitif peut être liée au nombre de joints de grains qui a augmenté du fait de la diminution de la taille des cristallites. Ces joints de grains à la surface des couches de Fer peuvent accrocher les parois, le champs nécessaire pour les décrocher n'en sera que plus important d'où l'augmentation du champ coercitif.

A titre de comparaison avec nos résultats on peut citer les travaux suivants : les couches minces de Fe électrodéposées sur des substrats de Si, montre une diminution du champ coercitif pour $t > 27 \mu\text{m}$ [6], on note aussi les multicouches de NiFe/Cu, le champ coercitif diminue de 24 Oe à 12 Oe pour t varie de $0,3 \mu\text{m}$ à $5 \mu\text{m}$ [10]. Une diminution de champ coercitif avec l'augmentation de l'épaisseur est montrée par Kim et al. [11] pour les couches minces de $\text{Fe}_{100-x}\text{Ni}_x$.

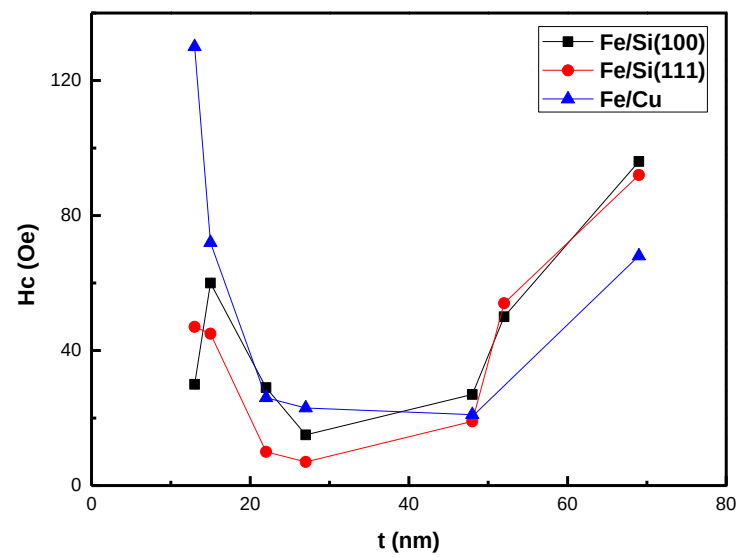


Figure IV.21: Variation du champ coercitif parallèle en fonction de l'épaisseur de la couche de Fer.

IV.3.1.2 Effet de la taille des grains

Comme nous l'avons mentionné dans le chapitre 1, la taille des grains est un facteur très important dans l'étude des propriétés magnétiques. Les valeurs du champ coercitif des couches de Fe en fonction de la taille des grains sont reportées dans la table **VI.4**.

Fe/Si(100)

D (nm)	29	31	32	35	35	38
H _c (Oe)	96	60	30	27	29	50

Fe/Si(111)

D (nm)	29	32	33	37	37	39
H _c (Oe)	45	54	47	92	19	7

Fe/Cu

D (nm)	15	23	36	38	42
H _c (Oe)	68	72	130	26	23

Table IV.4 : Champ coercitif des couches de Fe en fonction de la taille des grains.

La figure IV.22 et la figure IV.23 montrent l'évolution du champ coercitif H_c des couches de Fer sur Si(100), Si(111) et Cu. Le comportement de H_c des couches de Fer en fonction de la taille des grains, diffère d'un substrat à l'autre. En effet, sur Si(100) le champ coercitif diminue à mesure que la taille des grains augmente d'une valeur de 96 Oe pour $D = 29$ nm jusqu'à une valeur de 27 Oe pour $D = 35$ nm, en conformité avec le modèle de Néel (Cf chapitre 1). Ce comportement indique que l'épinglage des joints des grains est à l'origine des valeurs du champ coercitif. Lorsque la taille des grains devient grande, le nombre des joints de grains diminue, ce qui implique une diminution du champ coercitif. Ce résultat est observé par d'autres auteurs, citons les couches minces de Fe évaporé sur Si [6].

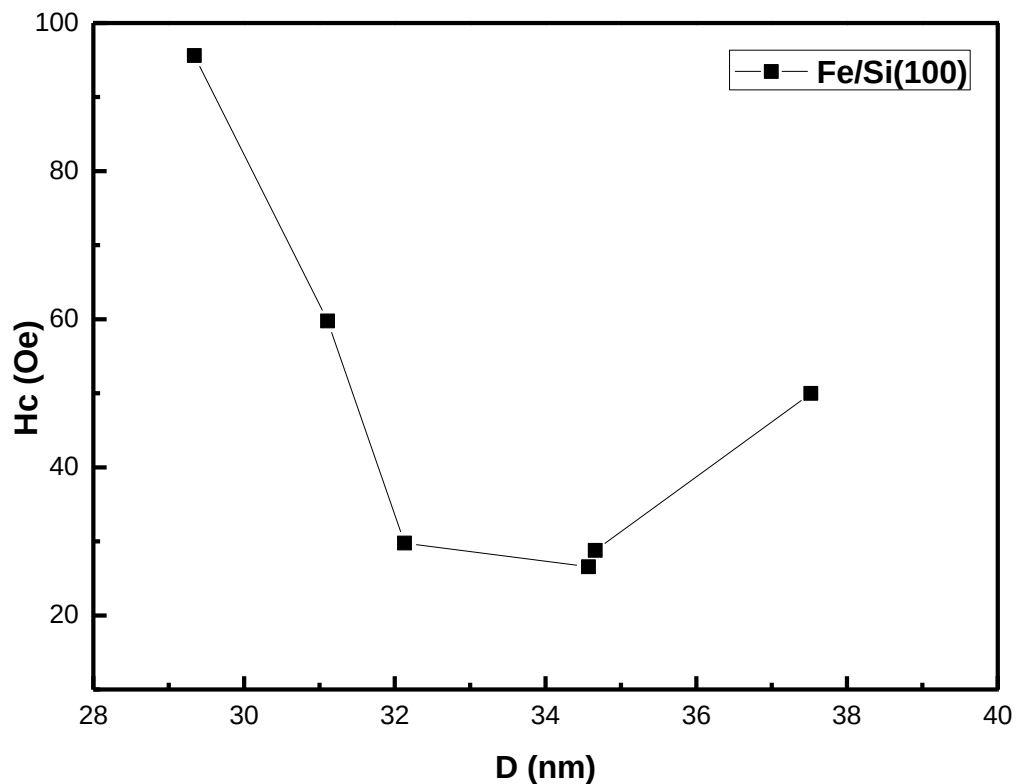


Figure IV.22: Variation du champ coercitif parallèle en fonction de la taille des grains des échantillons de Fe/Si(100).

Sur Si (111) et Cu, la tendance est différente, l'évolution du champ coercitif avec la taille des grains présente un maximum à mesure que la taille des grains augmente, jusqu'à une taille limite, puis diminue (voir **figure IV.23**). Au vu de ces résultats, on peut dire qu'il existe une taille des grains de transition, à partir de laquelle le comportement du champ coercitif des

couches du fer est modifié. Ce résultat est en accord avec ceux d'autres auteurs pour les couches minces de Fe/Al et Fe/verre et aussi les nanoparticules de Ni [6,7,12].

Sur Si(111), on note qu'à partir d'une taille des grains de 37 nm le champ coercitif diminue pour atteindre sa valeur minimale ($H_C = 7$ Oe) pour une taille des grains de 39 nm. Sur le cuivre, la taille à partir de laquelle le champ coercitif décroît est égale à 36 nm. Dans ces deux régions, l'évolution du champ coercitif peut être interprété par le déplacement des parois de domaines magnétiques.

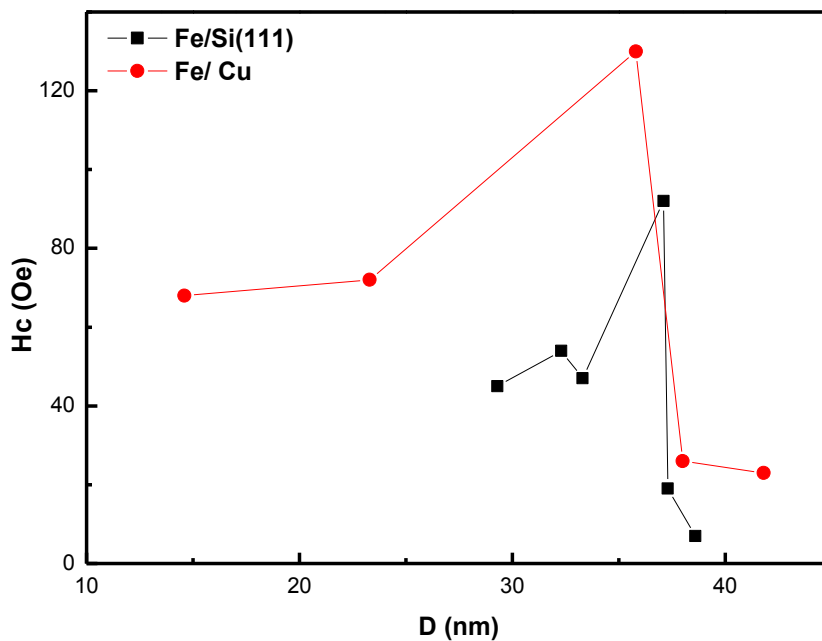


Figure IV.23: Variation du champ coercitif parallèle en fonction de la taille des grains des échantillons de Fe/Si(111) et de Fe/Cu.

IV.3.1.3 Effet de la rugosité

La rugosité est un facteur important dans l'étude des propriétés magnétiques des couches minces. Son effet vis-à-vis des parois de domaine est semblable à celui d'inhomogénéités qui vont freiner le processus de retournement de l'aimantation. Ainsi, la présence de défauts augmente la valeur du champ de saturation et du champ coercitif. La **table IV.5** résume les valeurs de champ coercitif en fonction de la rugosité pour les séries déposées sur Si.

<i>Fe/Si(100)</i>						
H_c (Oe)	29	15	60	50	96	30
RMS (nm)	0,4	0,5	0,6	1,8	2,6	4,0

<i>Fe/Si(111)</i>						
H_c (Oe)	45	54	19	10	7	47
RMS (nm)	0,5	0,5	0,5	2,1	4,4	5,5

Table IV.5 : Les valeurs de champ coercitif en fonction de la rugosité des couches de *Fe/Si(100)* et de *Fe/Si(111)*.

On observe pour la série des échantillons de *Fe/Si(100)* que la plus grande valeur du champ coercitif ($H_c = 96$ Oe) correspond à une couche rugueuse (RMS=2,6 nm), alors que la petite valeur du H_c (15 Oe) correspond à une couche moins rugueuse (RMS=0,5 nm). Pour la série des échantillons de *Fe/Si(111)*, la plus grande valeur du champ coercitif ($H_c = 54$ Oe) correspond à une couche lisse (RMS= 0,5 nm), alors que la petite valeur de H_c (7 Oe) correspond à une couche rugueuse (RMS=4,4 nm).

L'évolution du champ coercitif en fonction de la rugosité de la surface des couches de Fe sur Si(100) et Si(111) est montrée sur la **figure IV.24**. On remarque que le champ coercitif évolue différemment d'un substrat à l'autre. Pour la série des échantillons de *Fe/Si(100)* le champ coercitif augmente en fonction de la rugosité jusqu'à un maximum puis il décroît, contrairement au cas des échantillons de la série *Fe/Si(111)* où le champ coercitif diminue pour atteindre un minimum, puis il augmente. On peut conclure que la rugosité surfacique, que le type de substrat ont une influence sur les valeurs du champ coercitif.

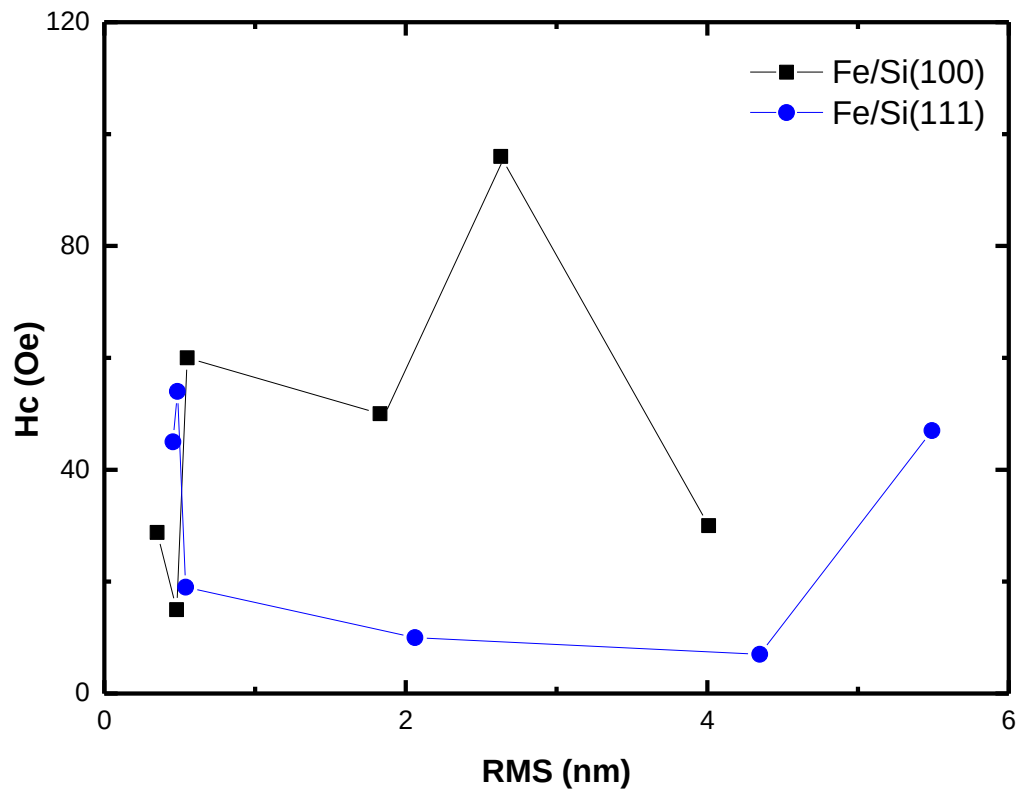


Figure IV.24 : Champ coercitif en fonction de la rugosité de la surface des couches de Fe/Si(100) et de Fe/Si(111).

IV.3.2 Champ de saturation

IV.3.2.1 Effet de l'épaisseur

Les variations de champ de saturation en fonction de l'épaisseur de la couche mince magnétique sont présentées sur la **figure IV.25**. les résultats montrent que ce champ présente un maximum pour l'épaisseur de 15 nm, il atteint une valeur $H_s=270$ Oe pour Fe/Si(100), $H_s=400$ Oe pour Fe/Si(111), et $H_s= 375$ Oe pour Fe/Cu à une épaisseur de 13 nm. Au delà il décroît jusqu'à une valeur de champ de saturation de 35 Oe, 43 Oe et 90 Oe pour les substrats de Si(100), Si(111) et Cu respectivement. A partir de ces valeurs minimales, le champ de saturation commence à augmenter.

Les valeurs maximales de champ de saturation qui correspondent à la transition vers un mode de retournement de l'aimantation plus rapide peuvent être estimées : $H_s(\text{Si}(111)) < H_s(\text{Si}(100)) < H_s(\text{Cu})$.

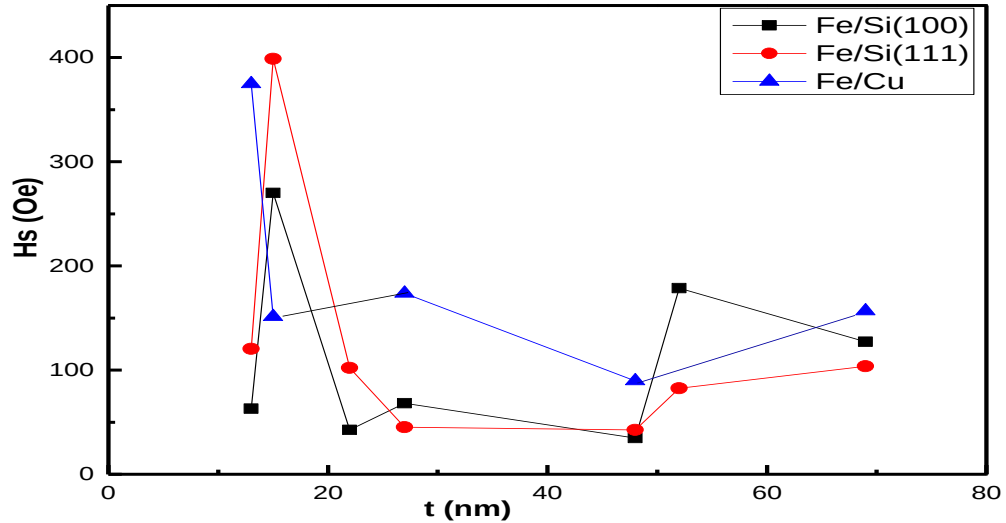


Figure IV. 25: Variations du champ de saturation parallèle en fonction de l'épaisseur de la couche de Fer.

L'augmentation de l'épaisseur, à partir des valeurs critiques, va contribuer à diminuer les défauts susceptibles d'entraver la mobilité des parois de domaines, ce qui peut expliquer qu'à partir d'une certaine épaisseur, le champ de saturation diminue.

IV.3.2.2 Effet de la taille des grains

La **figure IV.26** montre que le champ de saturation parallèle évolue différemment d'un substrat à l'autre en fonction de la taille des grains. En effet, sur Si(111), le champ de saturation des couches de Fer diminue avec la taille des grains, d'une valeur d'environ 400 Oe ($D = 30$ nm) jusqu'à une valeur d'environ 45 Oe ($D = 39$ nm). Sur Cu, le champ de saturation augmente de la valeur 157 Oe ($D = 15$ nm) jusqu'à la valeur 375 Oe ($D = 36$ nm), puis il décroît à nouveau. La série de Si(100) montre une augmentation du champ de saturation jusqu'à 270 Oe ($D = 31$ nm) puis une diminution jusqu'à 35 Oe ($D = 35$ nm), et enfin une nouvelle augmentation. Ainsi, la cinématique du processus de retournement de l'aimantation est donc sensible à la taille des grains et au type de substrat de dépôt.

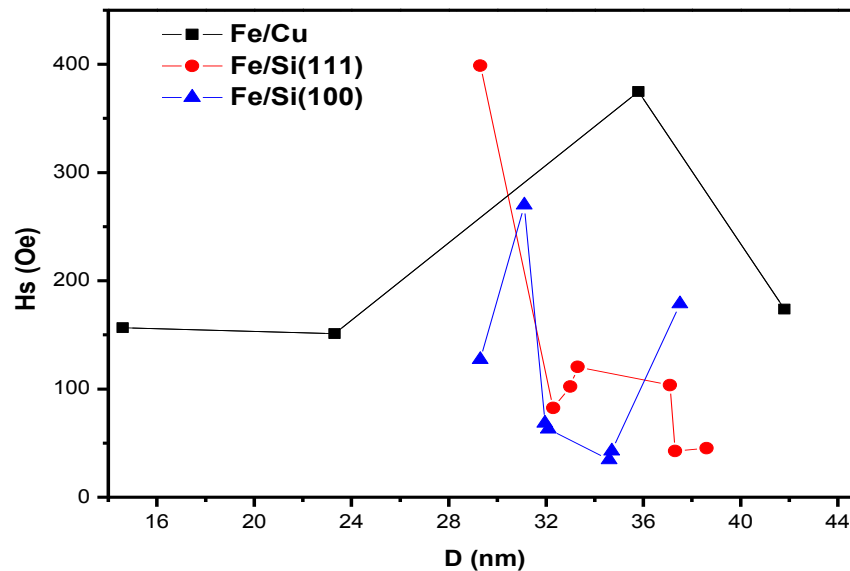


Figure VI.26: Variations du champ de saturation parallèle en fonction de la taille des grains des échantillons de Fe/Si(100), Fe/Si(111) et Fe/Cu.

IV.3.2.3 Effet de la rugosité

Fe/Si(100)					
H _s (Oe)	43	68	270	179	127
RMS (nm)	0,4	0,5	0,6	1,8	2,6

Fe/Si(111)						
H _s (Oe)	399	83	43	102	45	121
RMS (nm)	0,5	0,5	0,5	2,1	4,4	5,5

Table IV.6 : Les valeurs de champ de saturation en fonction de la rugosité des couches de Fe/Si(100) et de Fe/Si(111).

Pour la série des échantillons de Fe/Si(100), le champ de saturation montre une valeur maximale de 270 Oe pour une rugosité de 0,6 nm, et une valeur minimale de 43 Oe pour une rugosité de 0,4 nm (**table IV.6**), alors que la série des échantillons de Fe/Si(111) montre une valeur maximale du champ de saturation de 399 Oe pour une rugosité de 0,5 nm, et une valeur

minimale de 43 Oe pour une rugosité de 0,5 nm, autrement dit, le champ de saturation n'est pas affecté par la rugosité des films déposés sur Si(111).

L'évolution du champ de saturation en fonction de la rugosité de surface est montrée sur la **figure IV.27**. Pour la série des échantillons de Fe/Si(100), on remarque que le champ de saturation augmente jusqu'à un maximum puis il décroît, contrairement au cas des échantillons de la série Fe/Si(111) où le champ de saturation diminue pour atteindre un minimum, puis il augmente.

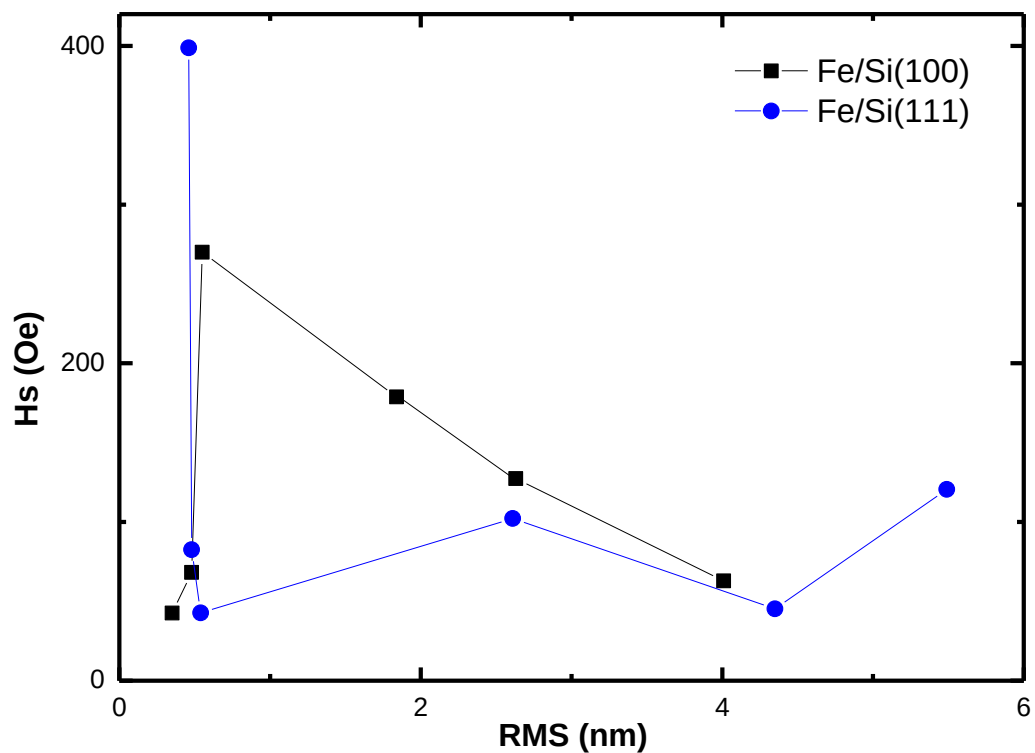


Figure IV.27 : *Champ de saturation en fonction de la rugosité de la surface des couches de Fe/Si(100) et de Fe/Si(111).*

IV.3.3 La squareness

Effet de l'épaisseur

On peut voir sur la **figure IV.28** que l'évolution de la squareness S parallèle est différente sur chacun des trois substrats Si(100), Si(111) et Cu.

Le rapport de l'aimantation rémanente à l'aimantation à saturation en champ parallèle, présente un minimum en fonction de l'épaisseur sur Si(111) tandis qu'il ne varie que légèrement sur le cuivre et Si(100). On peut attribuer la légère variation de S à l'existence de plusieurs orientations préférentielles dans le plan de la couche de Fer.

La majorité des valeurs de S sont supérieures à 0,7 sauf pour Fe/Si (111) avec une épaisseur $t = 22$ nm et $t = 27$ nm où sa valeur est située à $S < 0,5$. Cette faible valeur de S indique que le retournement de l'aimantation se fait par rotation des spins. Pour Fe/Si (100) avec 48 nm et 22 nm d'épaisseur, la squareness S égale à 1.

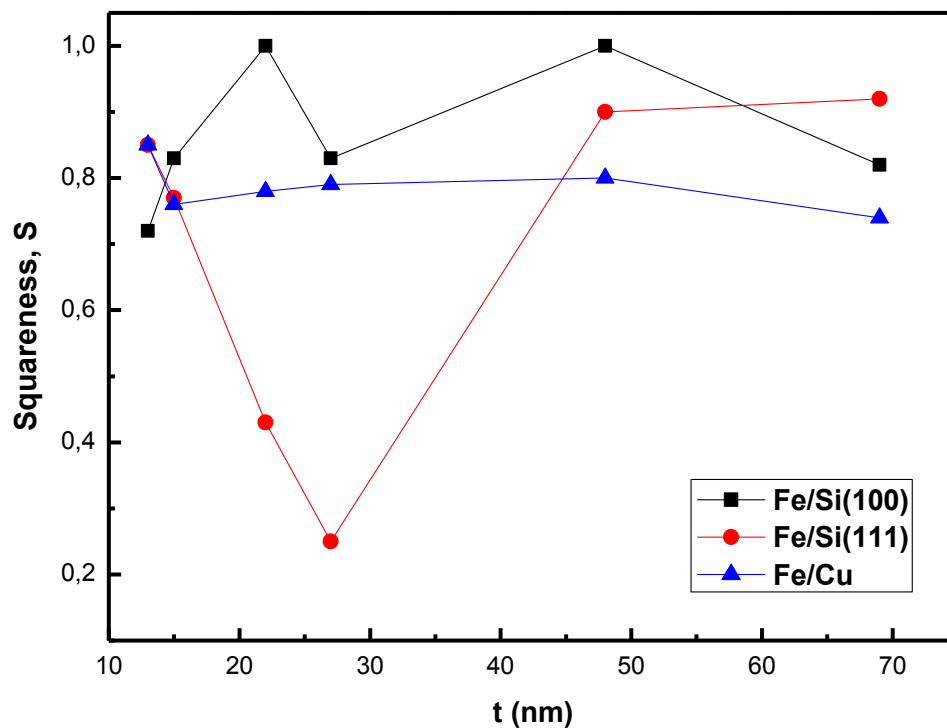


Figure IV.28 : Variation de la squareness parallèle en fonction de l'épaisseur de la couche de Fer.

VI.4 Conclusion

L'étude des cycles d'hystérésis des couches minces de Fer a permis de mettre en évidence que l'axe de facile aimantation est dans le plan, et l'axe difficile est perpendiculaire au plan. Aussi, une isotropie planaire est observée pour tous les échantillons.

L'exploitation des cycles d'hystérésis nous a permis de déduire les valeurs du champ coercitif, le champ de saturation et la squareness des couches minces de Fer. Une forte corrélation est trouvée entre les propriétés magnétiques et les paramètres de dépôt. Des valeurs relativement faibles du champ coercitif sont observées ($H_c < 100$ Oe) excepté pour l'échantillon le plus fin de la série Fe/Cu ($t = 13$ nm) avec une coercivité de 130 Oe. La coercivité diminue en fonction de l'épaisseur, jusqu'à une épaisseur limite puis elle augmente. La taille des grains et la rugosité influent également sur la coercivité: l'évolution du champ coercitif en fonction de la taille des grains suit une loi de Néel pour la série des échantillons de Fe/Si(100), alors que pour les séries des échantillons de Fe/Cu et Fe/Si (111), l'évolution de H_c suit un modèle de Kittel. Une bonne squareness est observée pour la majorité des échantillons, ce qui confirme que les couches minces présentent un axe facile majoritairement dans le plan sans aucune direction préférentielle.

Références bibliographiques

- [1] J. Zarpellon, H.F. Jurca, J.J. Klein, W.H. Schreiner, N. Mattoso, and D.H. Mosca: *Electrochim. Acta*, 53(2007), 2002–08.
- [2] Kewei Liu, Dezhen Shen, Jiying Zhang, Xiaojie Wu, Binghui Li, Bingsheng Li, Youming Lu, Xiwu Fan, *Solid State Communications*, 140 (2006) 33–37.
- [3] E. Jartych, M. Jalochoowski, and M. Budzynski: *Appl. Surf. Sci.*, 193 (2002), 210–16.
- [4] A. Radkovskaya, N. Perov, A. Sivov, A. Getman, N. Sudarikova, *J. Magn. Magn. Mater.*, 258-259 (2003) 57–60.
- [5] Kockar, H., Meydan, *J. Magn. Magn. Mater.*, 242-245 (2002), 183-186.
- [6] M. Mebarki, A. Layadi, L. Kerkache, N. Tiercelin, V. Preobrazhensky, and P. Pernod, *Appl. Phys. A*, 120 (2015), 97–104.

-
- [7] M. Mebarki, A. Layadi, L. Kerkache, M.R. Khelladi, A. Azizi, N. Tiercelin, V.Preobrazhensky, and P. Pernod, *metall and mat trans A*, 47 A(2016), 3677-3683.
- [8] T. Meydan, H. Kockar, *J. Optoelect. Adv. Mater*, 6 (2004), 633 – 636.
- [9] A. Javed, N.A. Morley, M.R.J. Gibbs, *Appl. Surf. Science*, 257 (2011) 5586–5590.
- [10] H. Kuru, H. Kockar, M. Alper, *J Mater Sci: Mater Electron*, 26 (2015), 5009–5013.
- [11] J.G. Kim, K.H. Han, S.H. Song, and A. Reilly, *Thin Solid Films*, 440 (2003), 54–59.
- [12] R. K. Das, S. Rawal, D. Norton, and A. F. Hebard, *J. App. Phys*, 108 (2010), 123920-4.

Conclusion générale

Conclusion générale

L'objectif de l'étude présentée dans cette thèse est l'investigation de l'effet de l'épaisseur et du type et de l'orientation du substrat, sur les propriétés structurales, morphologiques, et magnétiques des couches minces de Fer. Ces derniers sont élaborés par évaporation sous vide par effet Joule, au sein du laboratoire d'étude des surfaces et interfaces de matériaux solides (L.E.S.I.M.S) de l'Université Ferhat Abbas Sétif 1. Les substrats utilisés sont le silicium monocristallin Si (100), Si(111) et le cuivre. Les films étudiés ont les épaisseurs 13, 15, 22, 27, 48, 52 et 69 nm, mesurées par un profilomètre Dektak 150.

La diffraction des rayons X, la microscopie à force atomique et le magnétomètre à échantillon vibrant sont les techniques utilisées dans l'étude des propriétés structurales, morphologiques et magnétiques de ces films.

Les mesures structurales montrent la direction $\langle 110 \rangle$ comme une orientation préférentielle pour tous les échantillons élaborés. Les valeurs du paramètre de maille sont situées entre 2,863 Å et 2,867 Å pour le Fe/Si(100), entre 2,864 Å et 2,873 Å pour le Fe/Si(111) et 2,867 Å pour toute la série de Fe/Cu. La majorité des échantillons sont sous contraintes de dilatation.

La taille des grains de la série Fe/Si (100) varie entre 30 et 38 nm, et de 30 nm à 39 nm pour la série Fe/Si(111) et entre 15 nm et 42 nm pour la série Fe/Cu. Une variation claire entre la taille des grains et l'épaisseur n'a pas pu être établie.

La microscopie à force atomique (AFM) révèle des images de surfaces très lisses pour la plupart des échantillons, alors que quelques échantillons présentent des topographies de surfaces rugueuses. La rugosité de surface varie entre 0,3 et 4,0 nm pour la série des échantillons de Fe/Si(100), et varie entre 0,5 et 5,5 nm pour la série des échantillons de Fe/Si(111).

En ce qui concerne les propriétés magnétiques, les mesures d'aimantation en fonction du champ magnétique montrent des cycles d'hystérésis pour tous les échantillons, ce qui confirme la nature ferromagnétique de nos couches. Ainsi les couches minces de Fer montrent un axe de facile aimantation dans le plan, et un axe difficile perpendiculaire au plan. Lors de l'application du champ magnétique dans le plan en deux orientations ($\Theta=0^\circ$ et $\Theta=90^\circ$) les

cycles de nos échantillons restent pratiquement inchangés, ce qui confirme l'existence d'une isotropie planaire. L'évolution des paramètres magnétiques (H_C , H_S , et S) ont été étudiés en fonction de l'épaisseur et de la taille des grains. Nous avons trouvé que la coercivité diminue en fonction de l'épaisseur, jusqu'à une épaisseur limite puis elle augmente pour les trois séries, avec un champ coercitif qui varie entre 7 et 130 Oe. Le champ coercitif en fonction de la taille des grains suit une loi de Néel pour la série des échantillons de Fe/Si(100), alors que les séries des échantillons de Fe/Cu et Fe/ Si (111) suit un modèle de Kittel. Le champ de saturation varie entre 35 Oe et 270 Oe pour la série de Fe/Si (100), entre 43 Oe et 400 Oe pour la série de Fe/Si(111), et entre 90 Oe et 375 Oe pour la série de Fe/Cu. Une bonne squareness est observée pour la majorité des échantillons, ce qui confirme que les couches minces présentent un axe facile majoritairement dans le plan. La squareness S des couches de Fe/Si (111) d'épaisseurs 22 et 27 nm est inférieure à 0,5, ce qui suggère que le retournement de l'aimantation se fait par rotation des spins. Pour les deux couches de Fe/Si (100) d'épaisseurs 22 et 48 nm, la squareness S est égale à 1.

Résumé

Des séries de couches minces de Fe ont été évaporées sous vide par effet Joule, sur des substrats de Si(100), Si(111) et Cu. Les épaisseurs sont confinées dans la gamme de 13 à 69 nm. La caractérisation des couches minces obtenues a été faite par la diffraction des rayons X (DRX), la microscopie à force atomique (AFM) et le magnétomètre à échantillon vibrant (VSM). La DRX a montré que les couches minces de Fe sont polycristallines avec une structure cubique centrée et une direction préférentielle suivant (110), la taille des grains étant confinée entre 14,6 et 41,8 nm. Le taux de contrainte ϵ est positif pour la pluparts des échantillons excepté pour un seul film de Fe/Si(100) qui présente une valeur négative. La microscopie AFM a montré que les échantillons de la série Fe/Si(100) ont une rugosité de surface variant entre 0,4 et 4 nm, alors que les échantillons de la série Fe/Si(111) ont une rugosité varie entre 0.5 et 5 nm.

Les cycles d'hystérésis montrent un axe facile dans le plan et un axe difficile perpendiculaire au plan des couches, ainsi qu'une isotropie magnétique planaire pour toutes les couches minces de Fe. Les couches montrent une diminution de la coercivité avec l'augmentation de l'épaisseur jusqu'à une épaisseur limite. Le champ de saturation et le champ coercitif varient entre 35 à 400 Oe et de 7 à 130 Oe, respectivement. Une bonne squareness est observée pour la majorité des couches minces.

Mots clés: Fe ; couches minces; évaporation ; DRX; VSM; champ coercitif.

ملخص

تم وضع سلاسل من طبقات رقيقة من الحديد عن طريق التبخير في الفراغ فوق مساند من النحاس و السيليسيوم الموجه (100) و السيليسيوم الموجه (111). سمك العينات محصور بين 13 و 69 نانومتر. تمت دراسة خواص العينات باستخدام تقنية انعراج الانعراج (DRX). اثبتت الدراسة بواسطة (VSM) و مغناطيسي العينة المتذبذبة (AFM) ومجهر القوة الذرية (DRX) الاشعة السينية (ان العينات DRX) متعددة البلورات و موجهة وفق الاتجاه (110), حجم البلورات محصور بين 14.6 و 41.8 نانومتر. بالنسبة لقيم الضغط فهو ايجابي ان خشونة سطح رقائق AFM اثبتت الدراسة بواسطة Si(100). لغالبية الرقائق عدا البعض القليل من رقائق الحديد الموضوعة فوق بين 0.5 و 5.5 نانومتر. فتتراوح Si(111) تتراوح بين 0.4 و 4 نانومتر, بينما الموضوعة فوق Si(100) الحديد الموضوعة فوق (مغناطيسي العينة المتذبذبة اثبتت ان العينات تتميز بمغناطيسية في المستوي و ان الحقل القسري يتناقص مع زيادة السمك حتى سمك معين ثم يبدأ بالتزايد. حقل التشبع يتغير من 35 الى 400 اورشند بينما الحقل القسري يتغير من 7 الى 130 اورشند. مربعية المنحنيات المغناطيسية جيدة لغالبية الرقائق.

كلمات مفتاحية:

الحديد؛ التبخير؛ طبقات رقيقة؛ تقنية انعراج الاشعة السينية؛ مغناطيسي العينة المتذبذبة؛ الحقل القسري.

Abstract

A series of iron thin films have been deposited under vacuum, by thermal evaporation onto Si (100), Si (111) and Cu substrates. The film thickness ranges from 13 to 69 nm. The characterization of the obtained thin film was performed by the X-ray diffraction (XRD), the force atomic microscopy (AFM), and vibrating sample magnetometer (VSM) techniques. XRD measurements show that the films are polycrystalline with centered cubic structures and grow with <110> texture. The grain size values range from 14,6 to 41,8 nm. The strain ϵ is positive for the majority of samples except for a single layer among Fe/Si (100) series. AFM experiments were done to study the roughness of the Fe surface. The roughness is found to be between 0.4 and 4 nm for Fe/Si (100) and between 0.5 and 5.5 nm for Fe/Si (111) ones.

Using VSM, the hysteresis curves show that the easy magnetization axis lies in the film plane for all the samples, with no magnetic anisotropy within the plane. The coercive field values seem to decrease with increasing thickness, till a critical value where an increase of H_c appears for $t > t_c$. H_c value ranges from 7 to 130 Oe. The saturation field ranges from 35 to 400 Oe. The value of squariness for majority of samples are greater than 0,7.

Keywords: Fe; thin films; evaporation, XRD; VSM; coercive field.