

République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique

Université Ferhat Abbas–SETIF

MEMOIRE

Présenté à la Faculté des Sciences
Département de Physique

Pour l'obtention du diplôme de

MAGISTER

Option : Physique du solide

Par

HEMMOUS MESSAOUD

THEME

**Étude des propriétés structurales et électriques des
couches minces de Ni/Si (100) et de Ni/verre déposées par
évaporation sous vide.**

Soutenu Publiquement le JJ/MM/2007

Devant la commission d'examen :

Président :	Mr. L. Louail	Prof	(UFAS – Sétif).
Rapporteur :	Mr. A. Layadi	Prof	(UFAS – Sétif).
Examineur :	Mr. A Bouabellou	Prof	(Uni de Mentouri Constantine).
Examineur :	Mr. M. Djabi	MC	(UFAS – Sétif).
Examineur :	Mr. L. Kerkache	MC	(UFAS – Sétif).

Remerciements :

Je tiens à exprimer ma profonde gratitude à Mr A. Layadi, professeur au département de physique (UFA de Sétif) qui a dirigé ce travail avec rigueur et patience. Son aide et ses conseils ont été précieux pour finaliser ce mémoire. Qu'il trouve ici mes sincères remerciements.

Je suis très reconnaissant envers Mr L. Louail, professeur au département de physique (UFA de Sétif) pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de présider le jury de cette thèse.

J'adresse mes vifs remerciements à Mr A Bouabellou, professeur à l'Université de Mentouri (Constantine), pour avoir accepté de juger ce travail.

Je remercie Mr M. Djabi, Maître de conférences à l'université de Sétif, pour avoir accepté de juger ce travail.

Je remercie Mr L. Kerkeche, Maître de conférences à l'université de Sétif, pour avoir accepté de juger ce travail.

Je remercie Mr Guittoum, chargé de recherche au CRNA (Alger) pour les efforts qu'il a donnés au sein du CRNA pour nous faire les expériences nécessaires. Qu'il trouve ici l'expression de mes sincères remerciements.

Je remercie Mr A. Benabbas, enseignant à l'université de Jijel pour les efforts qu'il a donnés au sein du Laboratoire L. I. M.E pour nous faire les analyses de la DRX.

Mes remerciements à Mr A. Bourzami, Maître de conférences au département de physique (UFA de Sétif) pour l'aide qu'il m'a apportée lors de l'élaboration des échantillons au laboratoire des couches minces. Aussi pour sa gentillesse et les précieux conseils qu'il n'a cessé de me prodiguer.

Finalement, je tiens à remercier tous ceux qui m'ont enseigné au département de physique. Surtout, ceux qui m'ont montré la voie de l'expérimentale. Sans oublier mes amis qui m'ont encouragé, surtout, N. Chemseddine et B. Ghebouli.

A tous un grand merci.

DEDICACES

Je dédie ce modeste travail

Principalement à : ma mère, mon père, Tarek et Asma

A mes très chères frères : mouloud et zoubir

A mes soeurs

A toute la famille Hemmous

Grand remerciement à T. Kacel

A tous mes collègues : Tayev, Fahima, M^{ed} Réda, Ilhem, Mounir, Selma, Saïd, Amer, Youcef, Hakim, Rachid, Hacem, Idris, Mebarak, Khelifa,et tous les autres.

A la mémoire de notre précieux ami Bel Mehdi Amine

Aux gents que j'aimes bien.

Messaoud

Table des

matières

Table des matières.

Introduction générale. 1.

CHAPITRE I ELABORATION DES ECHATILLONS.

I. Introduction.....	3.
II. Effet de préparation des surfaces	4.
III. Nettoyage des substrats.....	4.
IV. Méthode de dépôt des couches minces.....	5.
III.1. principe de la méthode d'évaporation sous vide.....	5.
III.2. Description de l'évaporateur.....	7.
III.2.1. Chambre à vide.....	7.
III.2.2. Système de pompage.....	8.
III.2.3. Système de mesure.	9.
III.2.4 Système de commandement.....	9.
III.2.5. Système d'excitation.	9.
III.3. Réalisation de dépôt.....	9.
III.3.1. première étape.....	11.
III.3.2. deuxième étape.....	11.
III.3.3. troisième étape.....	11.
IV. Conclusion.....	12.

CHAPITRE II ETUDE DES PROPRIETES STRUCTURALES.

I. Introduction.....	14.
II. Analyse physico-chimique (La rétrodiffusion de Rutherford).....	15.
II.1. Introduction.....	15.
II.2. Principe de la RBS.....	15.
II.2.1. Facteurs cinématiques.....	15.
II.2.2. Pouvoir d'arrêt.....	18.
II.2.3. Pertes d'énergies.....	18.
II.2.4. La section efficace différentielle.....	20.

IV.1.1. système Ni/Verre.....	53.
IV.1.2. Système Ni/Si (100).....	54.
IV.2.Étude de la résistivité en fonction de l'épaisseur et de la vitesse de dépôt.....	56.
IV.2.1. Système Ni/verre.....	56.
IV.2.2.Système Ni/Si (100).....	57.
IV.3. Étude de la résistance en fonction de la taille moyenne des grains.....	60.
IV.3.1. Système Ni/verre.....	60.
IV.3.2. Système Ni/Si (100).....	60.
IV.4. Étude de la résistivité en fonction de la taille moyenne des grains.....	60.
IV.4.1. Système Ni/verre.....	60.
IV.4.2. Système Ni/Si (100).....	62.
V. Effet de la taille sur les propriétés électriques.....	64.
V.1. Diffusion des électrons à la surface.....	64.
V.2.Diffusion des électrons aux joints de grains.....	68.
VI. Conclusion.....	71.

CONCLUSION GENERALE. **73.**

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES. **76.**

Introduction

générale

INTRODUCTION GENERALE

Depuis quelques années l'étude des propriétés physiques des couches minces à base de matériaux ferromagnétiques suscite un intérêt considérable en raison des applications qui peuvent en résulter dans le domaine de l'enregistrement magnétique (têtes et milieux).

La réduction de la dimensionnalité des échantillons étudiés, les effets de surface et d'interface qui en résultent ainsi que l'effet du substrat sur les propriétés physiques sont à l'origine d'autres propriétés comme les variations de la résistivité avec l'épaisseur des couches, les oscillations du couplage entre les couches, l'anisotropie magnétique ...etc. Il est apparu que les propriétés électriques et magnétiques dépendent fortement de la qualité et de l'orientation cristalline des couches minces réalisées. C'est pourquoi une étude des paramètres associés à la croissance des couches est nécessaire pour pouvoir expliquer les différents changements de ces propriétés. D'autre part les propriétés électriques et magnétiques sont sensibles aux effets de faible variation des propriétés structurales de ces échantillons. Ceci exige de mieux comprendre les processus de croissances des matériaux en couches minces.

Ce travail fait suite aux travaux réalisés au laboratoire des couches minces du département de physique à l'UFA Sétif sur les couches minces de Nickel. Dans un premier temps A. Layadi et B. Ghebouli (Thèse de Magister. 1996) présentent une étude sur des couches minces de Ni préparées par pulvérisation diode dc sur des substrats de Si (100), Si (111), verre et mica. Par la suite A. Layadi et C. Nacereddine (Thèse de Magister. 2004) réalisent un travail sur les couches minces de Ni sur des substrats de cuivre (Cu) et de verre par évaporation sous vide. Dans ce travail on propose une étude sur les propriétés structurales, électriques et plus tard magnétiques des couches minces de Ni préparées par évaporation sous vide sur des substrats de Si monocristallin d'orientation [100] et de verre, et toujours sous la direction de Mr: A. Layadi. Notons que le but de tous ces travaux est d'étudier l'effet du substrat sur les propriétés structurales, électriques et magnétiques des films de Ni. Les travaux menés dans cette thèse se sont concentrés sur la préparation

des échantillons, la caractérisation des échantillons par la diffraction des rayons X (DRX) et la rétrodiffusion de Rutherford (RBS), et la variation de la résistivité électrique qu'on va mesurer à l'aide de la méthode des quatre pointes. Cette thèse s'articulera autour de trois chapitres.

Le chapitre I rappellera la problématique actuelle liée à l'influence de la méthode de préparation et des conditions opératoires des échantillons sur les propriétés physiques des couches minces. On exposera aussi la méthode de dépôt avec les différentes étapes d'élaboration des couches minces de Ni déposées sur des substrats de Si (100) et de verre et on terminera ce chapitre par un résumé des conditions d'élaboration de nos échantillons et une petite conclusion.

Le chapitre II est une étude des propriétés structurales de nos échantillons. On présentera les différentes étapes de caractérisation avec des méthodes permettant (i) de mesurer les épaisseurs des couches par (RBS) en utilisant une simulation des spectres par le logiciel SIMNRA (5.02), (ii) d'étudier la structure cristallographique (DRX) en se basant sur le montage de Bragg- Brentano (Mode $\theta - 2\theta$). On terminera ensuite par une discussion des résultats obtenus.

Le chapitre III est consacré à l'étude des propriétés électriques. On étudiera le comportement de la résistivité électrique en fonction des différents paramètres (épaisseur, vitesse de dépôt, taille moyenne des grains...). On fera une corrélation entre les propriétés électriques et les propriétés structurales (taille des grains). On finira ce chapitre par une analyse basée sur les deux modèles de Fuchs-Sondheimer et de Mayadas-Shatzkes qui permettent d'expliquer certains résultats expérimentaux.

Une conclusion générale permet de faire la synthèse des résultats obtenus et de décrire les perspectives de ce travail de recherche.

Elaboration des échantillons

CHAPITRE I

ELABORATION DES ECHANTILLONS

I. Introduction

Les couches minces déposées sous vide ont une importance croissante dans les applications les plus variées et les plus modernes. Une grande partie de ces dépôts s'effectue par évaporation sous vide à partir de sources à effet Joule ou de canons à bombardement électronique. Cependant de nouvelles techniques apparaissent ou se développent telle que les évaporations par faisceau laser ou arc électrique, les évaporations réactives ou assistées par faisceaux d'ions.

Dans ce chapitre nous allons, dans un premier temps décrire l'influence de la préparation des surfaces sur les propriétés des couches minces. Ensuite les différentes étapes de nettoyage des substrats de verre, par des produits purement chimiques, seront décrites. Puis on parlera de la méthode de dépôt utilisée pour la fabrication nos couches minces et les différents paramètres expérimentaux qui influent sur la qualité du dépôt. Notons que les propriétés physiques (structurales, électriques, magnétiques...) des couches minces dépendent fortement des conditions opératoires et de la méthode d'élaboration, donc il est en effet important de connaître ces paramètres expérimentaux. Nous décrivons par la suite le système d'évaporation sous vide, en se basant sur l'évaporation chauffée par effet Joule.

Nous avons utilisé dans ce travail des substrats de verre ordinaire et de Si (100). Les substrats de Si (100) sont tous de type n dopé en Sb et ont une résistivité comprise entre 0.008 et 0.02 Ω .cm. Nous terminons par une présentation des différents échantillons obtenus et une conclusion sur ce chapitre.

II. Effet de préparation des surfaces

La préparation de la surface d'un substrat est d'une importance fondamentale pour beaucoup de phénomènes. Il est essentiel d'acquérir une parfaite connaissance d'une surface pour comprendre certains phénomènes comme la croissance cristalline, les phénomènes de transport...etc. Cette préparation est importante dans la fabrication des couches minces c-a-d dans la qualité de dépôt, elle a une influence sur :

1. L'uniformité de la couche mince: c'est un paramètre très important dans la fabrication des couches minces, elle est conditionnée par les facteurs suivants:

- L'uniformité de l'épaisseur est assurée par l'uniformité du substrat, et la distance entre le substrat et le creuset.
- Le faible degré de contamination est acquit par un bon nettoyage du substrat et un pompage à basses pressions pour évacuer les gaz résiduel de l'enceinte.
- L'homogénéité des couches minces est assurée par un bon état de surface (par le procédé de nettoyage) et par la distance entre le creuset et le substrat.

2. L'adhérence: est une propriétés macroscopique qui dépend des liaisons à travers la zone d'interface, des contraintes locales et des causes qui peuvent provoquer un décollement de la couche. Elle est basée en général sur les facteurs suivants:

- Préparation des surfaces des substrats avant le dépôt.
- La vitesse de dépôt.

III. Nettoyage des substrats

Les processus de nettoyage jouent un rôle préalable sur la morphologie de surface et la précision des résultats obtenus. Ils sont conçus pour enlever les contaminations (les composants organiques, poussière et les débris de décapage du substrat de verre et de Si). Ces processus doivent être faits sans modifier la nature de la surface de sorte que le nettoyage d'une surface se fait par un solvant qui va dissoudre les contaminants sans attaquer la surface. Dans notre travail on a nettoyé seulement les lames de verre, parce que les substrats de Si qu'on a utilisés sont bien nettoyés pendant la fabrication et bien conservé durant la préparation des échantillons.

Le nettoyage des substrats de verre utilisés qui sont des lames de verre ordinaires d'épaisseur de 1mm et de surface 1cm×1cm se fait par une procédure purement chimique. On utilise les produits suivants :

le trichloréthylène (densité 1.64, pur), le méthanol, l'éthanol, l'acétone et l'eau distillé. On passe par les étapes suivantes :

- On a fait bouillir les substrats de verre dans un bûcher plein de trichloréthylène pendant quelques minutes.
- On frotte bien les lames l'une après l'autre avec du papier Joseph pour enlever les salissures.
- On rince à l'eau distillée et on refait ce travail pour assurer un bon nettoyage.
- On les a fait bouillir une autre fois mais maintenant dans un bûcher d'éthanol durant quelques minutes.
- Après on frotte bien chacune de ces lames avec le papier Joseph, pour améliorer encore l'état de surface.
- On les rince dans l'eau distillée.
- On refait le même travail mais ici on les fait bouillir dans un bûcher méthanol.
- On rince à l'eau distillée.
- finalement on les plonge dans un bûcher d'acétone.

Le nettoyage des substrats ne passe pas une seule fois par ces étapes, mais plusieurs fois jusqu'à l'obtention d'une bonne surface des lames c- a- d des surfaces propres. Après on les conserve dans des boîtes propres. Après le nettoyage, on aborde l'étape d'élaboration des échantillons. Dans ce travail on a utilisé le dépôt par évaporation sous vide.

IV. Méthode de dépôt des couches minces

Les principales techniques utilisées pour la fabrication des couches minces sous vide font appel aux techniques de dépôts en phase vapeur PVD (physical vapor deposition) et CVD (chemical vapor deposition). Dans notre travail on a utilisé le dépôt physique en phase vapeur (PVD), qu'on peut classer en deux catégories : la pulvérisation et l'évaporation. Cette dernière technique est caractérisée par différents modes de chauffage du matériau (effet Joule, faisceau d'électron, faisceau laser, arc électrique). L'évaporation sous vide à effet Joule est la méthode utilisée dans ce travail.

IV.1. principe de la méthode d'évaporation sous vide

C'est une méthode relativement simple [1], on peut classer cette méthode parmi les méthodes classiques pour la fabrication des couches minces [2].

Elle consiste simplement à évaporer ou à sublimer sous vide le matériau à déposer dans un creuset de tungstène couvert par une couche isolante de Al_2O_3 , à haute température. Cette température donne aux atomes du matériau à évaporer une énergie calorifique suffisante pour évaporer, c-à-d que leur énergie vibratoire dépasse l'énergie de liaison entre les atomes, ce qui provoque l'évaporation des atomes. Le matériau évaporé est déposé par la condensation sur le substrat à recouvrir, et donc une couche de ce matériau sera formée sur le substrat. Cette méthode exige de fournir une différence de potentiel de 220V et un courant primaire réglable. L'évaporation est réalisée sous vide, d'une part pour minimiser tous les risques de contamination et d'autre part pour faciliter l'évaporation du matériau-source. Cette méthode ne nécessite pas de chauffer le substrat. On peut résumer la méthode d'évaporation par les quatre étapes essentielles suivantes :

- 1) Le passage de la phase condensée (solide ou liquide) vers la phase gazeuse.
- 2) Le transfert des molécules à évaporer de la source vers le substrat.
- 3) La condensation de la vapeur sur les substrats.
- 4) La croissance de la couche sur les substrats.

Plusieurs paramètres expérimentaux influent sur la qualité du dépôt, ainsi que sur son uniformité et l'adhérence tels que :

- Le vide pratiqué : il doit être le plus poussé possible.
- La distance entre le creuset et le substrat : elle doit être la plus grande possible (permise par les dimensions de l'enceinte) pour assurer au mieux l'uniformité de l'épaisseur du dépôt sur le(s) substrat(s).
- La nature et la forme du creuset : chaque matériau à évaporer correspond à un creuset de nature spécifique. Sa forme influe aussi sur le flux de vapeur.
- La répartition symétrique des substrats sur le porte substrat. (Lorsqu'on fait le dépôt sur plusieurs substrats à la fois et on veut avoir la même épaisseur sur tous les échantillons).
- La température de fusion du matériau : elle ne doit pas être trop élevée ou proche de celle du creuset.

L'analyse de la littérature montre qu'il n'existe pas de procédés universels et que tous offrent leurs avantages et leurs inconvénients. On peut néanmoins tenter de citer les différents avantages et inconvénients de la méthode d'évaporation.

Tabl. I.1. Les avantages et les inconvénients de la méthode d'évaporation.

AVANTAGE	INCONVENIENT
<ul style="list-style-type: none"> • Vitesse de dépôt élevée. • Equipement simple • Investissement faible • faible température du substrat • Bien adaptée aux applications électronique et optique 	<ul style="list-style-type: none"> • Mal adapté aux dépôts réfractaire • Difficultés de dépôt des alliages • faible pouvoir de recouvrement • Adhérence faible • dépôt poreux et non uniforme

IV.2. Description de l'évaporateur

L'évaporation sous vide comprend les sous ensembles suivants (voir la figure I.1)

- ◆ Chambre à vide (Enceinte).
- ◆ Groupe de pompage
 - ▶ pompe à palette.
 - ▶ pompe à diffusion de huile.
- ◆ Système de mesure
 - ▶ appareil pour mesurer le vide.
 - ▶ appareil pour mesurer le courant.
- ◆ Système de commande.
- ◆ Système d'excitation.

IV.2.1. Chambre à vide (Enceinte)

L'enceinte d'évaporateur est une chambre à vide, de forme cylindrique en pyrex (verre résistant à haute température), de 29cm de diamètre et 35cm de hauteur. A l'intérieur de cette chambre on peut réaliser un vide de l'ordre de 10^{-7} mbar, assuré par un système de pompage simple. L'enceinte est isolée au niveau du toit et du support par deux joints de très bonne surface externe ce qui permet d'assurer la conservation du vide à l'intérieur de la chambre. Sur ces joints on étale une couche de graisse spéciale (graisse à vide), pour éviter l'apparition des micros fuites, ce qui permet de réaliser un excellent vide

dans l'enceinte.

Les différentes composantes de l'enceinte :

- Un porte substrat en cuivre (Cu) monté sur un axe en cuivre fixé sur le toit.
- Un cache mobile : une plaque métallique, placée entre le porte substrat et le creuset et fixée sur une tige mobile à l'extérieur. Il permet de recouvrir le porte substrat avant et après l'évaporation, pour améliorer la qualité de la couche.
- Le porte source est constitué de deux bras métalliques, qui permettent de fixer le creuset et est terminé par deux électrodes en cuivre utilisées pour chauffer le creuset.
- le creuset : dans notre expérience on a utilisé un creuset de tungstène recouvert par une couche de céramique Al_2O_3 , ce qui permet d'éviter la contamination des couches de Nickel par les atomes tungstène (W) pendant l'évaporation.
- Un cache fixé au dessus de l'ouverture qui relie l'enceinte et le système de pompage. Il protège cette ouverture de tout corps étranger.

IV.2.2. Système de pompage

Le groupe de pompage est raccordé à la partie inférieure de l'enceinte. Cette chaîne de vide peut descendre jusqu'à 7×10^{-7} mbar. Le groupe comprend deux pompes placées en série (pompe à palette et pompe à diffusion de huile).

- La pompe à palette : est une pompe aspirante à deux étages. Elle permet d'assurer un vide de 10^{-3} mbar dans l'enceinte et dans la pompe à diffusion. Elle a un système de fonctionnement mécanique. Elle associe deux pompes en série dans le même corps.

- La pompe à diffusion (SONTOVAC) : est une pompe qui permet d'assurer un vide secondaire inférieur à 7×10^{-7} mbar. Le principe de cette pompe est de réaliser un jet de vapeur d'huile, cette vapeur résulte d'un bain de huile chauffé à $300^\circ C$ par une résistance électrique. Cette vapeur monte vers le haut de la pompe et entre en contact avec les parois. Puis elle se condense sur ces parois pour retourner au bain après un refroidissement. Le refroidissement des parois de la pompe à diffusion est assuré par un serpentin ou par une chemise d'eau froide.

IV.2.3. Système de mesure

- Le système de mesure de la pression est constitué de deux jauges (PIRANI et PINNING).

- La jauge de vide primaire (jauge de PIRANI): cette jauge est utilisée pour mesurer le vide primaire entre 1 et 10^{-3} mbar.

- La jauge de vide secondaire (jauge de PINNING): cette jauge est utilisée pour mesurer le vide secondaire entre 10^{-3} et 10^{-7} mbar.

- système de mesure du courant

Un Ampèremètre est utilisé pour mesurer le courant primaire en A. Il est branché en série dans un circuit fermé du système d'alimentation de l'évaporateur.

IV.2.4 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.

IV.2.5. Système d'excitation

Le système d'excitation est constitué d'un générateur de tension alternative de 380V, à courant réglable. Ce qui nous permet d'alimenter le primaire du transformateur et nous donne un courant secondaire conduit par deux fils à travers le toit de l'enceinte.

IV.3. Réalisation de dépôt

Les couches minces de Ni/Si (100) et de Ni/verre ont été préparées par évaporation sous vide, avec chauffage par effet Joule. Le dépôt a été fait au niveau du laboratoire des couches minces du département de physique de l'Université Ferhat Abbas, Sétif.

Dans cette expérience on a réalisé neuf (9) dépôts. Dans chaque dépôt, on élabore quatre échantillons: deux échantillons sur des substrats de verre et deux sur des substrats de Si (100) mis côte à côte. Avant le dépôt les substrats de verre étaient conservés dans un support utilisé spécialement pour ces substrats et recouvert par un papier d'aluminium. Les substrats de Si sont conservés dans une boîte plastique bien propre. avant l'élaboration

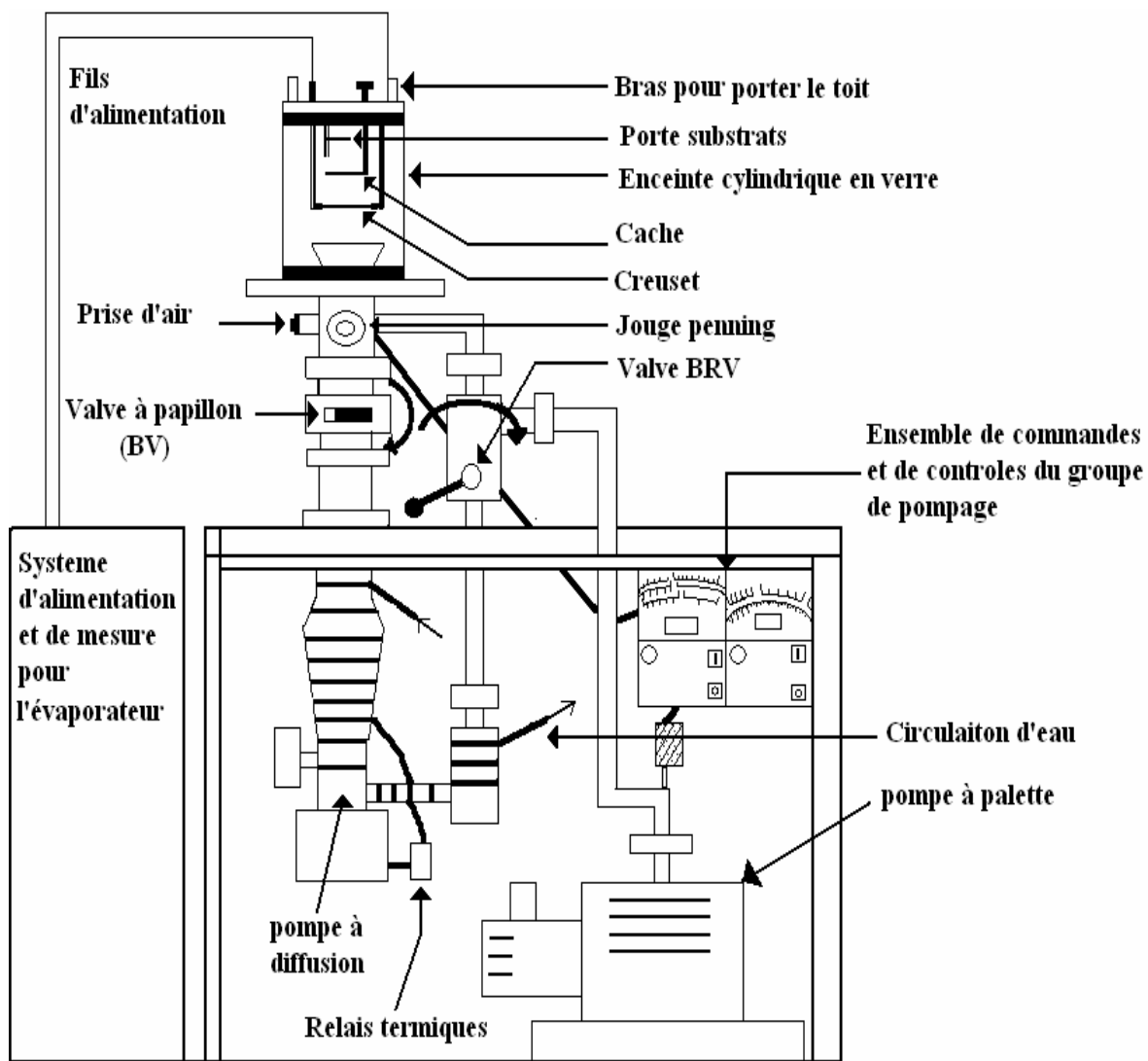


Fig. I.1. Schéma descriptif de l'évaporateur.

on évite le contact entre les substrats et les mains ou tout corps étranger afin de minimiser les contaminations.

La poudre de nickel, de pureté 99.995 %, est déposée sur un creuset de tungstène. Ce dernier est recouvert par une couche Al_2O_3 . En face du creuset fixe, le porte substrat est placé à une distance de 10cm.

Pour séparer le porte substrat et le creuset, un cache est placé entre les deux. L'enceinte est fermée par le toit. On ferme le circuit électrique puis on lance le vide. La réalisation du dépôt suit les étapes suivantes.

IV.3.1. Première étape:

Pour avoir un vide dans l'enceinte, on met la pompe primaire en service, elle permet de réaliser un vide allant jusqu'à 10^{-3} mbar. Pendant ce temps la vanne papillon doit être fermée (horizontale).

IV.3.2. Deuxième étape:

On laisse la pompe primaire en service et on met la vanne BRV dans la position qui permet de lancer le vide dans le corps de la pompe à diffusion c'est -a- dire on pompe dans le corps de la pompe secondaire, la vanne papillon étant toujours fermée (horizontale).

IV.3.3. Troisième étape:

On fait une vérification de vide, s'il est environ de 10^{-3} mbar avec la position initiale de la vanne BRV. Puis on remet cette vanne à la position qui permet de pomper dans le corps de la pompe secondaire. Après ça on change la position de la vanne papillon (Verticale). On laisse fonctionner le système de vide jusqu'à un vide inférieur à 7×10^{-7} mbar.

Après ces étapes et après la stabilisation du vide dans l'enceinte, on chauffe le creuset quelques instants par un courant primaire d'intensité $I=4\text{A}$. On fait varier le courant jusqu'à ce que le creuset et la quantité de Ni commence à rougir; donc il y a un début d'évaporation de Ni. Pendant ce temps on observe que le vide se détériore pour quelques instants, puis revient à sa valeur initiale, cette détérioration est liée au dégazage de la poudre de Ni. Ensuite on enlève le cache pour avoir la condensation de Ni sur les substrats. On laisse le matériau s'évaporer pendant un temps bien précis, puis on remet le cache à sa position initiale pour arrêter l'opération d'évaporation du matériau. Pour récupérer les échantillons on ferme la vanne papillon, on arrête le chauffage de la pompe secondaire, et on laisse refroidir celle-ci sans arrêter le pompage primaire.

On refait ces étapes pour chaque évaporation, mais avec des temps différents pour chaque dépôt d'échantillons. Dans ces évaporations on joue sur le facteur de temps pour avoir différentes épaisseurs. Toutes les expériences se sont passées dans des conditions normales sauf une où il y a eu une coupure de courant.

On peut mesurer le courant primaire mais on n'a pas un moyen pour mesurer le courant secondaire qui contrôle le phénomène d'évaporation.

Le tableau I.2. montre les différentes caractéristiques de nos séries d'échantillons après l'évaporation. Les échantillons de la série N°01 sont des échantillons repère (essai), dont les propriétés physiques ne sont pas montrées dans cette étude.

Numéros de série de dépôt	Pression avant le dépôt (mbar)	Pression pendant le dépôt (mbar)	Temps de dépôt (seconde)
# 2	$\leq 3. 10^{-7}$	$\leq 2. 10^{-6}$	420 (7min)
# 3	$\leq 5. 10^{-7}$	$\leq 2. 10^{-6}$	600 (10 min)
# 4	$\leq 3. 10^{-7}$	$\leq 2. 10^{-6}$	360 (6min)
# 5	$\leq 3. 10^{-7}$	$\leq 2. 10^{-6}$	480 (8min)
# 6	$\leq 4. 10^{-7}$	$\leq 2. 10^{-6}$	420 (7min)
# 7	$\leq 3. 10^{-7}$	$\leq 2. 10^{-6}$	240 (4min)
# 8	$\leq 5. 10^{-7}$	$\leq 2. 10^{-6}$	900 (15min)
# 9	$\leq 5. 10^{-7}$	$\leq 2. 10^{-6}$	150 (2.5 min)
# 10	$\leq 5. 10^{-7}$	$\leq 2. 10^{-6}$	90 (1.5 min)

Notons que le courant appliqué est autour de 5.5A avec des petites fluctuations, ce qui engendre des vitesses de dépôt différentes.

V. Conclusion

Dans ce premier chapitre nous avons parlé des différentes étapes de fabrication des couches minces: les étapes nécessaires de nettoyage des substrats et la description du système d'évaporation chauffé par effet Joule. Les différentes étapes de déposition de Ni poudre sur des substrats de verre et de Si (100) sont décrites.

Nous avons élaboré 18 échantillons de différentes épaisseurs de Ni (différents temps de dépôt): 9 échantillons sur verre et 9 échantillons sur Si (100). Dans le chapitre suivant on déterminera les épaisseurs de Ni et les vitesses de dépôt.

Une fois les dépôts réalisés, il est indispensable de les caractériser à fin de connaître certaines propriétés: la structure cristalline et la résistivité électrique. Ce qu'on va exposer dans les chapitres suivants (Etudes des propriétés structurales et électriques).

Etude des propriétés

Structurales

CHAPITRE III

ETUDE DES PROPRIETES STRUCTURALES

I. Introduction

Dans ce chapitre, on présente les caractéristiques physico-chimiques et structurales des dépôts de Ni élaborés par la méthode d'évaporation sous vide chauffé par effet Joule, ainsi que les différents dispositifs expérimentaux des méthodes utilisées. Il est nécessaire de connaître la qualité structurale des couches minces élaborées afin de comprendre ses propriétés électriques et magnétiques.

Dans une première partie, nous présentons une caractérisation physico-chimique des couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre et de Si (100) par la technique de rétrodiffusion de Rutherford (RBS). Cette technique nous permet de déterminer les épaisseurs des couches minces avec une précision suffisante. On a utilisé un programme de simulation (SIMNRA, 5.02, 1997-2004) pour simuler les spectres expérimentaux. Nous montrons aussi les conditions opératoires dans laquelle cette caractérisation est réalisée ainsi que les différents résultats obtenus. On déterminera aussi la vitesse de dépôt de chaque série d'échantillons.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, on aborde la structure cristalline de nos couches minces par la méthode de la diffraction des rayons X (DRX). On utilise le montage de Bragg- Brentano (Mode $\theta - 2\theta$), cette technique permet de déterminer les différentes informations sur la structure cristalline de nos couches (la texture, le paramètre de maille et la taille moyenne des grains). Nous présentons aussi les différents résultats obtenus, avec une étude détaillée du paramètre de maille et de la taille moyenne des grains en fonction de l'épaisseur et de la vitesse moyenne de dépôt. Nous terminons chaque partie par une petite conclusion et une conclusion finale sur ce chapitre.

II. Analyse physico-chimique (La rétrodiffusion de Rutherford)

II.1. Introduction

L'analyse par faisceau d'ions est un terme générique qui reprend toutes les méthodes d'analyse qui sont basées sur les interactions aux niveaux nucléaires et atomiques d'un faisceau de particules chargées avec un échantillon cible. Une émission secondaire de rayonnements caractéristiques des éléments constitutifs de l'échantillon peut se produire. Une analyse spectroscopique de ce rayonnement secondaire peut permettre d'obtenir diverses informations sur le matériau cible telles que:

- La composition élémentaire et la détermination des concentrations en surface ou en profondeur.
- La détermination de la nature, la position, l'épaisseur ou le gradient de concentration de plusieurs couches d'éléments ou de composés.

Une de ces méthodes est la RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopy). Elle permet dans notre étude de mesurer les épaisseurs et de vérifier l'état de l'interface de nos couches minces de Ni. Soulignons que l'épaisseur d'une couche mince est un facteur important dans l'étude des propriétés physiques des couches minces. Les expériences de RBS ont été faites au niveau du CRNA à Alger (Centre de Recherche Nucléaire d'Alger).

II.2. Principe de la RBS

RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopy) est l'une des techniques les plus utilisées pour les analyses quantitatives de la composition des régions proches de la surface de la couche mince ou des solides [3]. La technique RBS est une méthode d'analyse qui consiste à bombarder l'échantillon par un faisceau de particules chargées (He^{++} ou H^+) délivrées par un accélérateur d'ions. Ces particules interagissent avec la cible de telle sorte qu'elles sont diffusées élastiquement par les atomes du matériau analysé; cette méthode permet de séparer les éléments en fonction de leurs masses atomiques et déterminer leurs distributions en profondeur (voir la figure II.1). Notons ci-dessous les différentes grandeurs fondamentales de la RBS ainsi que les équations que les régissent.

II.2.1. Facteurs cinématiques

Rappelons ici que l'un des avantages de la RBS est la séparation des éléments de matériau à analyser en fonction de leur masse atomique. La méthode permet d'analyser les énergies des particules rétrodiffusées selon l'énergie de rétrodiffusion. En effet la

diffusion élastique des particules cause des changements des énergies. Ce changement d'énergie est lié au transfert d'une quantité d'énergie des particules chargées aux noyaux des atomes de la surface de la cible [4].

Soit une particule de masse M_1 , de vitesse v_0 et d'énergie E_0 , et une autre particule de masse M_2 considérée au repos. L'interaction peut être décrite comme une collision élastique entre les deux corps. L'énergie de la particule incidente doit être supérieure à l'énergie de liaison de l'atome cible. A l'aide des principes de conservation de l'impulsion et de l'énergie cinétique, on peut écrire la relation suivante [5] :

$$\frac{1}{2}M_1v_0^2 = \frac{1}{2}M_1v_1^2 + \frac{1}{2}M_2v_2^2 \quad (\text{II. 1}).$$

La figure (II.2.a et b) montre un schéma représentatif d'un choc élastique entre les deux particules de masse M_1 et d'énergie E_0 et l'atome de la cible de masse M_2 avant et après le choc; v_1 est la vitesse de particule de masse M_1 après la collision, θ et φ les angles formés par les directions des particules M_1 et M_2 respectivement après la collision avec la direction de la particule M_1 avant la collision.

Si $M_1 \leq M_2$ on peut définir le *facteur cinématique* K qui est égal au rapport de l'énergie des particules chargées avant et après la collision. Le facteur K est relié aux masses du projectile et des atomes de matériau à analyser, et à l'angle de diffusion θ par la relation suivante [6] :

$$K = \frac{E_1}{E_0} = \left[\frac{M_1 \cos \theta + \sqrt{M_2^2 - M_1^2 \sin^2 \theta}}{M_1 + M_2} \right]^2 \quad (\text{II.2}).$$

et

$$E_1 = K E_0 \quad (\text{II.3}).$$

Ces équations expliquent comment, par la mesure de l'angle θ et l'énergie E_1 des particules rétrodiffusées, et avec la connaissance des caractéristiques M_1 et l'énergie E_0 des particules

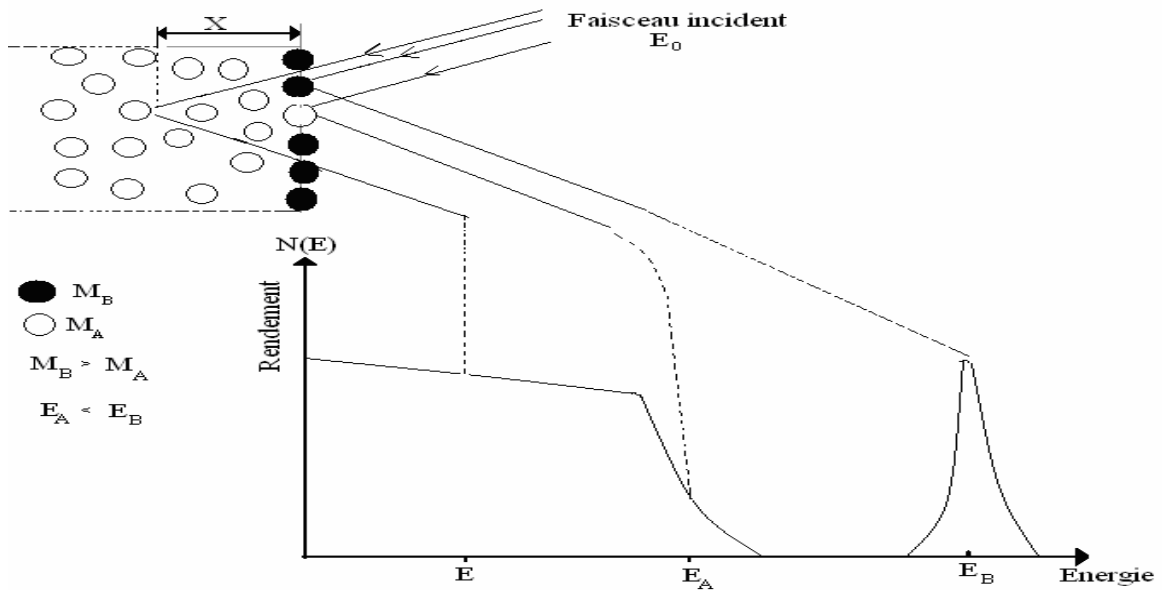


Fig. II.1. Principes de bases de l'analyse RBS. (M_A et M_B les masses des atomes de la cible, E_A et E_B les énergies rétrodiffusées par les atomes A et B en surface, E l'énergie rétrodiffusée par un atome A à une profondeur X , $N(E)$ le nombre de coups).

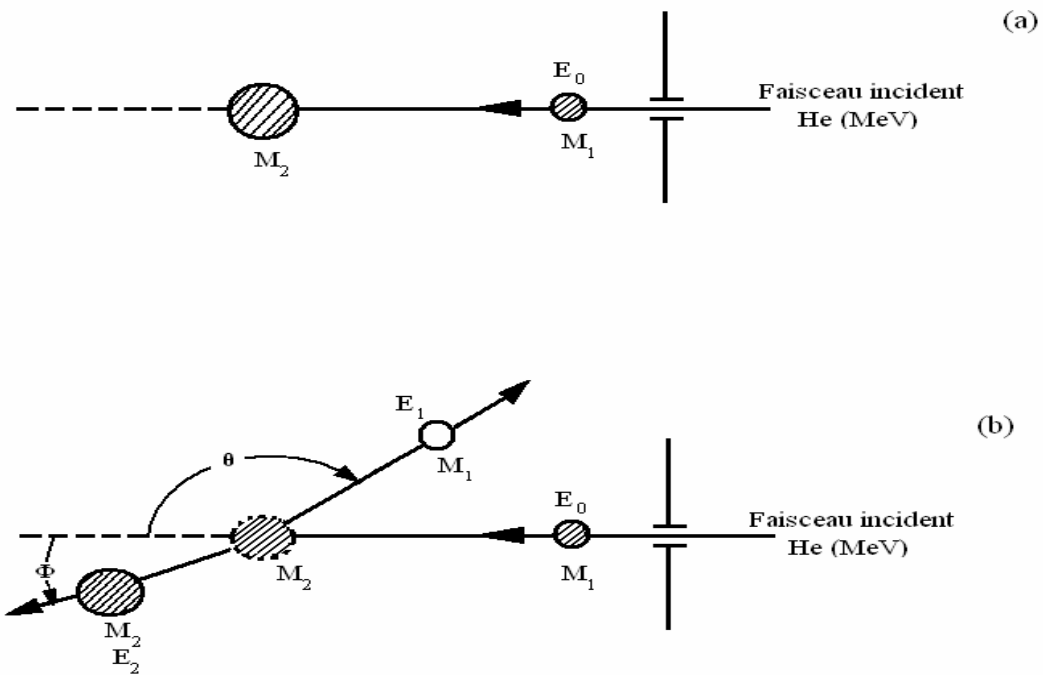


Fig. II.2. Schéma représentatif d'un choc élastique entre un projectile de masse M_1 et un atome de la cible de masse M_2 , (a) Avant le choc, (b) Après le choc.

chargées du faisceau incident, on peut identifier la masse M_2 des atomes composant la cible.

L'énergie E_1 dépend également de la profondeur à laquelle s'est produite la rétrodiffusion, car l'énergie incidente E_0 des ions diminue à mesure qu'ils pénètrent dans le matériau. Si la surface du matériau à analyser est composée de deux éléments A et B de masse M_1 et M_2 respectivement, l'analyse de l'énergie des particules rétrodiffusées montre sur les spectres RBS deux pics correspondant aux énergies E_{rA} et E_{rB} (Figure II.1). Notons que plus la différence de masse augmente entre les deux atomes de cible A et B, plus les deux pics de spectre RBS sont bien séparés.

II.2.2. Pouvoir d'arrêt

Quand un faisceau de particules chargées de quelques MeV pénètre dans la cible, il perd son énergie graduellement avec la profondeur X . Les projectiles ont une énergie (inférieure à E_0) qui est fonction du pouvoir d'arrêt du milieu [4]. Le pouvoir d'arrêt ou la section efficace d'arrêt exprime une perte d'énergie par atome par unité de surface, il est donné par relation suivante [6]:

$$\varepsilon(E) = \frac{1}{N} \frac{dE}{dx} \quad (\text{II.4}).$$

N : la densité atomique de la cible constituée d'atomes de masses M ($N_{Ni} = 9.13.10^{22} \text{at.cm}^{-3}$).

II.2.3. Pertes d'énergies

Les ions légers tels que l'hélium perdent leurs énergies par la collision non élastique avec les électrons liés des atomes de cible. On considère que les particules perdent leurs énergie durant le chemin d'aller et de retour. La perte d'énergie est donnée par la relation suivante [6] :

$$\Delta E = KE_0 - E = X \left[K\varepsilon(E_0) + \frac{1}{\cos\theta} \varepsilon(E_1) \right] \quad (\text{II.5}).$$

X : la profondeur où le projectile est diffusé.

$\varepsilon(E_0)$: la section efficace d'arrêt pour le chemin d'aller avec une énergie E_0 des projectiles.

$\varepsilon(E_1)$: la section efficace d'arrêt pour le chemin de retour avec une énergie E_1 des projectiles.

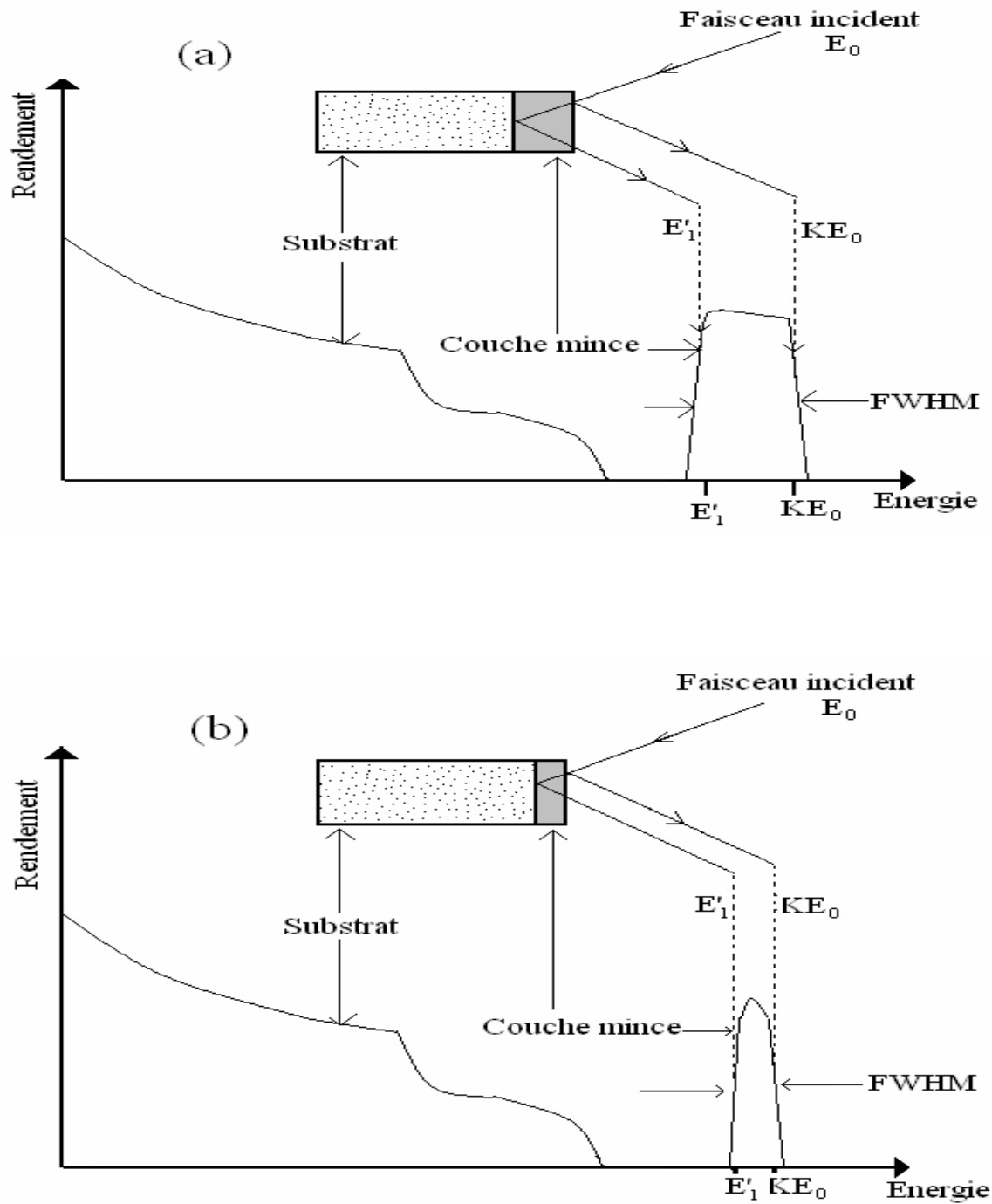


Fig. II. 3. Schéma représentatif d'un spectre RBS avec la variation de FWHM en fonction l'épaisseur de la couche.

La relation (II. 5) démontre que la perte d'énergie augmente si la profondeur de pénétration des particules chargées augmente. Notons que la profondeur maximale déterminée avec la technique RBS est définie comme la profondeur pour laquelle les particules rétro- diffusées possèdent une énergie nulle.

II.2.4. La section efficace différentielle

La théorie de la technique RBS est basée sur plusieurs paramètres : les angles θ et φ , les masses M_1 et M_2 ainsi que les nombres atomiques Z_1 et Z_2 . A partir de ces paramètres on peut déterminer la section efficace différentielle. La section efficace différentielle représente la probabilité de diffusion sous les angles θ et φ dans l'angle solide $d\Omega$ d'une particule de flux unité par un seul centre de diffusion [5]. Elle est donnée par la relation suivante [7] :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E} \right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left\{ \left[1 - \left(\frac{M_1}{M_2} \sin \theta \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}} + \cos \theta \right\}^2}{\left[1 - \left(\frac{M_1}{M_2} \sin \theta \right)^2 \right]^{\frac{1}{2}}} \quad (\text{II.6}).$$

Z_1 et Z_2 sont les charges du projectile et de l'atome de la cible respectivement.

E est l'énergie du projectile lors de l'événement de la diffusion.

Cette relation tient en compte des interactions purement coulombienne et montre clairement les facteurs importants de σ :

La dépendance en Z_1^2 : σ sera d'autant plus grand que le projectile est de Z élevé.

La dépendance en Z_2^2 : implique que le rendement est d'autant plus important que la cible est lourde. Donc les atomes de Z important ont logiquement une meilleure probabilité de diffuser les particules incidentes.

La dépendance en E_0^{-2} : implique que le rendement augmente quand on utilise des faisceaux de plus faible énergie.

II.2.5. Mesure des épaisseurs des couches minces

La retrodiffusion de Rutherford (RBS) est basée sur les collisions des projectiles (α) avec les noyaux des atomes de la cible. Elle permet de mesurer les épaisseurs des couches minces par la mesure de la perte d'énergie des ions projectiles dans ces couches.

Rappelons que le but d'utiliser cette technique est de mesurer les épaisseurs de nos couches. À partir des spectres RBS, on fait déduire l'épaisseur de la couche, en évaluant la largeur à mi-hauteur FWHM du pic de matériau dont on veut mesurer l'épaisseur. FWHM est donnée par [7]:

$$\text{FWHM} = \Delta E = KE_0 - E_1' = \varepsilon Nt \quad (\text{II.7}).$$

où :

FWHM : *Full Width at Half Maximum* est la largeur à mi-hauteur du pic; elle est donnée en fonction de l'énergie des projectiles rétrodiffusées (voir la figure II. 3).

ε : pouvoir d'arrêt du matériau considéré.

N: la concentration atomique du matériau considéré.

KE_0 : l'énergie rétrodiffusée à la surface du film.

E_1' : l'énergie des projectiles chargés rétrodiffusés en profondeur d'épaisseur t avec E_1' inférieure à $E_1 = KE_0$.

La largeur à mi-hauteur varie avec l'épaisseur de la couche. La figure (II.3.a et b) montre une relation de proportionnalité entre l'épaisseur de la couche et la largeur à mi-hauteur. Notons que pour une énergie de 2 MeV des ions de He (hélium), la résolution en profondeur de la RBS est de 10 à 30 nm pour un détecteur de Si de surface avec une énergie 15 à 18 KeV [7]. En general la résolution en profondeur de RBS est de l'ordre de 20 à 30 nm, mais peut être aussi inférieure de 2 ou 3 nm près de la surface d'un échantillon. Les profondeurs typiques d'analyses sont moins de 2000 nm, mais l'utilisation des protons, plutôt que l'hélium, comme particules incidentes peut augmenter l'ordre de grandeur de la profondeur [8].

II.3. Dispositif Expérimental

Le dispositif de la technique RBS est constitué d'une source d'ions, d'un accélérateur de particules, de deux chambres d'analyses et du système d'acquisition et de traitement des données, (voir figure II.4).

Une source d'ions donne un faisceau de particules chargées ($^4\text{He}^{++}$), qui passe par un accélérateur de particules de type Van de Graaff. Une chambre d'analyse de forme cylindrique, dans laquelle on peut réaliser un vide secondaire de 10^{-6} mbar. Elle est constituée d'un porte échantillons fixé sur un goniomètre qui est placé perpendiculairement à la face inférieure de la chambre d'analyse. Ce goniomètre peut effectuer des rotations et des translations des échantillons. Le porte échantillons comporte sept (7) positions pour

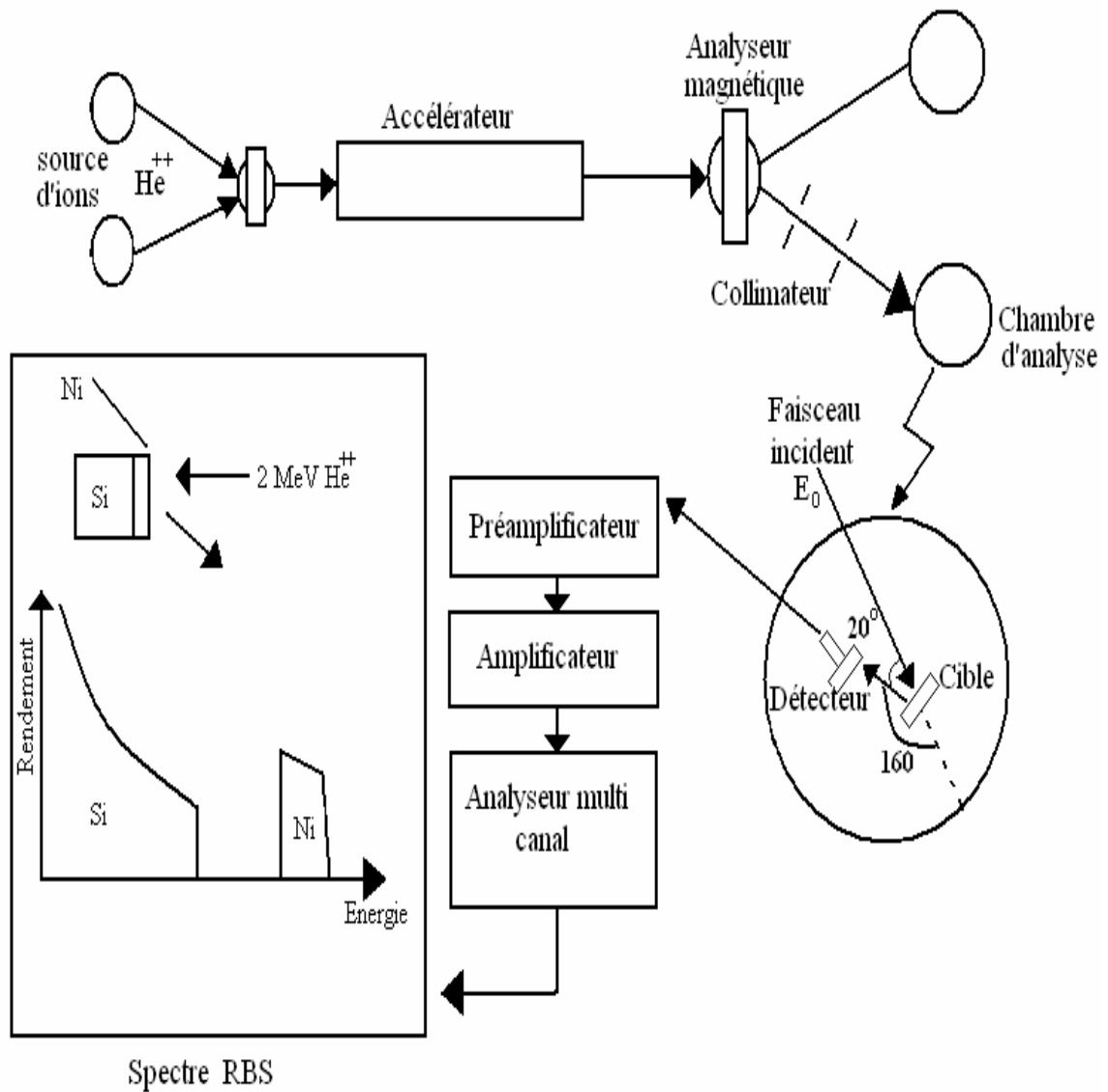


Fig. II. 4. Dispositif expérimental de l'appareillage de la technique RBS.

fixer les échantillons, et avec une rotation de 180° on peut analyser sept échantillons différents dans les mêmes conditions opératoires. Le système d'acquisition et de traitement des données est constitué d'un détecteur en Silicium qui permet de détecter les particules rétro-diffusées avec une résolution de 15 KeV, d'un préamplificateur, d'un amplificateur et d'un analyseur multi-canal.

II.4. Réalisation et Simulation

Un accélérateur de type Van de Graaff émet un faisceau d'ions hélium avec une énergie égale à 2 MeV et un diamètre de 1mm. La majorité des particules $^4\text{He}^{++}$ incidentes terminent leurs trajectoires en volumes. Cependant une faible proportion subit des interactions avec les noyaux de la cible, donnant lieu à des rétrodiffusions avec un angle θ égale 160° par rapport à la direction du faisceau incident. Le détecteur est à une distance de 12cm de cible, cet équipement est alimenté par un courant de 50 nA.

L'utilisation d'un logiciel de traitement est indispensable pour l'exploitation des données. Nous avons utilisé tout au long de ce travail le logiciel SIMNRA (5.02), qui est fonction de toutes les données expérimentales, des banques de données du facteur d'arrêt et des sections efficaces de rétrodiffusion et d'une cible virtuelle donnée par l'utilisateur. C'est à l'utilisateur de modifier la cible virtuelle jusqu'à ce que le spectre simulé corresponde le mieux possible avec le spectre expérimental.

En générale, la précision de la technique RBS dépend du temps mis pour recevoir et traiter le faisceau rétrodiffusion [9].

II.5. Résultats et Discussion

Cette technique de caractérisation a été utilisée dans notre travail pour déterminer les épaisseurs des couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre et de Si (100). L'identification des épaisseurs des couches minces a été menée à l'aide de programme SIMNRA (5.02).

II.5.1. Système de Ni/Verre

La figure (II.5.a et b) montre certains spectres de RBS et leurs simulations exécutées par le logiciel SIMNRA. Les signaux de verre et de Ni sont bien séparés par une plage de très faible rendement qui détermine l'état d'interface dans laquelle on observe des bosses, ce qui indique mauvais état de surface du substrat de verre. Notons qu'on a utilisé du verre ordinaire.

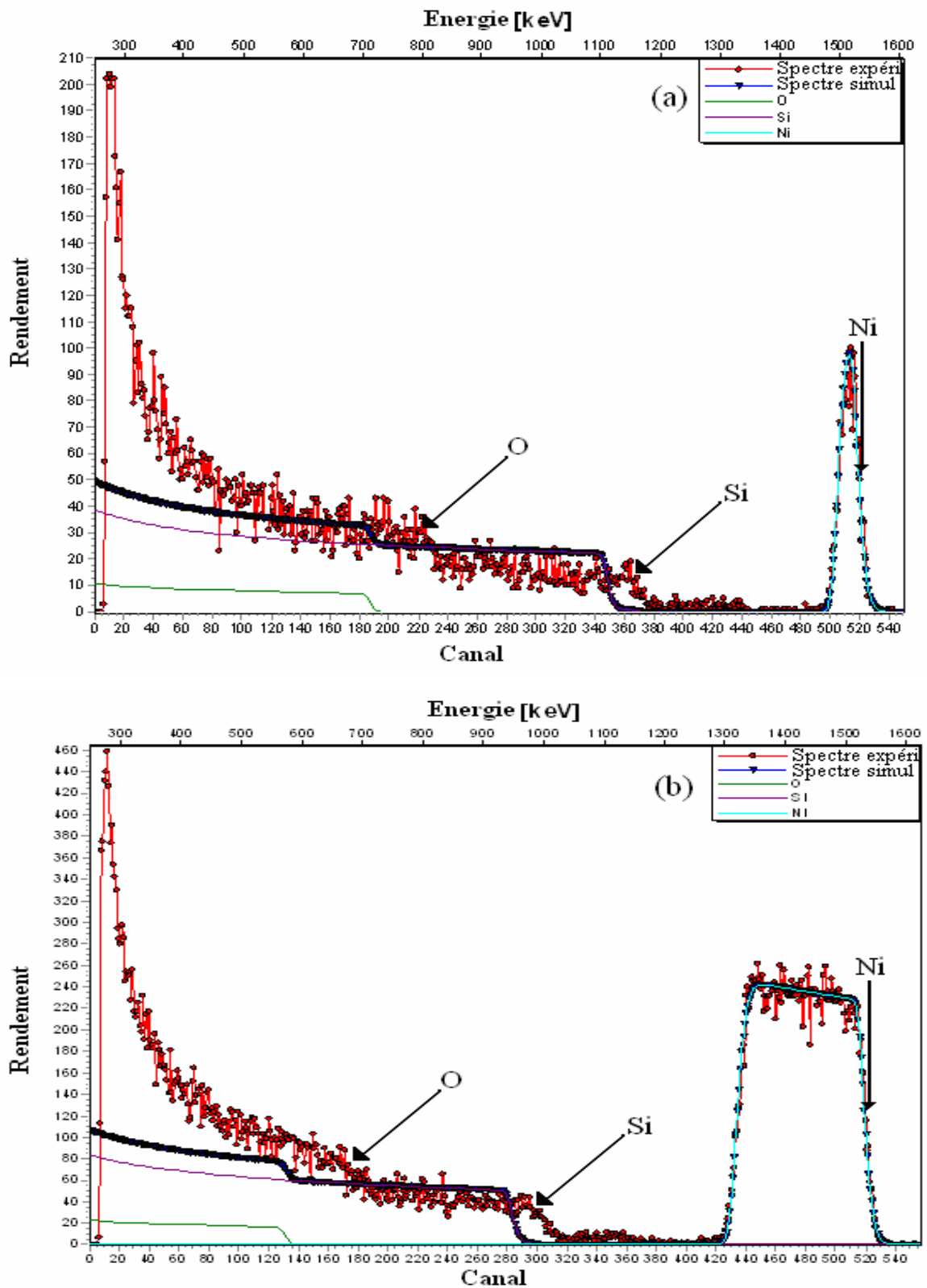


Fig. II. 5. Exemples des spectres de RBS présentent deux gammes d'épaisseurs dans le système Ni/Verre:

(a) faibles épaisseurs.

(b) grandes épaisseurs.

Dans la figure (II.5.a) le pic de surface est de Ni obtenu aux plus hautes énergies soit 1.53 MeV et dû à la diffusion des ions hélium sur les atomes de Ni des premiers plans. On observe aussi un palier représentant le substrat de verre, dans lequel on peut identifier les deux bords de Si à une énergie de 1.15 MeV et de O à une énergie de 0.82 MeV. Pour la figure (II.5.b) le pic de surface est situé à une énergie de 1.53 MeV, le Si à 1 MeV et le O à 0.7 MeV. Cette différence d'énergie augmente avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche de Ni ce qui confirme l'effet de perte d'énergie avec la profondeur de la couche.

II.5.2. Système de Ni/Si (100)

Pour le système Ni/Si on observe dans la figure (II.6.a) que le pic de Ni est toujours à la surface avec une énergie de 1.53 MeV, alors que le palier de Si se situe à une énergie de 1.16 MeV. Dans la figure (II.6.b) le pic de la surface est situé à une énergie de 1.53 MeV et le palier de Si à 1 MeV. L'absence de bosses à l'interface confirme le bon état de surface du substrat de Si. Aussi les deux pics correspondant aux matériaux (Ni et Si) sont bien séparés.

On observe aussi qu'il n'y a aucune interdiffusion entre les matériaux (entre le film de Ni et de substrat de Si). Notons aussi que l'écart d'énergie lié aux pertes d'énergie des particules chargées augmente avec l'épaisseur.

Notons que la technique RBS est la méthode la plus utilisée pour identifier les épaisseurs des couches minces, on cite par exemple les couches minces de Ni/Si [10] et de Ni/MgO [11].

Les différentes épaisseurs des couches minces de Ni, déterminées à partir de simulation des spectres expérimentales par le programme de simulation SIMNRA (5.02), sont citées dans la table. II.1.

II.5.3. La vitesse de dépôt

L'effet d'instabilité du l'intensité de courant a une grande influence sur la variation de la vitesse de dépôt et c'est ce qu'on a remarqué dans cette étude. Rappelons qu'on a mesuré le courant primaire mais on n'a pas de moyen pour mesurer le courant secondaire qui fait chauffer le creuset. Nous avons varié le temps de dépôt pour avoir des films de Ni avec des épaisseurs différentes. Après avoir déterminé les épaisseurs par RBS, nous avons calculé la vitesse de dépôt. On voit que les valeurs de l'épaisseur ne reflètent pas une dépendance linéaire avec le temps de dépôt.

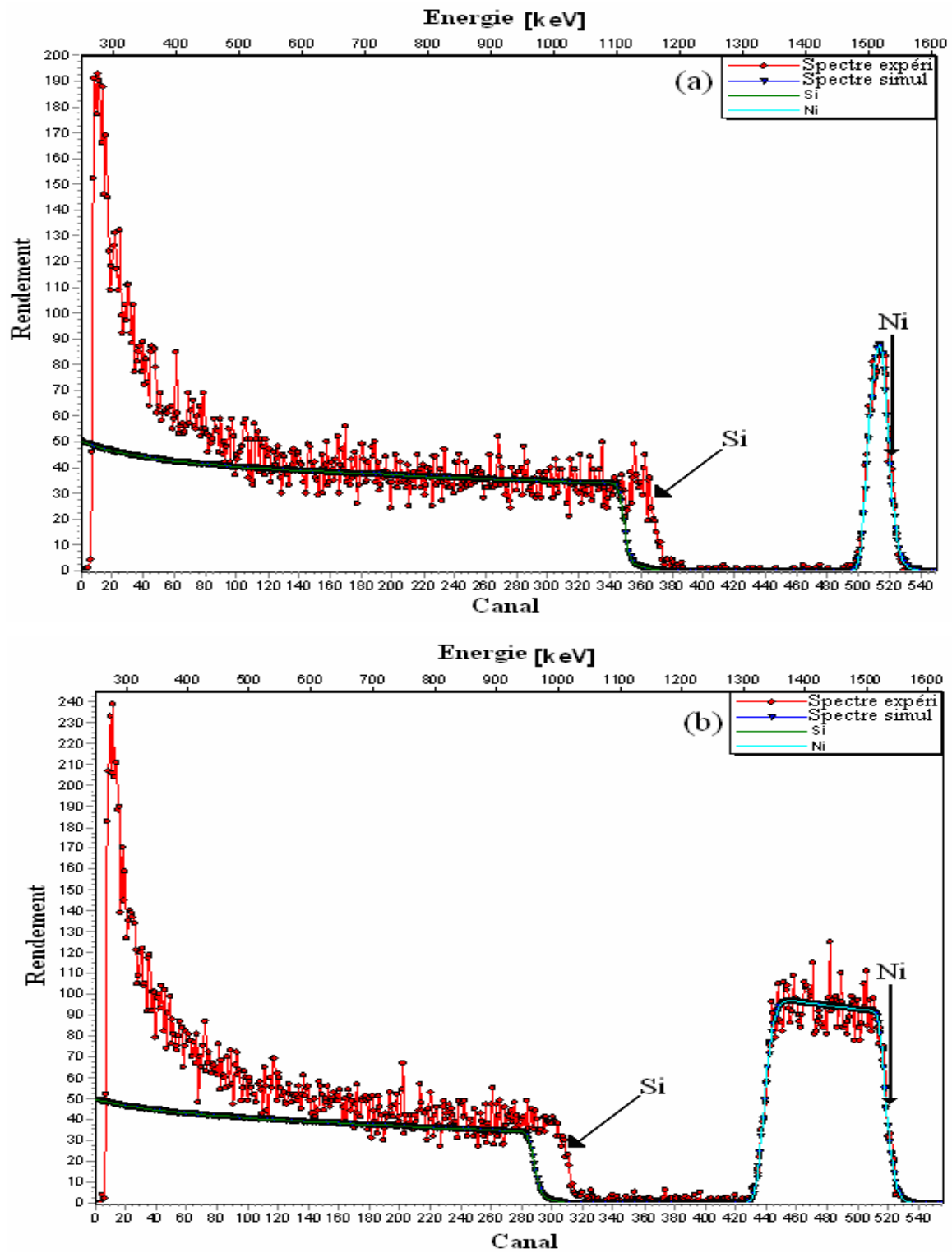


Fig. II.6. Exemples des spectres de RBS présentés deux gammes d'épaisseurs dans le système Ni/Si (100):

- (a) faibles épaisseurs.
- (b) grandes épaisseurs.

Nous avons remarqué que nos échantillons peuvent se diviser en deux groupes avec des vitesses de dépôt différentes. Dans Fig.II.7, on montre la variation de l'épaisseur avec le temps de dépôt ainsi que le meilleur fit. Ainsi 4 échantillons avec épaisseurs 45, 76, 112 et 200nm, ont une vitesse moyenne de dépôt égale à $v_1=13\text{nm/min}$ et 4 échantillons d'épaisseurs 28, 66, 114 et 170nm avec $v_2=22\text{ nm/min}$.

Notons finalement que l'échantillon d'épaisseur $t=86\text{ nm}$ a été évaporé avec une vitesse de dépôt $v=8\text{nm/min}$, on ne peut le mettre ni dans la série de faibles vitesses de dépôt ($v_1=13\text{nm/min}$) ni dans la série de grandes vitesses de dépôt ($v_2=22\text{ nm/min}$).

Table. II.1. les épaisseurs des couches minces de Ni déposées sur verre et sur Si (100).

Numéros de série	Temps de dépôt (s)	Epaisseur (nm)	Erreur (nm)
# 2	420 (7 min)	170	± 8
# 3	600 (10 min)	86	± 3
# 4	360 (6 min)	114	± 8
# 5	480 (8 min)	76	± 3
# 6	420 (7min)	112	± 5
# 7	240 (4 min)	45	± 2
# 8	900 (15 min)	200	± 3
# 9	150 (2.5 min)	66	± 3
# 10	90 (1.5 min)	28	± 2

II.6. Conclusion

En conclusion, nous avons utilisé la méthode RBS pour déterminer les épaisseurs des couches minces de Ni évaporées sur verre et sur Si (100). Les épaisseurs de ces échantillons vont de 28 à 200 nm. Le calcul de la vitesse de dépôt (le rapport de l'épaisseur sur le temps de dépôt) pour chaque échantillon nous a conduit à diviser ces deux séries en quatre groupes: Ni/verre et Ni/Si (100) avec épaisseurs 45, 76, 112 et 200nm, déposées avec $v_1=13\text{ nm/min}$ et Ni/verre et Ni/Si avec épaisseurs 28, 66, 114 et 170nm avec une vitesse $v_2=22\text{ nm/min}$. Deux échantillons (Ni/verre et Ni/Si (100)) avec une épaisseur

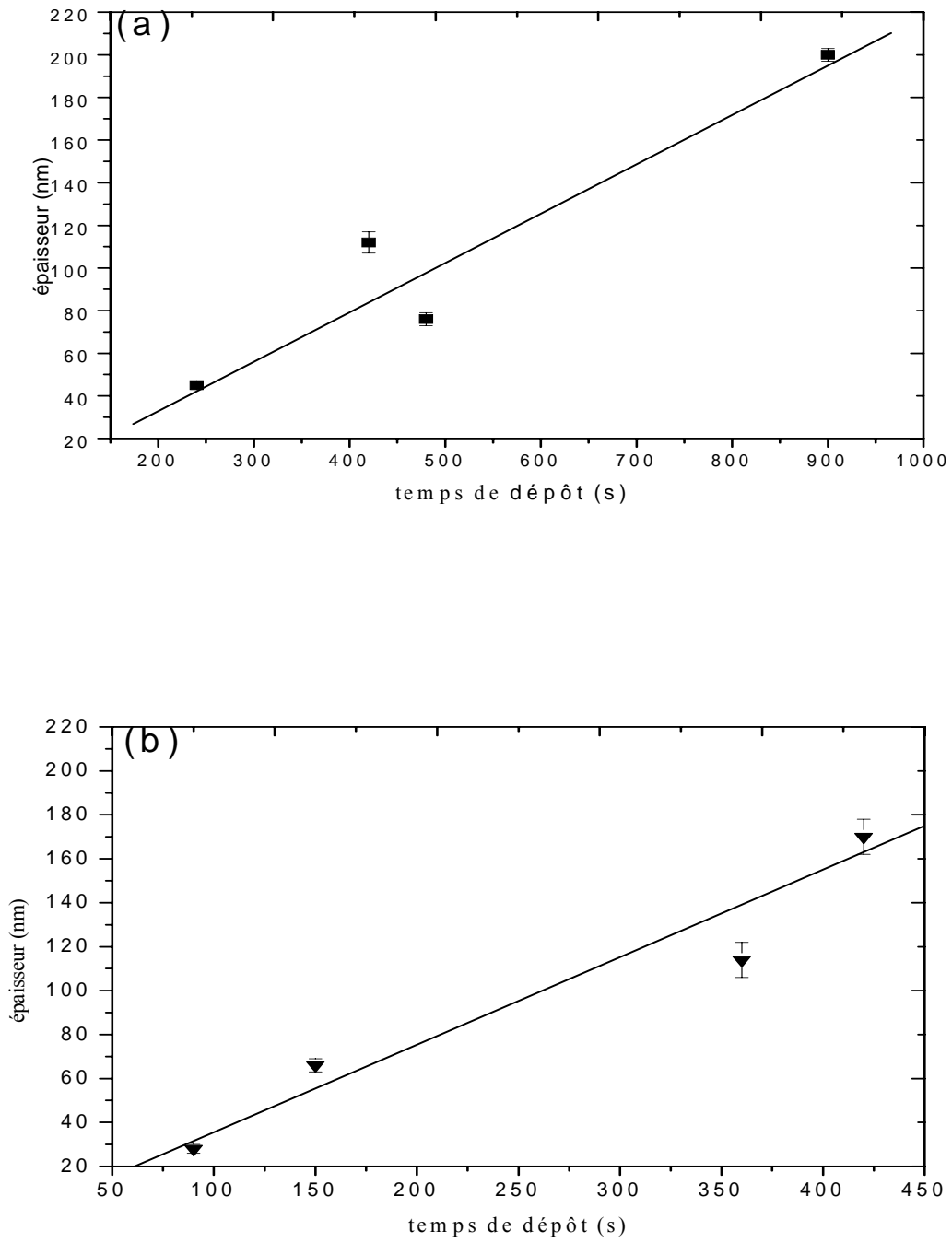


Fig. II.7. Variation de l'épaisseur des couches de Ni en fonction du temps de dépôt avec:

- (a) $v_1=13$ nm/min.
- (b) $v_2=22$ nm/min.

$t=86\text{nm}$ sont caractérisés par des propriétés totalement différentes des autres échantillons et n'ont été inclus ni dans la première série ni dans la deuxième série. La structure cristalline (texture, paramètre de maille, taille moyenne des grains) seront étudiés dans la deuxième partie de ce chapitre.

III. Analyse structurale (La diffraction des rayons X)

III.1. Introduction

On utilise, dans l'étude de certaines propriétés, la diffraction des rayons X (XRD). La diffraction dépend de la longueur d'onde et de la structure cristalline i.e. elle dépend de la distance inter réticulaire, de la taille des grains, du paramètre de maille...etc.

La diffraction des rayons X permet d'obtenir des informations sur la structure cristalline d'un matériau. Le principe de la méthode consiste à envoyer un faisceau de rayon X monochromatique produit par un générateur à anticathode en cuivre (Cu) sur l'échantillon à analyser. L'anticathode est excitée par une tension optimale d'émission de 20 à 45 KV. On utilise un filtre ou un monochromateur pour sélectionner la raie K_{α} du Cuivre (Cu) de longueur d'onde $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$.

Lorsque le faisceau des rayons X monochromatique frappe l'échantillon, il y aura une diffraction par les atomes du réseau et on obtient un diagramme de diffraction présentant des pics. Ce spectre nous renseigne sur la structure de l'échantillon. Donc la diffraction des rayons X est un outil indispensable dans l'étude des propriétés physiques du matériau. En effet c'est un outil puissant pour analyser la structure des matériaux. Ses fondements théoriques sont bien établis et permettent des interprétations relativement aisées des diffractogrammes. A partir des expériences de diffraction des rayons X, on peut tirer plusieurs informations sur la structure cristalline des échantillons, déterminer la composition chimique (dans le cas de mélange de plusieurs phases connues), connaître les états de contrainte, le taux de cristallinité, la taille des cristallites et le paramètre de maille. Chacune de ces informations demande un protocole expérimental spécifique. Dans notre étude on a utilisé le diffractomètre Bragg -Brentano ou le mode θ - 2θ .

III.2. Loi de Bragg

A l'aide d'une théorie très simple [12,13] (théorie statique), on obtient la loi de Bragg, donnant les conditions d'interférences constructives (i.e. un pic dans le diagramme de diffraction) :

$$2d_{hkl} \cdot \sin\theta = n \lambda \quad (\text{II.8}).$$

où :

d_{hkl} est la distance interréticulaire, c - a - d la distance séparant les plans parallèles d'une même famille repérés par les indices de Miller $h.k.l$.

λ est la longueur d'onde du faisceau incident du rayonnement utilisé (sur le détecteur D8, $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$, correspondant à la raie K_{α} du Cuivre)

θ est l'angle de diffraction.

n est l'ordre de la réflexion dans la famille de plans parallèles.

La figure (II.8) montre que dans des dispositifs de ce type, seuls les plans parallèles à la surface de l'échantillon diffractent. Les différentes réflexions sont régies par la loi de Bragg.

III.3. Dispositif expérimental

La structure cristalline des dépôts est obtenue par la diffraction des rayons X (DRX). L'appareil utilisé, de conception de Bragg -Brentano ou (Mode θ - 2θ) est un BRUKER D8 Advance. Son schéma de principe est présenté sur la figure (II.9). La source des rayons X dans ce dispositif est fixe, tandis que l'échantillon et le détecteur tournent pas à pas selon la précision désirée [14]. L'échantillon à analyser et le détecteur D8 effectuent une rotation progressive autour d'un axe passant par le centre de l'échantillon. L'appellation " θ - 2θ " signifie que lorsque l'échantillon effectue une rotation d'un angle θ sur lui-même pendant un temps " t ", le détecteur tourne d'un angle 2θ pendant ce temps " t ". On utilise un filtre monochromatique pour sélectionner la raie K_{α} de Cuivre de longueur d'onde $\lambda = 1.54 \text{ \AA}$. Le diffractomètre est alimenté par une différence de potentiel de 40KV et un courant de 40mA. Les plans qui diffractent sont alors repérés par l'angle 2θ .

Une fois que l'analyse est effectuée, on obtient un diagramme de diffraction, représentant le nombre de coups vus par le détecteur en fonction de l'angle de détection 2θ . Les pics mis en évidence doivent être alors comparés aux tables internationales du *Joint Committee on Powder Diffraction Standards* (JCPDS), qui recensent toutes les réponses aux rayons X des structures connues. On peut alors, par comparaison avec ses fiches, établir la structure et l'orientation des couches réalisées.

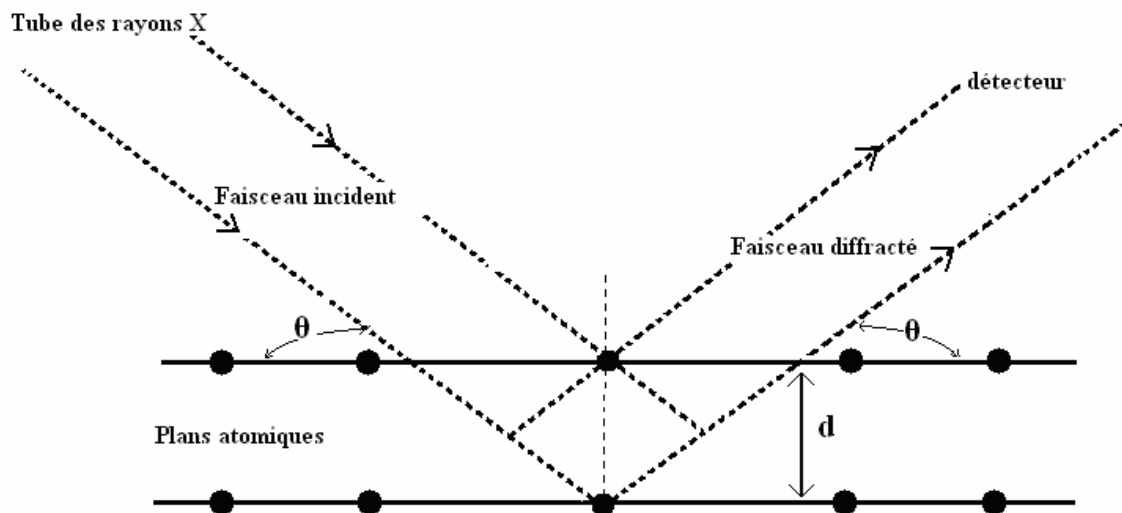


Fig. II.8. Illustration de la diffraction des rayons X (relation de Bragg).

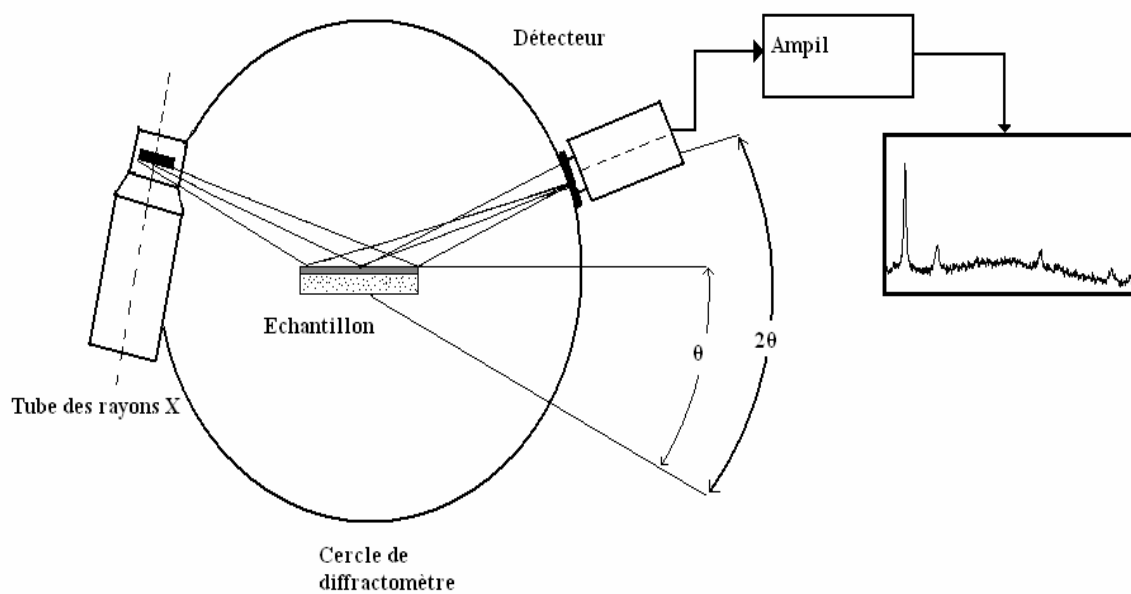


Fig. II.9. Dispositif expérimental du diffractomètre à poudre.

04-0850		Wavelength=1.5405				*
Ni	2θ	Int	h	k	l	
Nickel	44.505	100	1	1	1	
Nickel. Syn	51.844	42	2	0	0	
Rad : Cuka1 λ=1.5405 Filter : Ni Beta d-sp : Cut off: Int: Diffract I/lor: Ref: Swanson. Tatge. natl. bur. Stand. (U.S). Circ. 539. I.13.(19953)	76.366	21	2	2	0	
	92.939	20	3	1	1	
	98.440	7	2	2	2	
	121.922	4	4	0	0	
	144.655	14	3	3	1	
	155.632	15	4	2	0	
Sys.: Cubic S.G.:Fm3m (225) a: 3.5238 b: c: A: C: α: β: γ: Z= 4 mp: Ref: Ibid. Dx : 8.911 Dm : SS/FOM: F8 = 87(.0115 . 8)						
Color : White Pattern taken at 26 C. Sample obtained from Johnson Matthey Company, Ltd .CAS #: 7440-02-0. Spectrographic analysis show <0.01%each of Mg. Si and Ca. Cu type. Gold group .gold subgroup. PSC: cF4. Mwt: 58.70. volume[CD] : 43.76						

ICDD ©1997 JCPDS- International Center For Diffraction Data .All rights reserved
 PCPDFWIN v.1.30

Fig. II.10. fiche JCPDS du Nickel

Nos études ont été réalisées sur la gamme de $2\theta=30^{\circ}$ - 100° ; elle est suffisante pour l'identification des principaux pics.

La fiche utilisée de JCPDS du Nickel est donnée dans Fig.II.10. Elle est définie par son numéro, ici 04-0850. On peut trouver l'intensité des pics de diffraction (I) des différents plans repérés par leurs indices de Miller (h.k.l). Chaque ligne donne l'angle de diffraction 2θ , l'intensité I et les indices de Miller. D'autre information peuvent être trouvés: le groupe d'espace de matériau (ici Fm3m), la nature de la maille élémentaire, les différents paramètres de maille (a, b, c), le nombre d'atome Z qu'il contient... etc. La fiabilité de la fiche (Quality) et la référence bibliographique qui permet d'obtenir ces données sont également des informations très importantes.

III.4. Résultat et discussion

La caractérisation de nos couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre et de Si (100) par la méthode de diffraction des rayons X (DRX) a été réalisée au laboratoire de diffraction des rayons X à l'Université de Jijel.

III.4.1. Texture

Dans un matériau polycristallin, dans le cas général, les grains ne sont pas orientés au hasard. Ils ont des orientations préférentielles qui forment ce qu'on appelle une texture cristallographique. Cette orientation préférentielle ou texturation a une influence prépondérante sur les propriétés et la performance des couches minces réalisées. Les couches minces de Ni élaborées par des techniques en phase vapeur (CVD et PVD) présente en général une orientation préférentielle ou texture. Cette orientation est différente selon le type de substrat et la méthode d'élaboration. Néanmoins, celle-ci peut être changée avec les paramètres opératoires, tels que la composition de l'atmosphère gazeuse, la vitesse de dépôt, la nature de substrat ...etc.

Pour les couches de Ni élaborées par différentes techniques (CVD et PVD) déposées sur des substrats amorphes, semi-conducteurs et conducteurs, l'orientation la plus fréquemment observée est celle selon la direction [111] [15-20].

Comme on peut trouver que les couches de Ni déposées sur différents types de substrats, présentent une autre orientation préférentielle [200] ou une absence de texture [21,22].

III.4.1.1. système de Ni/verre

La figure II.11 (a, b et c) montre quelques spectres de diffraction des rayons X des couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre avec les épaisseurs: $t=76\text{nm}$, $t=86\text{nm}$ et $t=200\text{nm}$ respectivement.

Le spectre de diffraction des rayons X de la couche mince de Ni d'épaisseur $t=76\text{nm}$ est représenté dans Fig. II.11.a; on observe deux pics, l'un à $2\theta = 44.54^\circ$, correspondant au plan Ni (111) cfc et l'autre de faible intensité à $2\theta = 51.64^\circ$, correspondant au plan Ni (200). Dans cette épaisseur la texture est suivant la direction [111], à cause de la grande intensité du pic correspondant au plan (111).

Le diagramme de diffraction des rayons X de la couche de Ni avec un épaisseur $t= 86\text{nm}$ est représenté sur la figure Fig. (II.11.b). Il y a seulement un pic très faible à $2\theta= 44.34^\circ$, qui correspond au plan (111) de Ni cfc avec un certain décalage qui est peut être lié à la présence d'un champ de contraintes. Ce spectre de diffraction correspond à un échantillon élaboré avec la petite vitesse de dépôt ($v_1=8\text{nm/min}$), ce qui nous permet de dire que la vitesse de dépôt influe sur la qualité de cristallisation dans cet échantillon et la texture est toujours suivant la direction [111].

Pour la couche mince de Ni d'épaisseurs $t=200\text{nm}$ qui est représentée dans Fig.II.11.c. On observe l'apparition d'autres pics de faible intensité, par exemple (220) à $2\theta= 76.58^\circ$ et (311) à $2\theta= 93.32^\circ$ mais la texture reste toujours suivant la direction préférentielle [111] à $2\theta=44.58^\circ$, (le pic (111) a une intensité plus grande que celle prévue pour les poudres, i.e par la fiche JSPDS).

On conclut donc que pour les couches de Ni déposées sur des substrats de verre, l'orientation préférentielle ou la texture dans tous les échantillons est suivant la direction [111] de la structure cubique à face centrée. L'intensité de pic (111) augmente avec l'épaisseur à l'exception de l'échantillon d'épaisseur $t=86\text{nm}$, cet échantillon a été évaporé avec la plus faible vitesse de dépôt ($v=8\text{nm/min}$), d'où l'influence de v sur la qualité cristalline. On a aussi noté l'apparition d'autres pics (200), (220) et (311) dans la couche d'épaisseur $t=200\text{nm}$, mais avec des intensités très faibles comparées à l'intensité de (111). En général pour les couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre, la texture est suivant la direction [111].

Les résultats trouvés par J.B Yi et al [17] montre que pour les couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre, préparées par pulvérisation magnétron, avec une

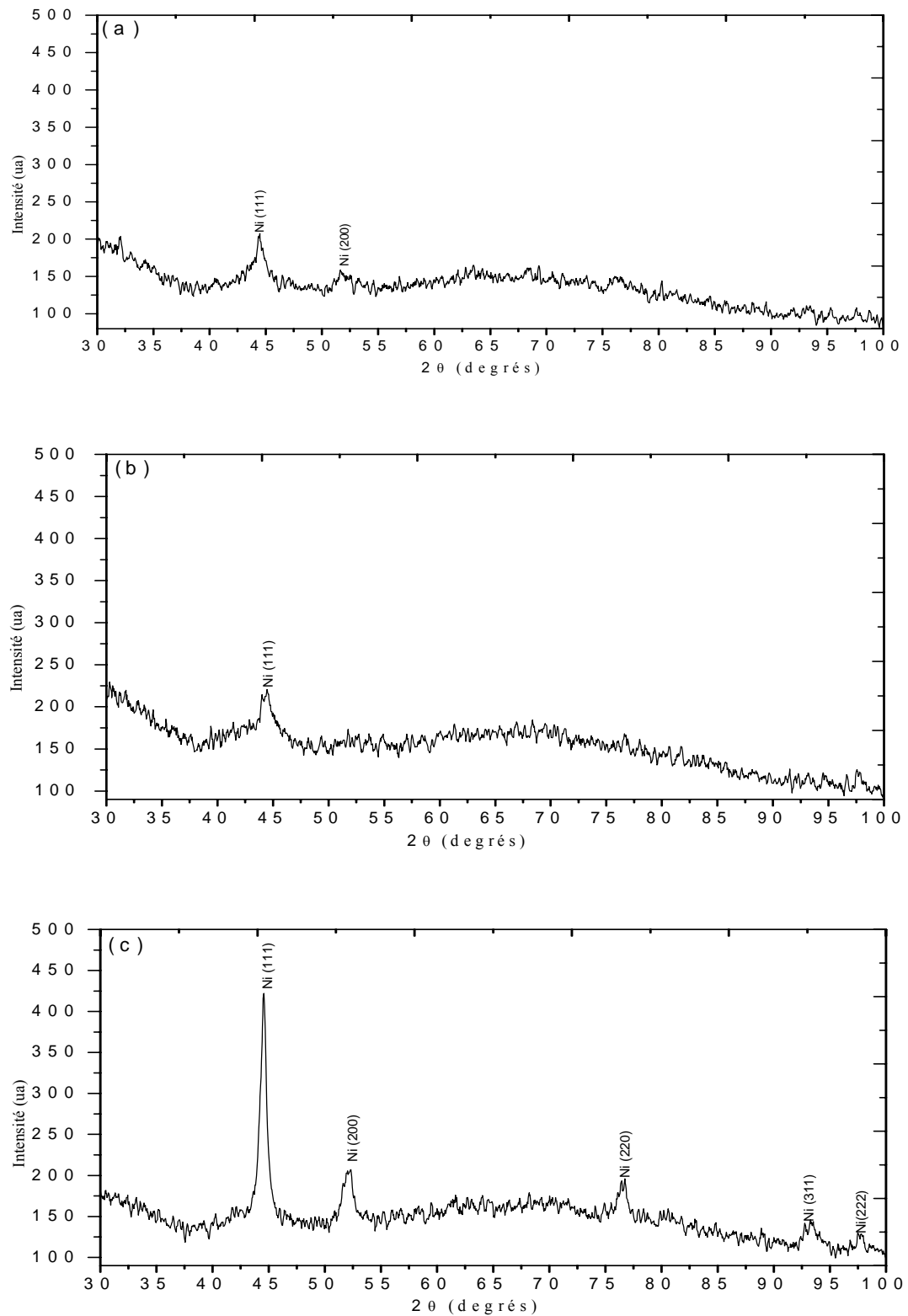


Fig. II. 11. Spectres de diffraction des rayons X des films de Ni/Verre pour les épaisseurs: (a) $t=76\text{nm}$, (b) $t=86\text{nm}$, et (c) $t=200\text{nm}$.

vitesse de dépôt $v=30\text{nm/min}$, il y a apparition de trois pics (111), (200) et (220) avec une texture suivant la direction [111] pour un épaisseur $t=100\text{nm}$; ces résultats sont en bon accord avec nos résultats. Il a été aussi reporté que pour les couches minces de Ni préparées par la méthode CVD (basée sur la photosensibilité) sur des substrats de verre, le spectre de DRX (K_{α} de Cu) montre deux pics (111) et (200) de la phase de Ni cfc, avec une texture suivant la direction [111]. [16]

On peut aussi ne pas trouver de texture; ainsi des couches minces de Ni d'épaisseur 500nm préparées par pulvérisation magnétron, sur des substrats de verre ne présentent aucune texture, malgré l'apparition de plusieurs pics. [21]

III.4.1.2. Système de Ni/Si (100)

Dans cette étude on a utilisé un substrat de Si monocristallin orienté suivant la direction [100]. Après la caractérisation des échantillons par la diffraction des rayons X (DRX), on observe l'apparition de deux pics de Si dans tout l'ensemble. Un pic très intense et très large considéré comme un pic principal suivant lequel le substrat est orienté, ce pic est situé à $2\theta=68.80^{\circ}$ et est identifié comme le plan Si (400). Un autre pic de faible intensité situé à $2\theta=32.60^{\circ}$, a été identifié comme un pic de Silicium suivant la direction (200) donc Si (200). Pour identifier ce pic on a fait référence à deux articles de B. C. Kang et al [23] et G.Chen et al [24].

La figure (II.12.a, b et c) montre quelques spectres de diffraction des rayons X, pour les couches minces de Ni déposées sur des substrats de Si (100). Les spectres de diffraction a, b et c correspondant aux épaisseurs: $t=76\text{nm}$, $t=86\text{nm}$ et $t=200\text{nm}$ respectivement.

Pour le spectre de la couche d'épaisseur $t=76\text{nm}$ représenté dans Fig.II.12.a, on voit l'apparition de deux pics du substrat Si (400) et Si (200) plus un pic de faible intensité provenant de la couche de Ni, ce pic correspond à l'orientation [111]. Dans cette épaisseur la texture est suivant la direction [111] et l'intensité de pic (111) de structure cubique à face centrée augmente avec l'épaisseur.

Le spectre (II.12.b) représente l'échantillon qui est élaborée avec une faible vitesse de dépôt, on observe l'apparition de deux pics du substrat de Si (100) et un pic de Ni cfc correspondant au plan (111) avec une faible intensité.

Le diagramme de diffraction des rayons X de la couche de Ni d'épaisseur $t=200\text{ nm}$ est représenté dans FigII.12.c. On observe l'apparition des deux pics du substrat Si (400), Si (200) et deux autres pics assez intenses. Le premier est suivant la direction [111] à

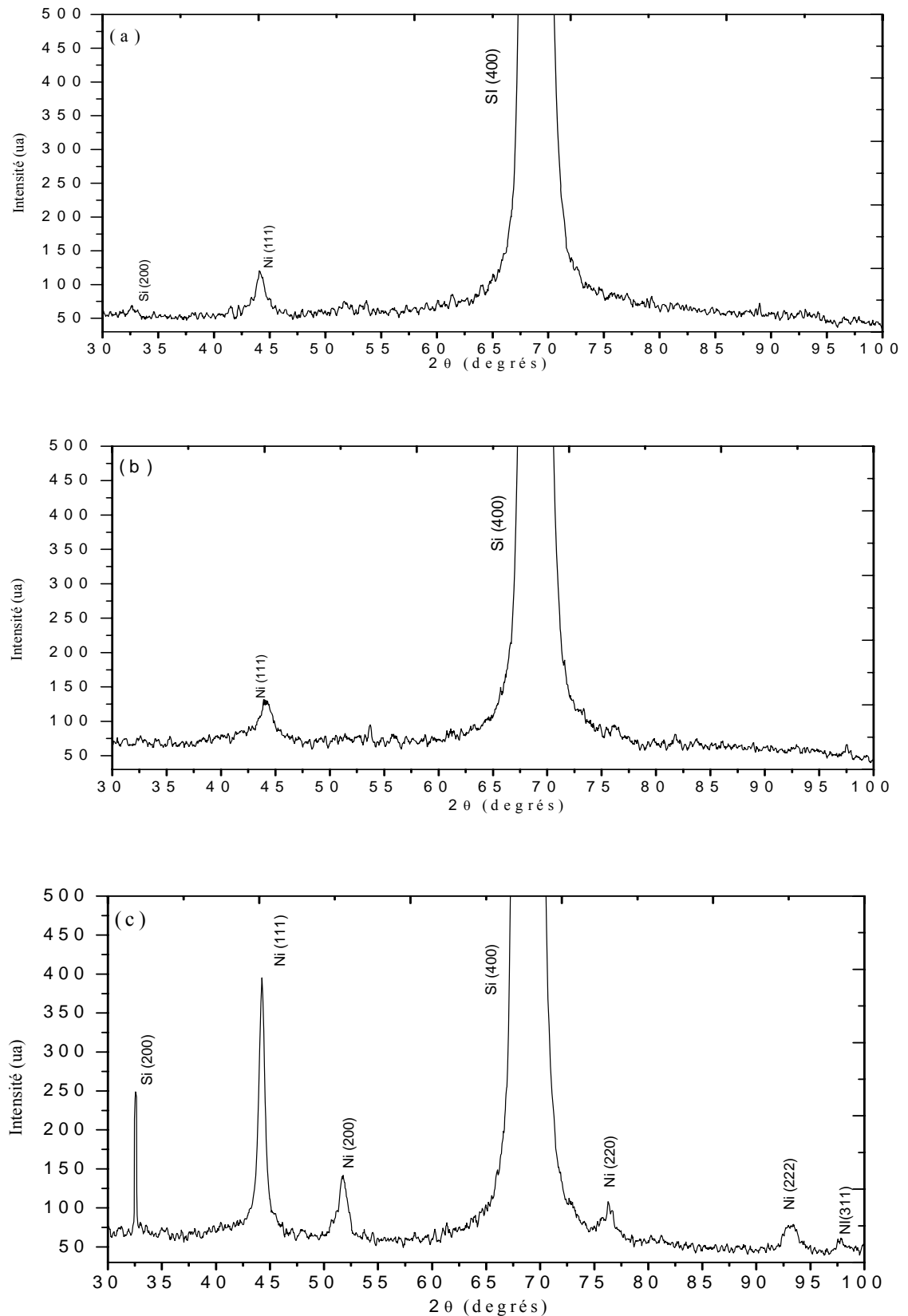


Fig. II. 12. Spectres de diffraction des rayons X des films de Ni/Si (100) pour les épaisseurs: (a) $t=76\text{nm}$, (b) $t=86\text{ nm}$, et (c) $t=200\text{nm}$.

$2\theta=44.34^\circ$. L'autre pic est suivant la direction [200], son intensité est faible comparée à celle du pic (111) et est situé à $2\theta=51.71^\circ$. Il y a aussi d'autres pics correspondant aux plans (220), (311) et (222) mais avec une très faible intensité.

On conclut que pour les couches minces de Ni déposées sur des substrats de silicium, la texture est suivant la direction [111]. L'intensité des pics augmente avec l'épaisseur pour tous les échantillons sauf l'échantillon d'épaisseur $t=86$ nm. En comparaison avec d'autres résultats réalisés par différents auteurs, la texture est en général suivant la direction [111].

Les couches minces de Ni déposées par épitaxie par jets moléculaire (MBE) avec une vitesse de dépôt de 0.12 nm/min, sur des substrats H/Si (111), présentent une texture suivant la direction [111] (Ni (111) de structure cubique à face centrée) [18].

Notons aussi que les multicouches de Ni/Si/Cu préparées par pulvérisation magnétron (RF) avec une vitesse de dépôt de 10nm/min et pour une gamme d'épaisseurs 0.5 à 3.5 μ m montrent une texture suivant la direction [111] de la structure cubique à face centrée [25]. Ainsi que les couches minces de Ni préparées par la méthode CVD sur des substrats Si avec une couche protectrice SiO₂, présentent un seul pic suivant la direction [111]. [19].

On peut citer par contre que des multicouches de Ni/Si, préparées par un système de pulvérisation en triode DC et avec une épaisseur de la bicouche entre 6 et 20nm, ne présentent aucune texture [26].

On voit qu'on trouve généralement la texture des couches minces de Ni déposées sur différents substrats suivant la direction [111] de la structure cfc; comme on peut aussi trouver une autre texture suivant [001] [27] ou une absence de texture.

Pour l'indication des pics, il y a certains écarts $\Delta 2\theta$ qui sont liés en général à la présence des contraintes internes (voir ci-dessous), à l'erreur de mesure et aussi à la fiche (JCPDS) qui correspond à une référence de poudre de Ni pur mais nos couches peuvent présenter des impuretés, par exemple oxygène. La méthode de diffraction des rayons X, nous permet aussi de mesurer plusieurs paramètres : le paramètre de maille et la taille moyenne des grains ce qu'on va avoir ci-dessous.

III.4.2. Paramètre de maille

Le paramètre de maille est un facteur important, il permet de renseigner sur l'état des contraintes exercées sur la couche mince. La différence entre la valeur du paramètre de maille naturel (massif) et la valeur mesurée par la diffraction des rayons X nous donne le strain ϵ^{hkl} [28] :

$$\varepsilon^{hkl} = \frac{a_{mesure} - a_{mass}}{a_{mass}} \quad (\text{II.9}).$$

Il peut prendre trois types de valeurs : positif, nul et négatif.

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

Le paramètre de maille est calculé à partir d'une relation entre la distance interréticulaire et les indices de Miller (h, k, l). Dans notre étude, le Nickel a une structure cubique, donc le paramètre de maille est donné [29], [30] :

$$a^2 = \frac{\lambda^2 (h^2 + k^2 + l^2)}{4 \sin^2 \theta} \quad (\text{II.10}).$$

L'évolution du paramètre de maille des couches minces de Ni en fonction de l'épaisseur et de la vitesse de dépôt des couches est présentée dans la section suivante.

III.4.2.1. Système de Ni/verre

La figure (II.13.a) montre la variation du paramètre de maille en fonction de l'épaisseur et de la vitesse moyenne de dépôt. On classe les deux séries selon la vitesse de dépôt. Pour la série des faibles vitesses ($v_1 = 13\text{nm/min}$), le paramètre de maille "a" diminue avec l'épaisseur "t" jusqu'à une valeur inférieure au paramètre de maille du massif ou pratiquement égale à celle du massif compte tenu de l'incertitude sur les mesures. Cette série d'échantillons présente une valeur maximale de $a = 3.5522\text{Å}$ pour $t=45\text{nm}$, ensuite une diminution jusqu'à une valeur minimale $a = 3.5213\text{Å}$ pour $t=200\text{nm}$. Le paramètre de maille mesuré est supérieur à celui de Ni massif ($a = 3.5240\text{Å}$) [31]. Le strain ε^{hkl} diminue avec l'épaisseur et est donné par $-0.07 \leq \varepsilon^{hkl} \leq 0.81\%$. La diminution du strain en fonction de t indique qu'il y a une relaxation des contraintes lorsque l'épaisseur augmente. La présence des atomes d'oxygène dans la maille de Ni impose une augmentation de paramètre de maille de Ni [32]. Pour les faibles vitesses d'évaporation, la concentration des

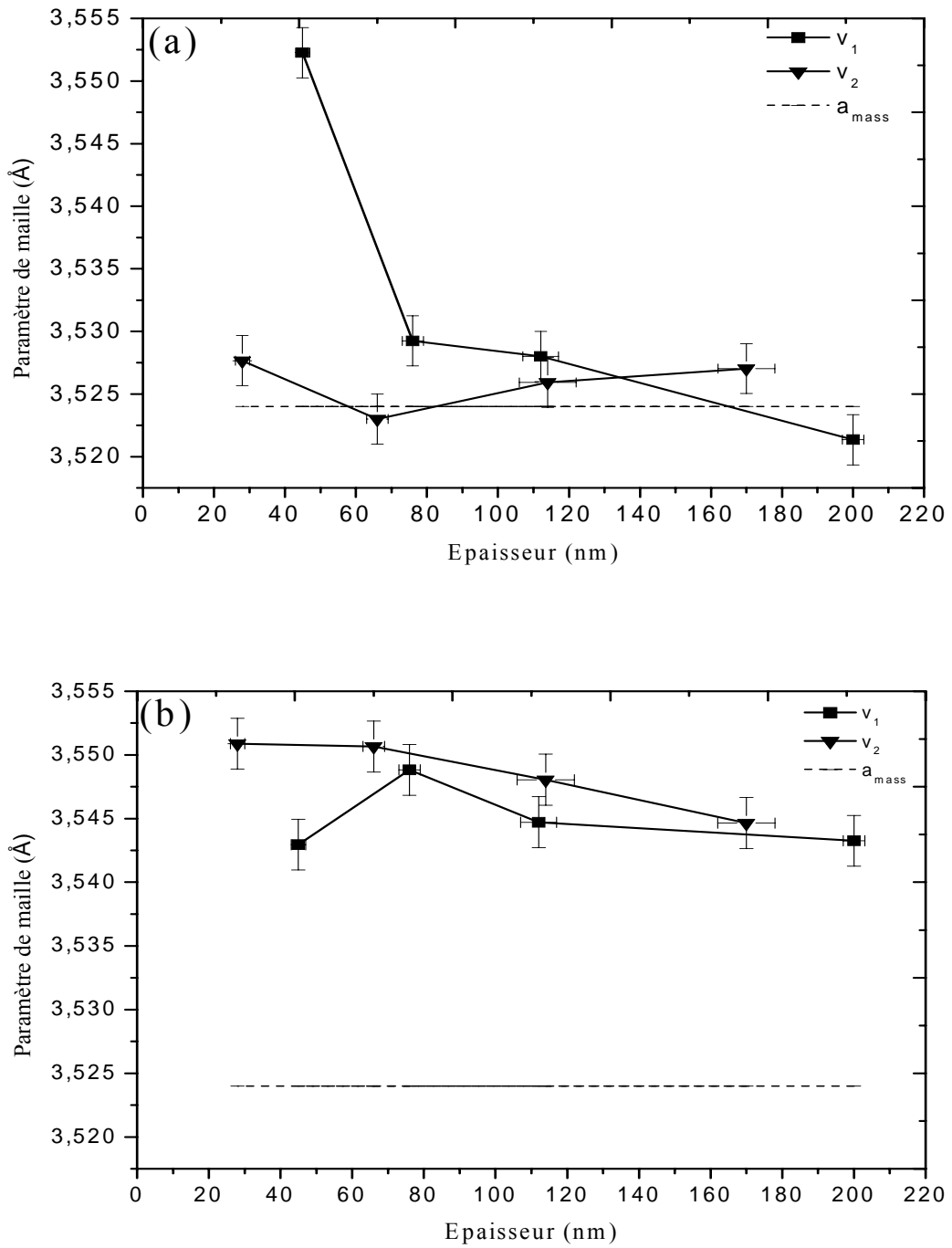


Fig. II.13. Variation du paramètre de maille en fonction de l'épaisseur de Ni pour les deux systèmes:

(a) Ni/verre.

(b) Ni/Si (100).

atomes d'oxygène peut être relativement grande. Dans notre cas, on n'a pas observé de pic NiO Probablement en raison de la disparition rapide de l'oxygène dans la couche de Ni [3]. Pour la série des grandes vitesses ($v_2 = 22\text{nm/min}$), le paramètre de maille "a" est proche de celui de Ni massif pour toute la gamme d'épaisseur. On observe une valeur minimale de $a=3.5230\text{\AA}$ pour $t= 66\text{nm}$. On note que les valeurs du strain ϵ^{hkl} sont faibles $-0.023 \leq \epsilon^{\text{hkl}} \leq 0.11\%$ et ϵ^{hkl} pratiquement constant avec l'épaisseur (Fig.II.14.a). Dans cette série d'échantillon on remarque qu'il y a moins de contraintes.

C. Nacereddine et al [28] ont trouvé des valeurs du strain des couches minces de Ni, préparées par évaporation sous vide sur des substrats de verre, relativement grande (en valeur absolue) par rapport aux nôtres. Pour des gammes d'épaisseurs allant de 31 à 165nm, ils ont trouvé un strain allant de -0.65 à -0.26%.

III.4.2.2. Système de Ni/Si (100)

La variation du paramètre de maille pour le système de Ni/Si (100) est montrée sur la figure (II.13.b). Une légère diminution est observée pour la série des grandes vitesses (v_2) quand l'épaisseur augmente avec un strain $0.59 \leq \epsilon^{\text{hkl}} \leq 0.77\%$ (Fig.II.14.b), qui correspond à une relaxation des contraintes. Pour la série de faible vitesse (v_1), une faible augmentation, ensuite une faible diminution correspondant à la relaxation des contraintes. Comparant les deux systèmes, on note que le paramètre de maille pour le système de Ni/Si est supérieur à celui de Ni/verre dans les deux séries de vitesse, ce qui nous permet de dire qu'il y a moins de contraintes dans le système de Ni/verre que dans Ni/Si. Lorsque l'épaisseur augmente, les contraintes diminuent pour le système Ni/verre, mais restent toujours élevées pour le Ni/Si. On note aussi que les échantillons Ni/verre préparés à la vitesse v_1 ont plus de contraintes que ceux élaborés à la vitesse v_2 pour les faibles épaisseurs (avant la relaxation des contraintes) alors que pour le Ni/Si, les échantillons préparés à v_2 semblent avoir plus de contraintes que ceux faits à v_1 pour toute la gamme d'épaisseurs étudiées. Le changement dans le paramètre de maille est lié aux contraintes résiduelles, ou à la présence des atomes d'oxygène dans les grains. L'effet du substrat joue aussi un rôle important dans l'origine des contraintes. A titre de comparaison, les couches minces de Ni préparées par pulvérisation d.c sur Si (100) et sur verre montre qu'il y a plus de contraintes dans les couches Ni/verre que dans le Ni/Si, (pour Ni/Verre "a" varie entre

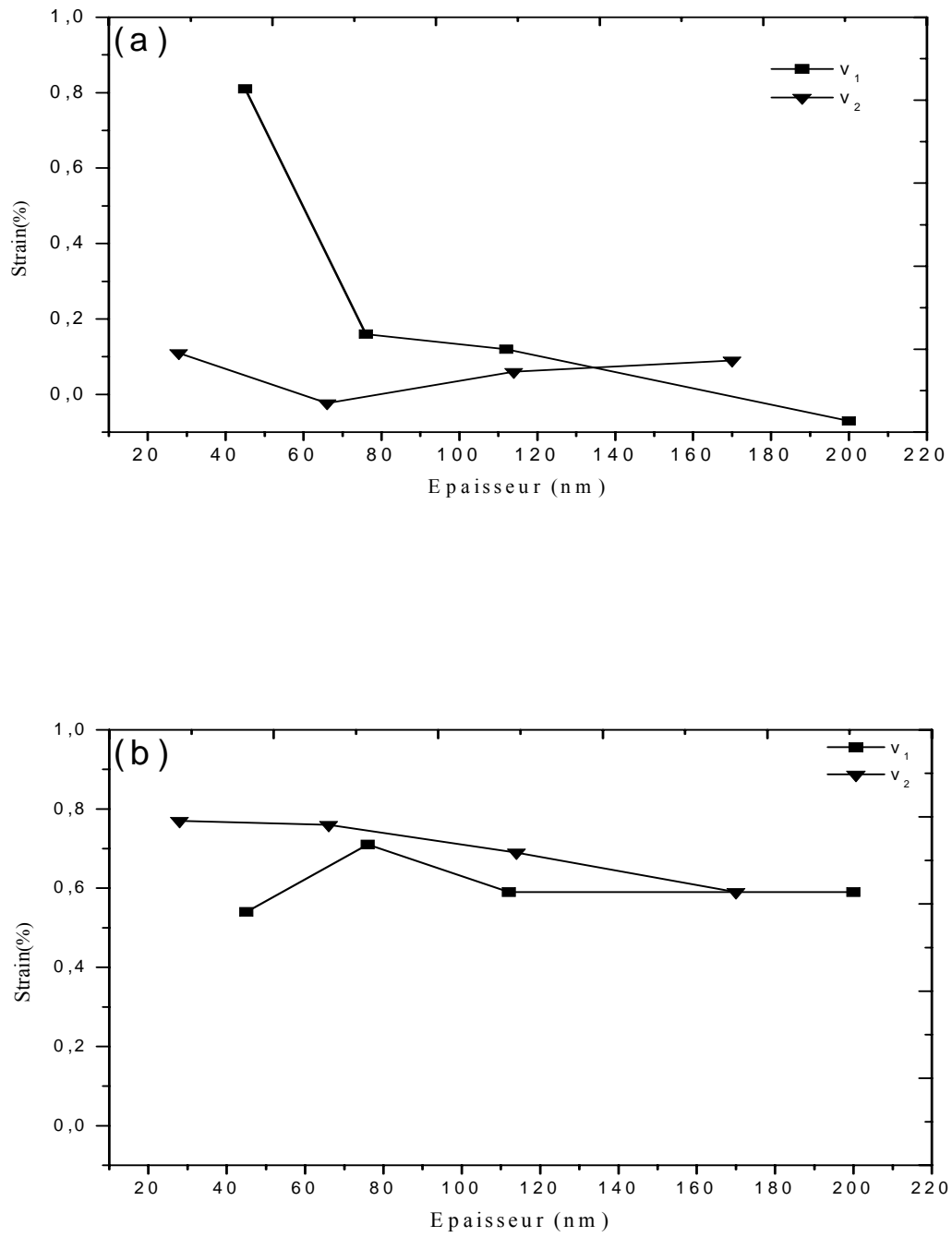


Fig. II.13. Variation du strain en fonction de l'épaisseur de Ni pour les deux systèmes:

- a) Ni/ verre.
- b) Ni/Si (100).

3.411Å et 3.397Å et pour Ni/Si (100) $a= 3.512\text{Å}$ [33,34]. Notons que les couches minces de Ni préparées par épitaxie sur des substrats de MgO ont un paramètre de maille $a=3.516\text{Å}$, à température ambiante [20]. Les couches minces de Ni préparées par épitaxie déposées sur des substrats de W (100) ont un paramètre de maille $a= 3.524\text{Å}$ [15].

III.4.3. La taille des grains

L'analyse de diffraction est un outil très important pour étudier la croissance cristalline d'une couche mince. Il nous permet de calculer la taille moyenne des grains qui peut jouer un rôle important dans les propriétés physiques (électriques, magnétiques ...) des matériaux.

La taille moyenne des grains "D" des couches minces peut être déterminée à partir de la relation de D. Scherrer [35]:

$$D = \frac{\lambda}{W \cos \theta} \quad (\text{II.11}).$$

avec

λ : la longueur d'onde des rayons X ($\lambda=1.54\text{Å}$).

W: largeur à mi-hauteur du pic principal en radian.

θ : angle de diffraction.

On exposera dans la section suivante la variation de la taille moyenne des grains des couches minces de Ni en fonction de l'épaisseur et de la vitesse de dépôt.

III.4.3.1 Système de Ni/verre

La figure (II.15.a) montre la variation de la taille moyenne des grains des couches minces de Ni en fonction de l'épaisseur. Pour la série des faibles vitesses ($v_1=13\text{nm/min}$), on observe une augmentation monotone de la taille moyenne des grains en fonction de l'épaisseur de la couche (on peut dire qu'il y a une accumulation des grains avec l'augmentation de l'épaisseur). On remarque sur le graphe qu'une valeur maximale $D=140\text{Å}$ est enregistrée pour une épaisseur $t=200\text{nm}$. Alors que la plus petite taille moyenne des grains $D=54\text{Å}$, correspond à une épaisseur $t= 45\text{nm}$. Par contre pour la série des grandes

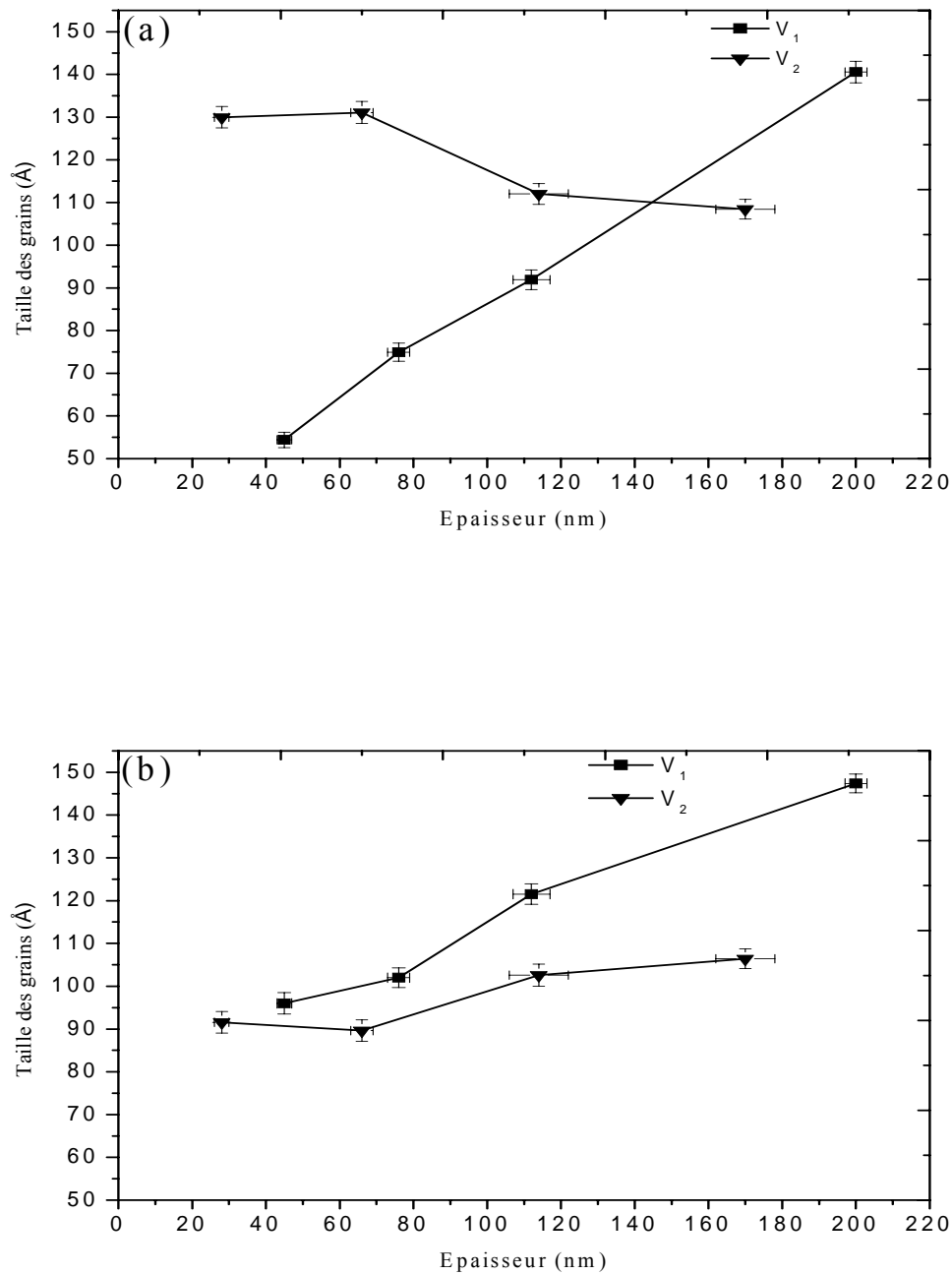


Fig. II.15. Variation de la taille moyenne des grains en fonction de l'épaisseur de Ni pour les deux systèmes:

(a) Ni/ verre.

(b) Ni/Si (100).

vitesse de dépôt ($v_2=22\text{nm/min}$), la taille moyenne des grains est constante pour les faibles épaisseurs ($D\approx 130\text{\AA}$). Ensuite, on observe une diminution de D avec t . Une valeur minimale $D=108\text{\AA}$ est notée dans cette série pour $t=170\text{ nm}$. Pour les faibles épaisseurs, la taille moyenne des grains D (v_2) est supérieure à la taille moyenne D (v_1) et on observe le contraire pour les grandes épaisseurs.

Par comparaison, on peut citer que dans les couches minces de Ni déposées par évaporation sous vide sur des substrats de verre, avec une vitesse $v=1\text{nm/min}$, une augmentation monotone de la taille moyenne des grains avec l'épaisseur est observée; ce qui est de bon accord avec nos résultats de la série des faibles vitesses de dépôt [36]. Concernant l'ordre de grandeurs de D , on peut noter que les couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre par pulvérisation d.c ont une taille moyenne des grains $D=160\text{\AA}$ pour $t=140\text{nm}$ [37], valeur légèrement supérieure à celles trouvées dans cette étude.

III.4.3.2. Système de Ni/Si (100)

La figure (II.15.b) montre l'évolution de la taille moyenne des grains en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni. Pour la série des faibles vitesses ($v_1=13\text{nm/min}$), on observe une augmentation monotone de D avec l'épaisseur. Une valeur maximale de $D=147\text{\AA}$ est notée pour un épaisseur $t=200\text{nm}$. Pour la série des grandes vitesses de dépôt, D est constante ($D\approx 90\text{\AA}$) pour les faibles épaisseurs, ensuite une augmente jusqu'à $D=106\text{\AA}$ pour $t=170\text{nm}$. On observe aussi que D (v_2) est inférieure à D (v_1). Pour une comparaison entre D (Ni/Si) et D (Ni/verre) pour v et t données, on remarque que pour la série des faibles vitesses de dépôt v_1 , D (Ni/Si) est supérieure à D (Ni/verre), par contre pour la série des grandes vitesses v_2 , D (Ni/Si) est inférieure à D (Ni/verre), pour tous les échantillons.

A titre de comparaison, les couches minces de Ni préparées par pulvérisation d.c sur des substrats de Si (100), sont caractérisées par une taille moyenne des grains $D=470\text{\AA}$ pour une épaisseur $t=140\text{nm}$ [37], donc des valeurs plus grandes que celles trouvées dans les couches évaporées (le présent travail). Alors que les couches minces de Ni préparées par (MBE) épitaxie par jets moléculaire sur des substrats Si (111) ont une taille moyenne des grains proche de nos valeurs, $D=100\text{\AA}$ pour une épaisseur $t=27.5\text{nm}$ [18].

III.5. Conclusion

La diffraction des rayons X (XRD) à permis de déterminer la structure cristalline des couches minces, par exemple la texture, le calcul du paramètre de maille a et la taille moyenne des grains D . Notons que les échantillons (Ni/verre et Ni/Si) avec épaisseur $t=86\text{nm}$ présentent des propriétés structurales différentes des 2 séries (de vitesse v_1 et v_2) telles qu'une très faible taille des grains et la plus grande valeur du paramètre de maille (pour Ni/Si). Rappelons que ces échantillons ont été élaborés avec une vitesse de dépôt égale à 8nm/min .

IV. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les différents résultats obtenus avec la RBS et la diffraction des RX. Nous avons ainsi pu vérifier la qualité des échantillons élaborés avant d'étudier leurs propriétés électriques et magnétiques.

A partir des spectres RBS, simulés par le programmes SIMINRA, on a pu mesurer les épaisseurs des couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre et de Si (100). Les épaisseurs des échantillons se situent entre 28 et 200 nm. L'étude des spectres RBS montre un mauvais état de surface des substrats de verre (apparition des bosses entre le pic de Ni et le palier du substrat de verre sur le spectre RBS). Il semble qu'il n'y ait aucune interdiffusion entre les couches de Ni et le substrat de Si. Les valeurs des épaisseurs montrent une dépendance non linéaire entre le temps de dépôt et les épaisseurs mesurées; ce qui nous a conduit à définir 2 vitesses de dépôt: $v_1=13\text{nm/min}$ et $v_2=22\text{nm/min}$.

En ce qui concerne les spectres de DRX, la direction $\langle 111 \rangle$ est l'orientation préférentielle observée dans tous les échantillons, pour les deux systèmes (Ni/Si et Ni/verre) et les deux séries de vitesses de dépôt. L'étude du paramètre de maille montre que le système Ni/Si a plus de contrainte que le système Ni/verre; on trouve des valeurs du strain ϵ^{hkl} telles $-0.07\% \leq \epsilon^{hkl} \leq 0.81\%$ pour le système Ni/verre et $0.54\% \leq \epsilon^{hkl} \leq 0.78\%$ pour le système de Ni/Si. Notons que la contrainte diminue pour les grandes épaisseurs pour le Ni/verre, ce qui peut être expliqué par la relaxation des contraintes. A l'aide de relation de D.Scherrer on a calculé la taille moyenne des grains. Le système de Ni/Si est caractérisé par présente des valeurs de D telles que $89 \leq D \leq 147 \text{Å}$, alors que pour le système Ni/verre on a $54 \leq D \leq 140 \text{Å}$. Pour les échantillons déposés à v_1 on note une augmentation monotone de la taille moyenne des grains avec l'épaisseur pour les deux systèmes. Pour les

échantillons élaborés à la vitesse v_2 , la taille moyenne des grains ne varie pas de façon appréciable avec t pour les faibles épaisseurs; on note néanmoins une légère diminution (augmentation) pour Ni/verre (Ni/Si) pour les grandes épaisseurs.

Le chapitre suivant traite les propriétés électriques de nos couches minces.

Etude des propriétés

électriques

CHAPITRE III

ETUDE DES PROPRIETES ELECTRIQUES

I. Introduction

Une des propriétés électriques les plus importantes des métaux est la réciproque de la conductivité (connue sous le nom résistivité, ρ). Une caractéristique d'un métal est sa petite résistivité électrique qui résulte de la facilité avec laquelle les électrons peuvent émerger par le réseau. Les propriétés électriques d'un corps massif sont différentes de celles des systèmes à deux dimensions (couches minces). Dans ce chapitre nous avons étudié les propriétés électriques de nos couches minces. Rappelons que les propriétés électriques des couches minces dépendent fortement des conditions et de la méthode de préparation des couches minces. Elles dépendent aussi des propriétés structurales telles que l'épaisseur, la taille des grains, les défauts cristallins, la distance intercristallites des couches et la nature du substrat. Dans la première partie de ce troisième chapitre nous étudions l'effet de l'épaisseur en combinaison avec l'effet de la vitesse de dépôt sur le comportement de la résistivité ρ et de la résistance carrée R_{\square} . Ensuite dans la deuxième partie nous allons étudier l'effet de la taille des grains.

Nous présentons, dans ce chapitre, le dispositif utilisé pour la mesure de la résistance carrée des couches minces de Ni/verre et de Ni/Si (100). On en déduit la résistivité à partir de R_{\square} et de l'épaisseur (section II). On décrit en détail la loi de Mattiessen qui permet de séparer les différents paramètres contribuant à la résistivité électrique (section III). La description et la discussion des résultats seront présentées pour les deux systèmes, Ni/verre et Ni/Si (section IV). Nous exposerons des modèles simples utilisant une approche semi classique permettant d'expliquer et d'interpréter de manière très satisfaisante l'ensemble des résultats expérimentaux que nous avons obtenus sur les couches minces de Ni/verre et de Ni/Si (section V). On finira ce chapitre avec une petite conclusion.

II. Dispositif de mesure de la résistance carrée

L'épaisseur d'une couche mince joue un rôle important dans les propriétés électriques. Si l'épaisseur est négligeable par rapport aux autres dimensions on peut utiliser un modèle bidimensionnel de la conduction pour mesurer la résistance carrée. La mesure de la résistance carrée de nos échantillons a été effectuée à l'air libre (température ambiante, pression atmosphérique) par la méthode des quatre pointes. L'expérience de mesure de la résistance a été faite au niveau du CRNA à Alger (Centre de Recherche Nucléaire d'Alger).

II.1. Principe de fonctionnement

La méthode des quatre pointes est une technique qui permet de mesurer la résistivité électrique des couches minces à partir des résistances carrées. Dans la méthode des quatre pointes, on applique sur le film quatre pointes fines, alignées et conductrices de diamètre $\Phi = 0.4\text{mm}$. Ces pointes sont équidistantes de 1mm comme il est montré sur la figure III.1. L'équipement de mesure de la résistance carrée constitue un dispositif qui contient les quatre pointes raccordées à un micro-ordinateur. Cet équipement et la résistance carrée des couches minces permettent de faciliter les calculs de la résistivité. Le dispositif est conçu pour fonctionner dans un domaine bien précis : la résistance carrée entre $1\text{m}\Omega$ et $2\text{M}\Omega$ et la résistivité entre $10\ \mu\Omega.\text{cm}$ et $200\text{K}\Omega.\text{cm}$.

II.2. Mesure de la résistance électrique

La méthode des quatre pointes consiste à mesurer la résistance carrée des couches minces à l'aide de quatre électrodes, en injectant un courant continu I entre les deux électrodes externes du dispositif de mesure et en mesurant la différence de potentiel induite entre les deux électrodes internes, comme il est montré sur la figure (III.1). La résistance carrée est donnée généralement par l'expression [38]:

$$R_{\square} = C_f \cdot \frac{V}{I} \quad (\text{III.1}).$$

avec :

R_{\square} est la résistance carrée en Ω .

C_f est un coefficient sans dimension, il est considéré comme un facteur de forme. Il traduit la dispersion des lignes de courants entre les points du dispositif. C'est une caractéristique

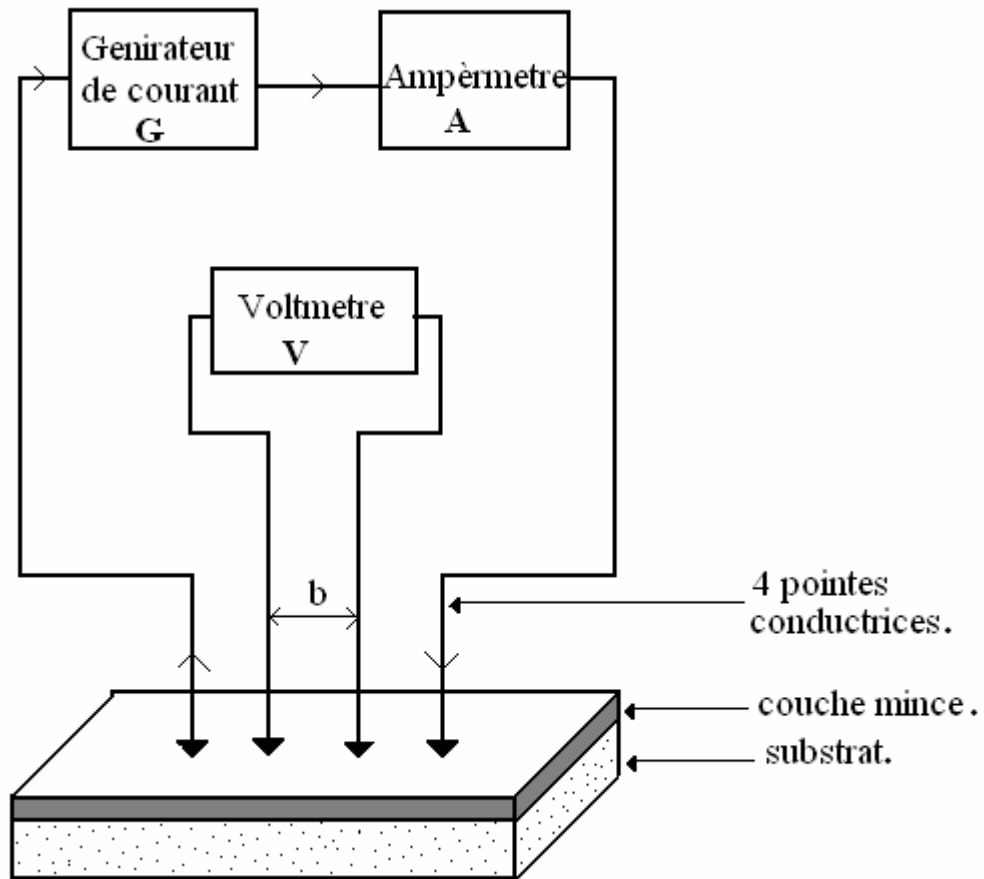


Fig. III.1. Schéma simplifié de la technique des quatre pointes

de la géométrie à deux dimensions et dépend de la dimension et de la géométrie des matériaux utilisés.

Si l'épaisseur de la couche est négligeable devant la moitié de la distance b entre les pointes, ($t \ll b/2$) alors $C_f = 4.53$ [39].

V est la tension en volt (V).

I est le courant qui circule entre les électrodes en Ampère (A).

En multipliant la valeur de la résistance carrée qu'on a obtenue à partir de la méthode des quatre pointes par l'épaisseur de la couche correspondante, on trouve la résistivité électrique. Elle est donnée par [34,40] :

$$\rho_f = R_{\square} \cdot t \quad (\text{III.2}).$$

où

ρ_f est la résistivité électrique de la couche en $\Omega \cdot \text{cm}$.

Dans le métal massif la résistivité (ρ_f) trouve son origine dans l'interaction des électrons de conduction avec les oscillations du réseau (phonons), les imperfections, (lacunes, dislocation, ...) et les impuretés.

III. La loi de Mattiessen

La loi de Mattiessen est une loi empirique (1864). Elle montre que la résistivité d'une couche mince est la somme arithmétique simple des différentes contributions de toutes les sources de dispersion électronique [41]:

$$\rho = \sum_i \rho_i \quad (\text{III.3}).$$

ρ_i est la résistivité due à chaque mécanisme de dispersion.

Pour les couches minces, la résistivité totale ρ_0 du matériau étudié est la somme de toutes les contributions données sous la forme suivante [42]:

$$\rho_0 = \rho_r + \rho_t \quad (\text{III.4}).$$

ρ_r est la résistivité résiduelle et ρ_t est la résistivité idéale.

La résistivité idéale ρ_t est une caractéristique intrinsèque d'un matériau. Elle dépend de la température et est due à l'interaction des électrons-phonons. Elle ne dépend ni de la pureté ni de la perfection de l'échantillon.

La résistivité résiduelle ρ_r est la somme des résistivités dues à chaque type de processus de diffusion des électrons de conduction: désordre magnétique, défaut et impureté. D'une manière générale, elle est donnée pour une couche mince continue par la relation suivante [43] :

$$\rho_r = \rho_i + \rho_d + \rho_m + \rho_g + \rho_s \quad (\text{III.5}).$$

ρ_i est une résistivité due aux impuretés. Elle est indépendante de la température. L'origine de ces impuretés peut être dans notre cas : impuretés dues à la pompe à diffusion d'huile (carbone, oxygène et hydrogène), aux précédentes évaporations faites dans cet évaporateur et aux différents gaz présents dans une atmosphère de 7.10^{-7} mbar.

ρ_d est la résistivité due aux défauts intergranulaires, qui se forment généralement lors de la croissance cristalline et la présence des contraintes.

ρ_m est la résistivité due au désordre magnétique. Pour les métaux de transitions (ferromagnétiques), tel que le Ni, elle est fortement dépendante de la température. Cette résistivité résulte de la diffusion en désordre des spins des électrons de conduction par les électrons localisés dans un métal [43].

ρ_g est la résistivité due à la diffusion des électrons aux joints de grains présents dans le film. Les joints de grains limitent le mouvement des électrons de conduction [44]. L'augmentation du nombre de joints de grains avec la diminution de la taille des grains conduit à une résistivité élevée. En fait on observe une résistivité élevée comparée avec celle du métal en volume [33], car dans le métal massif, les grains sont de l'ordre du micromètre à titre d'exemple [42].

ρ_s est la résistivité due à la diffusion par la surface. Quand l'une des dimensions de la couche devient du même ordre de grandeur ou inférieure au libre parcours moyen de l'électron de conduction du massif, l'interaction électron-surface va jouer un rôle considérable dans la variation de la valeur de la résistivité du film. On prend comme exemple l'épaisseur, si l'épaisseur de la couche est comparable au libre parcours moyen (lpm) des électrons de conduction dans le matériau massif, la diffusion par les deux bords fait augmenter la résistivité, par conséquent ρ_s augmente si l'épaisseur du film diminue.

Pour faire une étude sur la variation de la résistance carrée et de la résistivité, il faut tenir en compte plusieurs facteurs :

-La méthode de préparation: la résistance dépend fortement de la température du substrat, de la vitesse de dépôt et de l'uniformité du courant. Notons que la quantité de gaz piégée lors de la formation des couches minces par évaporation est très faible par rapport la quantité piégée dans le système de pulvérisation, à cause de la pression élevée dans le pulvérisateur, ce qui donne une faible contribution des molécules piégées à la structure cristalline, donc au phénomène de conduction.

-Le processus de croissance: au départ, la croissance se fait par îlots qui se développent jusqu'à ce qu'ils entrent en contact et forment un réseau métallique, pour former à la fin une couche mince. Notons que la présence de défauts cristallins (les lacunes, les dislocations, les interstitielles) entre les colonnes de croissance, peut agir comme une barrière de potentiel [45] ce qui exige aux électrons la conduction par effet tunnel.

-La rugosité de la surface joue un rôle important dans le phénomène de conduction, de sorte que R_{\square} et ρ augmentent avec la diminution de la vitesse de dépôt donc l'augmentation de la rugosité de la surface. G.Fischer et al [46] montrent que plus la vitesse de dépôt diminue plus la rugosité de la surface augmente

IV. Résultats et discussion

IV.1. Etude de la résistance carrée en fonction de l'épaisseur et de la vitesse de dépôt

IV.1.1. système de Ni/verre

Les valeurs de la résistance carrée de nos couches, à température ambiante, sont toutes finies pour les deux systèmes; ce qui confirme la continuité de nos couches minces, dans le cas contraire, la résistance serait infinie.

La figure (III.2.a) montre la variation de résistance carrée des couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre en fonction de l'épaisseur et de la vitesse moyenne de dépôt ($v_1=13\text{nm/min}$ et $v_2=22\text{nm/min}$). Pour les deux vitesses de dépôt, la résistance carrée diminue de façon monotone avec l'augmentation de l'épaisseur. Pour la série déposée à v_1 , la plus grande valeur de la résistance est $R_{\square}=4.24 \Omega$ pour une épaisseur $t=45\text{nm}$. La diminution continue jusqu'à une valeur minimale $R_{\square}=0.665 \Omega$ correspondant à

la plus grande épaisseur dans les deux séries ($t=200\text{nm}$). Pour la deuxième série élaborée à la vitesse v_2 , on remarque que la résistance électrique mesurée diminue progressivement de sa valeur initiale qui correspond à une résistance $R_{\square}=4.75\ \Omega$ pour la plus petite épaisseur $t=28\ \text{nm}$ jusqu'à une valeur minimale $R_{\square}=0.95\ \Omega$ pour une épaisseur $t=170\text{nm}$. Notons que pour la plupart des échantillons, $R_{\square}(v_1)$ est supérieure à $R_{\square}(v_2)$ (voir Fig.III.2.a).

A titre de comparaison, on peut citer que pour des couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre et préparées par pulvérisation cathodique diode dc par B.Ghebouli et al [33, 34] où la vitesse moyenne de dépôt est $v=11\text{nm}/\text{min}$ et pour une gamme d'épaisseur de $t=47\text{nm}$ à $t=317\text{nm}$, les auteurs trouvent une décroissance monotone de résistance de $R_{\square}=51\ \Omega$ jusqu'à $3\ \Omega$. Les résistances de nos couches sont donc faibles par rapport à celles trouvées par B.Ghebouli. Aussi des couches minces de Ni/verre (corning glass), préparées par évaporation avec une vitesse $v=6\text{nm}/\text{min}$ et une épaisseur $t=14.5\text{nm}$, ont une résistance de $R_{\square}=100\ \Omega$ [47]. Une autre comparaison avec les couches minces de Ni/verre déposées par IBS (pulvérisation par bombardement ionique) avec une vitesse de $v=0.3\text{nm}/\text{min}$, où pour une épaisseur $t=50\text{nm}$, la résistance est $R_{\square}=30\ \Omega$ [43].

IV.1.2. Système Ni/Si (100)

La variation de la résistance électrique a presque le même comportement que les couches minces de Ni/verre, elle est présentée sur la figure (III.2.b).

Pour les deux vitesses de dépôt, la résistance carrée diminue de façon monotone avec l'épaisseur. Pour la première série des vitesses de dépôt, elle varie d'une valeur de la résistance $R_{\square}=3.269\ \Omega$ pour une épaisseur $t=45\text{nm}$ jusqu'à la petite valeur de la résistance $R_{\square}=0.715\ \Omega$ pour la grande valeur d'épaisseur $t=200\text{nm}$.

Pour la deuxième série des vitesses de dépôt, R_{\square} varie d'une valeur maximale $R_{\square}=3.414\ \Omega$ pour une épaisseur $t=28\text{nm}$ jusqu'à une résistance minimale $R_{\square}=1.6015\ \Omega$ pour une épaisseur $t=114\text{nm}$. Ensuite on observe une légère augmentation jusqu'à une valeur de résistance $R_{\square}=1.713\ \Omega$ pour une épaisseur de $t=170\text{nm}$. On note aussi que pour une vitesse donnée $R_{\square}(\text{Ni/verre})$ est supérieure (inférieure) à $R_{\square}(\text{Ni/Si})$ pour les faibles (grandes) épaisseurs.

D'une manière générale nos valeurs sont très faibles par rapport à celles trouvées par B. Ghebouli [33, 34], dans la gamme d'épaisseur $t=47\text{nm}$ à $t=317\text{nm}$ et avec une vitesse $v=11\text{nm}/\text{min}$.

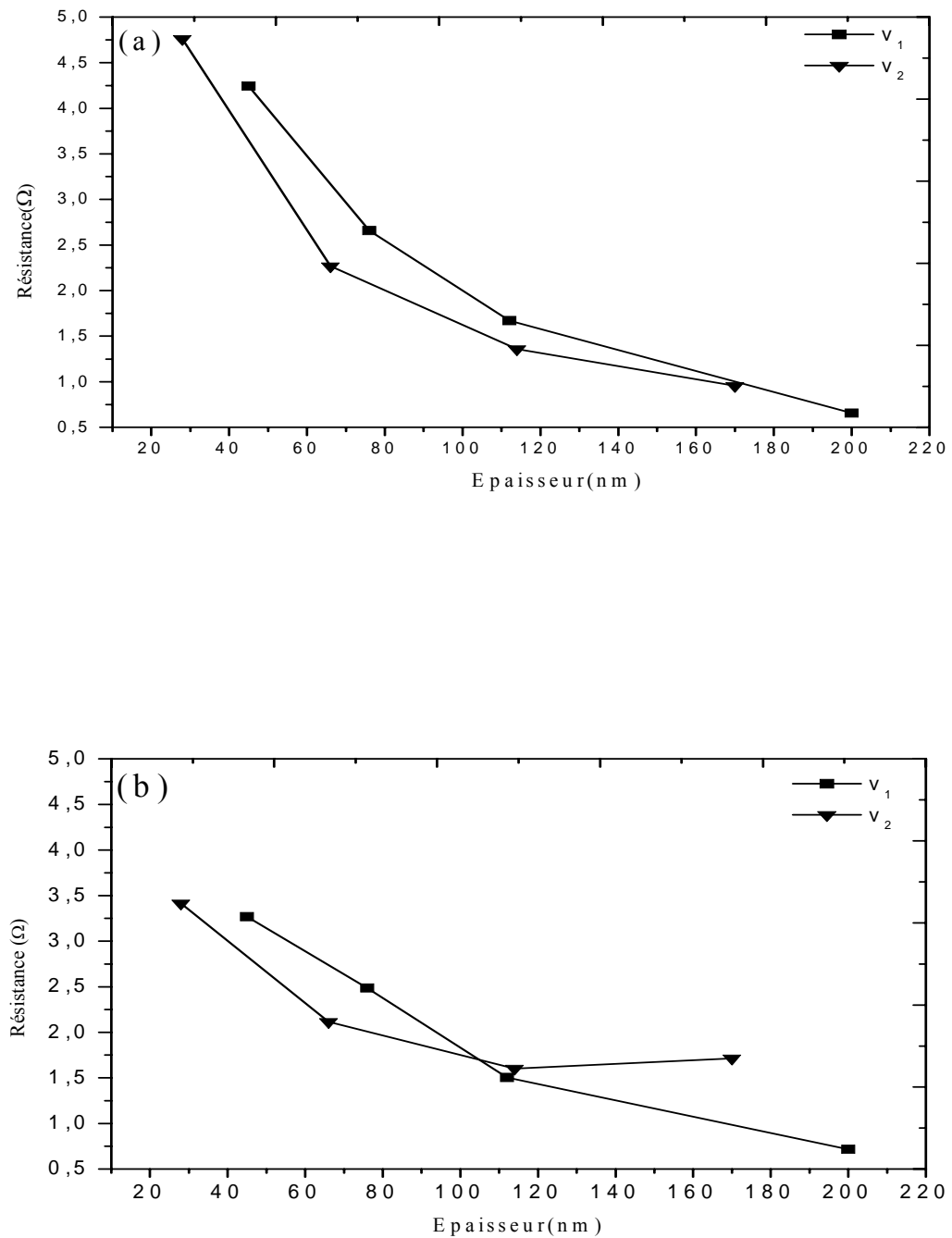


FIG III.2. Variation de la résistance carrée en fonction de l'épaisseur pour:

(a) Ni/verre.

(b) Ni/Si (100).

IV.2. Etude de la résistivité en fonction de l'épaisseur et de la vitesse de dépôt

L'étude de la résistivité électrique en fonction de l'épaisseur des couches minces de Ni/verre et Ni/Si a été faite par beaucoup d'auteurs, cependant il y a certain désaccord entre les valeurs expérimentales et la comparaison aux modèles théoriques de Mayadas-Shatzkes et de Fuchs-sondheimer. Le changement de la résistivité peut être lié au comportement des électrons de conduction en présence de défauts de points: la structure cristallographique (les joints de grains et la texture), la morphologie (rugosité de la surface) et la formation des îlots (qui dépend de la vitesse de dépôt). En général dans les métaux, en couches minces, la résistivité électrique est plus élevée que la résistivité d'un métal massif, c'est un résultat de l'effet de la taille (surface), joints de grains et de concentration des défauts dans les couches minces.

IV.2.1. Système Ni/verre

La variation de la résistivité avec l'épaisseur de nos couches minces de Ni, déposées sur les substrats de verre, est montrée dans la figure (III.3.a). Ces valeurs de la résistivité sont calculées à partir de l'équation (III.2). Dans cette étude la variation de la résistivité dépend non seulement de l'épaisseur mais aussi de la vitesse de dépôt.

Pour les échantillons élaborés à la vitesse v_1 , la résistivité est pratiquement constante pour les épaisseurs inférieures à 110nm ($\rho \approx 20 \mu\Omega \cdot \text{cm}$) puis décroît pour $t=200\text{nm}$ (jusqu'à $\rho=13.11 \mu\Omega \cdot \text{cm}$). Pour les échantillons préparés à v_2 et en tenant compte des erreurs de mesure, on note que ρ est constant pour toute la gamme d'épaisseurs (28, 66, 114 et 170nm). On remarque aussi que $\rho(v_1)$ est supérieure à $\rho(v_2)$ pour tous les échantillons sauf celui avec $t=200\text{nm}$.

En comparaison avec les études précédentes, on peut citer que B. Ghebouli [33,34] a mesuré des résistivités nettement supérieures à celles de Ni massif, pour des couches de Ni/verre déposées par pulvérisation cathodique dc. Il reporte que la plus petite valeur de ρ est $100 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ pour une épaisseur de $t=317\text{nm}$ et une vitesse moyenne de dépôt $v=11\text{nm}/\text{min}$.

Il serait bon de mentionner aussi que M.A Angadi et al. [48] ont fait une étude des propriétés électriques des couches minces de Ni/verre préparées par évaporation sous vide, avec une vitesse de dépôt $v=18\text{nm}/\text{min}$; ils trouvent une résistivité $\rho=19 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ pour une épaisseur $t=40\text{nm}$ et $\rho=16 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ pour une épaisseur $t=25\text{nm}$, ce qui correspond dans nos

résultats à $19.1 \mu\Omega.cm$ pour un épaisseur de 45nm et $13.32 \mu\Omega.cm$ pour une épaisseur de 28nm. On observe qu'il y a un bon accord avec nos résultats.

Notons aussi que J.B.Yi et al. [17] montrent, pour les couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre préparées par pulvérisation magnétron, avec une vitesse de dépôt relativement grande $v=30nm/min$, que la résistivité électrique varie d'une valeur maximale $\rho=35\mu\Omega.cm$ pour une épaisseur $t=15nm$ à une valeur minimale $\rho=10 \mu\Omega.cm$ pour une épaisseur $t=400nm$, ces valeurs sont plus grandes que la valeur du Ni massif.

IV.2.2. Système de Ni/Si (100)

La variation de la résistivité de nos couches minces de Ni déposées sur des substrats de Si (100) est montrée sur la figure (III.3.b).

Pour la série déposée à la vitesse v_1 , on observe une légère augmentation de la résistivité électrique ρ de la valeur $\rho=14.71\mu\Omega.cm$ ($t=45nm$) à $\rho=18.89\mu\Omega.cm$ ($t=76nm$) ensuite une diminution à $\rho=14.31 \mu\Omega.cm$ ($t=200nm$).

Pour la deuxième série (vitesse v_2) on remarque une augmentation monotone de la résistivité électrique des couches minces de Ni avec l'épaisseur. On note que la résistivité maximale $\rho=29.12 \mp 2.37 \mu\Omega.cm$ correspond à une épaisseur $t=170 nm$, alors que la résistivité minimale $\rho=9.58 \mp 2.33 \mu\Omega.cm$, correspond à une épaisseur de 28nm.

Sur le graphe de la figure (III.3.b), on observe aussi que $\rho(v_1)$ est supérieure à $\rho(v_2)$ dans la gamme des faibles épaisseurs $t < 112nm$ par contre $\rho(v_1)$ est inférieure à $\rho(v_2)$ pour $t > 112nm$. Les valeurs de la résistivité de nos couches minces dans les deux systèmes sont supérieures à la résistivité de Ni massif ($6.8\mu\Omega.cm$) [44]; ceci est attribué à la densité élevée de défaut dans les couches minces [44].

En comparant les valeurs de la résistivité en fonction de la vitesse de dépôt, on conclut qu'il y a un effet important de la vitesse de dépôt sur le comportement électrique dans les couches minces. Dans notre cas, on remarque une augmentation de la résistivité avec la diminution de la vitesse de dépôt notamment pour les faibles épaisseurs. Ceci a été observé aussi par M. A. Angadi et al. [49], ils suggèrent que dans les couches minces déposées avec une grande vitesse de dépôt la densité de défaut est beaucoup plus faible que celle des couches déposées avec une petite vitesse. Des études ont montré aussi que pour les grandes vitesses de dépôt, il y a une formation d'îlots [44], ces îlots croissent probablement sous forme de colonnes parallèles, séparées par des petites lacunes qui sont aisément accessibles aux molécules de gaz (impuretés O) [45].

D'autre part une deuxième comparaison à faire est entre les deux systèmes Ni/verre et Ni/Si (100) mais pour une valeur donnée de la vitesse de dépôt.

Pour les faibles épaisseurs ($t < 112\text{nm}$), la résistivité du système Ni/verre est supérieure à celle de système de Ni/Si (100). Par contre pour les grandes épaisseurs ($t > 112\text{nm}$), la résistivité de système de Ni/verre devient inférieure à celle de système de Ni/Si (100). Ce comportement de la résistivité peut être lié à la contribution de l'effet supplémentaire des électrons de conduction dans la couche semi-conductrice. Il peut aussi être dû à l'effet du substrat, par exemple la rugosité de la surface du substrat conduit à la rugosité de la surface de la couche après le dépôt notamment pour les faibles épaisseurs. Il a été aussi suggéré que le processus de croissance des couches minces de Ni déposées sur des substrats amorphes avec des vitesses élevées, provoque une formation d'une couche amorphe très mince de Ni à l'interface et peut être aussi la présence d'une grande quantité de structure désordonnée [17], ce qui conduit à une augmentation de ρ .

Il a été noté aussi que l'instabilité de la vitesse de dépôt provoque la rugosité de la surface des couches minces. Cette rugosité de la surface conduit à une distribution non uniforme du matériau déposé sur le substrat [43]. De ce fait dans les couches minces on ne peut pas voir exactement la morphologie de la couche, car l'épaisseur des couches minces change autour d'une valeur moyenne, par conséquent les régions de plus faible épaisseur ont une grande contribution dans la résistivité [50].

Si on fait une comparaison de nos résultats avec les résultats trouvés par J. W. De Veries et al. [51] qui ont trouvé que pour des couches minces de Ni déposées par évaporation sous vide sur des substrats de Si, la résistivité varie entre $\rho = 20\mu\Omega.\text{cm}$ et $\rho = 12\mu\Omega.\text{cm}$, pour une gamme d'épaisseur comprise entre $t = 10\text{nm}$ et $t = 80\text{nm}$, on remarque que ses résultats sont comparable aux résultats de ce travail.

Pour éviter au maximum les effets de température sur la résistivité, J.W. De Vries [52] rapporté une résistivité résiduelle égale $3.27\mu\Omega\text{ cm}$ pour des couches minces de Ni sur Si à température $T = 0\text{ }^\circ\text{K}$.

Notons finalement que pour les deux systèmes et les deux vitesses de dépôt, on n'observe pas une décroissance monotone de ρ en fonction de l'épaisseur; ceci indique que la diffusion à la surface n'est pas un facteur important à l'origine de la résistivité électrique dans cette gamme d'épaisseur. Pour déterminer les autres phénomènes qui influent sur ρ , par exemple, la diffusion par les joints de grains, on a fait une étude en fonction de la taille des grains; ceci sera développé dans la section suivante.

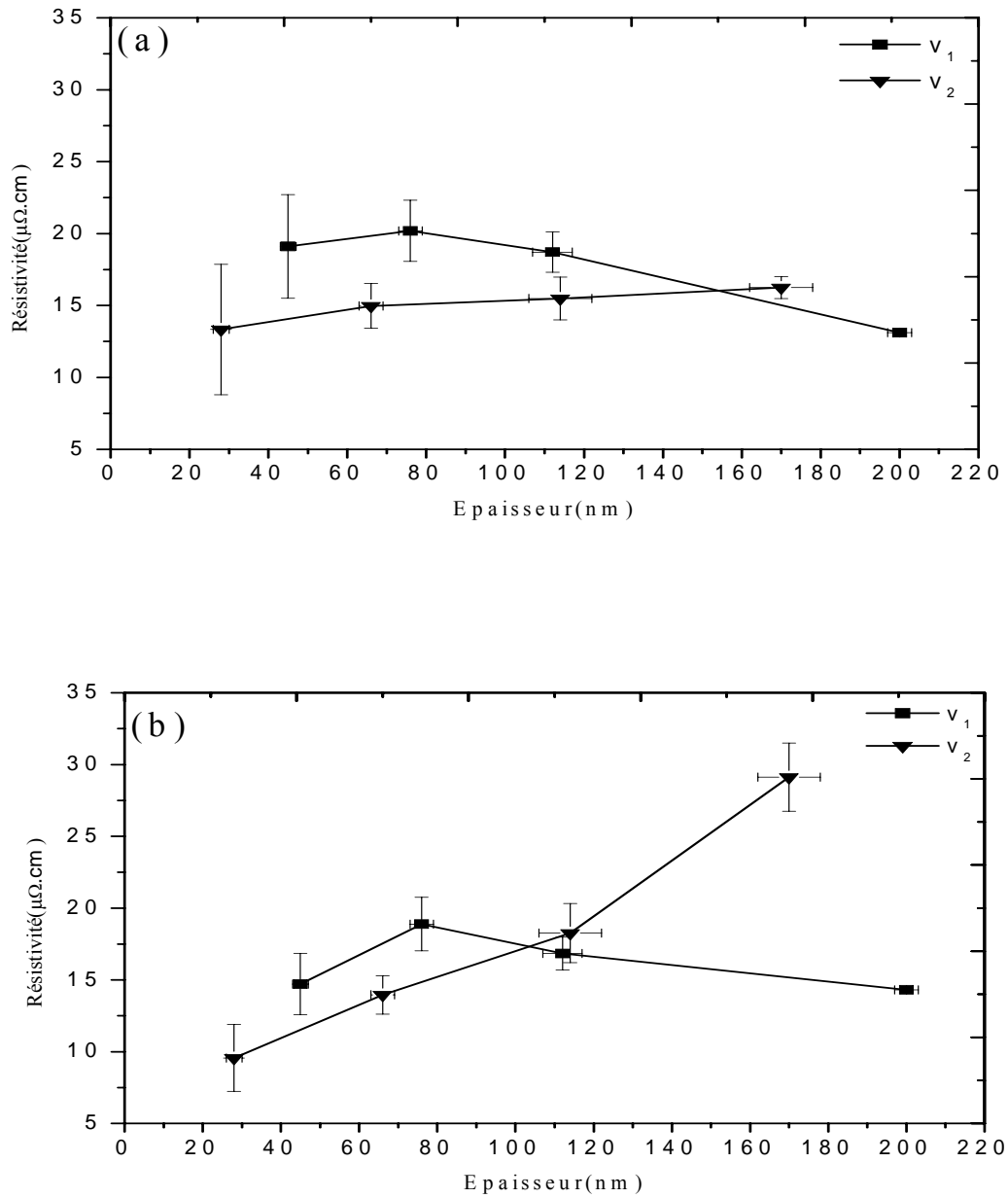


FIG III.3. La variation de la résistivité en fonction de l'épaisseur pour :

(a) Ni/verre.

(b) Ni/Si (100).

IV.3. Étude de la résistance en fonction de la taille moyenne des grains

IV.3.1. Système de Ni/verre

La variation de la résistance carrée en fonction de la taille moyenne des grains pour les couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre est montrée sur la figure (III.4.a.). Pour la série de faible vitesse de dépôt on remarque une diminution monotone de la résistance carrée avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. Une valeur maximale de la résistance $R_{\square} = 4.2445 \Omega$ est notée pour une taille $D = 54 \text{ \AA}$ ($t = 45 \text{ nm}$), alors que la résistance minimale $R_{\square} = 0.665 \Omega$ correspond à une taille $D = 140 \text{ \AA}$ ($t = 200 \text{ nm}$).

Pour la série des grandes vitesses de dépôt, on note une augmentation jusqu'à une valeur maximale de la résistance carrée $R_{\square} = 4.75 \Omega$ pour une taille $D = 129 \text{ \AA}$ à $t = 28 \text{ nm}$. Ensuite on remarque une diminution de la résistance avec l'augmentation de la taille des grains.

IV.3.2. Système de Ni/Si (100)

La variation de la résistance carrée en fonction de la taille moyenne des grains est montrée sur la figure (III.4.b). Pour la série des faibles vitesses de dépôt, on remarque une diminution monotone de la résistance carrée avec la taille moyenne des grains pour tous les échantillons de la série. La valeur maximale $R_{\square} = 3.269 \Omega$ correspond à une taille moyenne $D = 96 \text{ \AA}$ ($t = 45 \text{ nm}$), alors que la valeur minimale $R_{\square} = 0.715 \Omega$ est notée pour une taille moyenne $D = 147 \text{ \AA}$ ($t = 200 \text{ nm}$).

Pour la série des grandes vitesses de dépôt, on remarque un pic est apparie à $R_{\square} = 3.42 \Omega$ pour une taille moyenne $D = 91 \text{ \AA}$ et à $R_{\square} = 4.75 \Omega$ pour $D = 129 \text{ \AA}$ dans le système de Ni/Si (100) et de Ni/verre respectivement, ce pic peut être lie à une légère oxydation de l'échantillon qui présente la plus faible épaisseur $t = 28 \text{ nm}$.

IV.4. Étude de la résistivité en fonction de la taille moyenne des grains

IV.4.1. Système de Ni/verre

La variation de la résistivité en fonction de la taille moyenne des grains pour des couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre est montrée sur la Fig.III.5.a. Pour la série évaporée avec v_1 , on remarque que la résistivité est pratiquement constante pour les deux premiers échantillons ($D < 75 \text{ \AA}$), ensuite diminue d'une façon monotone de $\rho = 18.19 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ à $\rho = 13.32 \mu\Omega \cdot \text{cm}$ lorsque D augmente de $D = 75 \text{ \AA}$ à $D = 140 \text{ \AA}$. Cette diminution est liée au mécanisme de diffusion aux joints de grains.

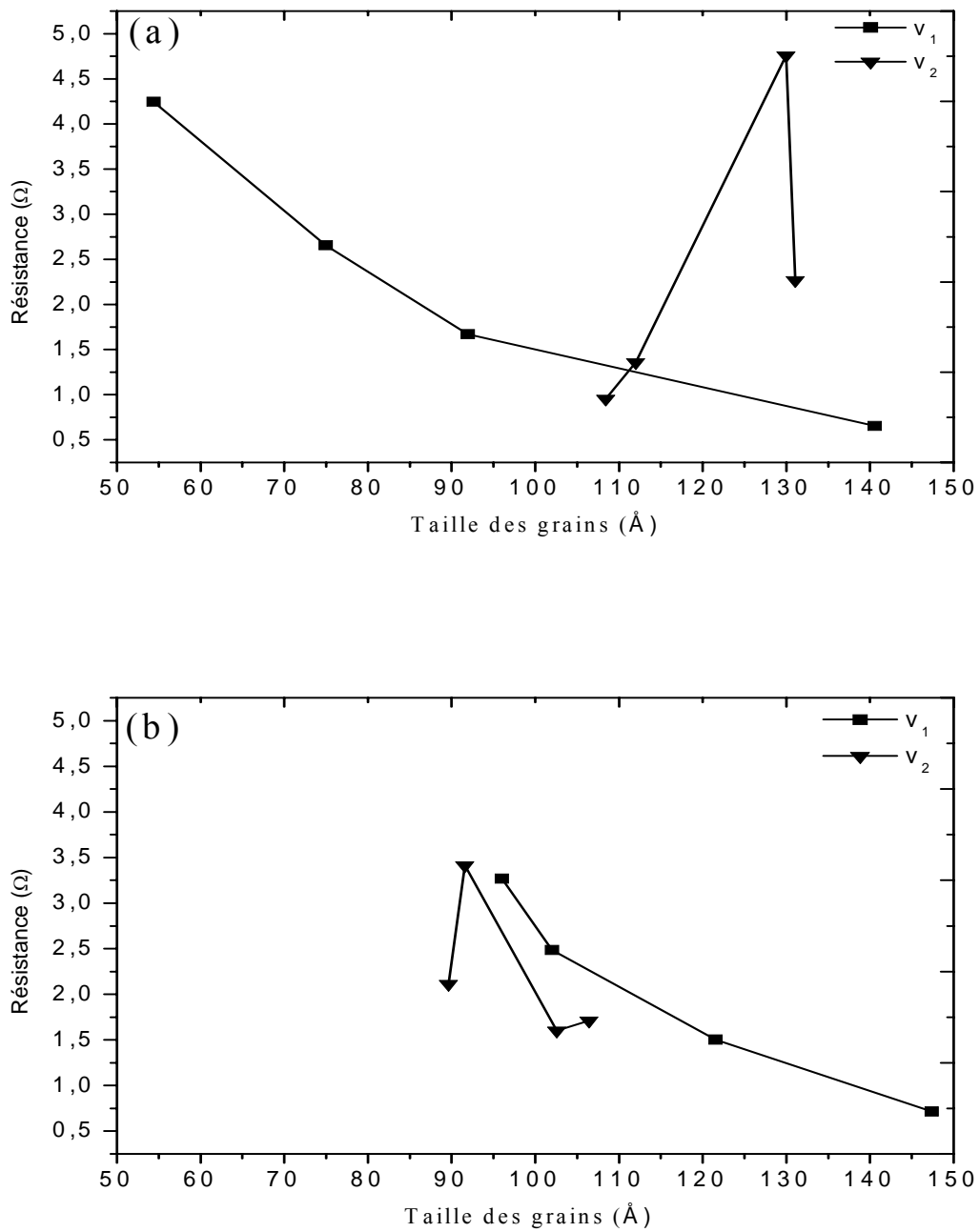


Fig. III.4. Variation de la résistance carrée en fonction de la taille des grains pour:

(a) Ni/Verre.

(b) Ni/Si (100).

Pour la série des grandes vitesses de dépôt une diminution monotone de la résistivité ρ avec l'augmentation de la taille moyenne des grains, ce qui indique la dominance du mécanisme de diffusion aux joints de grains.

IV.4.2. Système de Ni/Si (100)

Le comportement de la résistivité en fonction de la taille moyenne des grains pour le système de Ni/Si est montré sur la figure (III.5.b).

Pour la série des faibles vitesses de dépôt, on note une augmentation de la résistivité en fonction de l'augmentation de la taille des grains ensuite une diminution monotone, cette diminution est liée au mécanisme de diffusion aux joints de grains qui est peut être dominant dans cette gamme d'épaisseur.

Cependant un pic apparaît à $\rho=16,8336$ pour $D=102\text{\AA}$ ($t=114\text{nm}$) $\mu\Omega.\text{cm}$, notons que pour cet échantillon, l'erreur sur l'épaisseur est égale à 8nm.

Pour la série de vitesse v_2 , on remarque une diminution de la résistivité en fonction de l'augmentation de D , ensuite une augmentation monotone. On observe une valeur maximale $\rho=29.12\mu\Omega.\text{cm}$ pour $D=106\text{\AA}$ ($t=170\text{nm}$). Cette augmentation peut être liée à l'effet de l'erreur sur l'épaisseur des deux échantillons présentant cette augmentation ($\Delta t=\mp 8\text{nm}$), ou à l'effet de la taille [44], telle que si la taille moyenne des grains d'une couche métallique devient comparable ou inférieure au libre parcours moyen (lpm) de l'électron de conduction (EC), des limites géométriques seront imposées à son mouvement par les joints de grains. Dans cette série la taille moyenne des grains est inférieure au lpm ce qui permet d'augmenter les chocs des EC, donc l'augmentation de la résistivité.

En général la taille moyenne des grains est inversement proportionnelle au nombre de joints de grains de sorte que plus que la taille moyenne des grains augmente plus le nombre de joints de grains diminue, donc la diffusion des électrons de conduction diminue (le nombre de choc diminue), la résistivité électrique logiquement diminue.

Pour faire une étude plus poussée, sur les différents facteurs (diffusion à la surface et diffusion aux joints de grains) qui contribuent à la résistivité électrique, nous allons appliquer deux modèles théoriques à nos résultats expérimentaux.

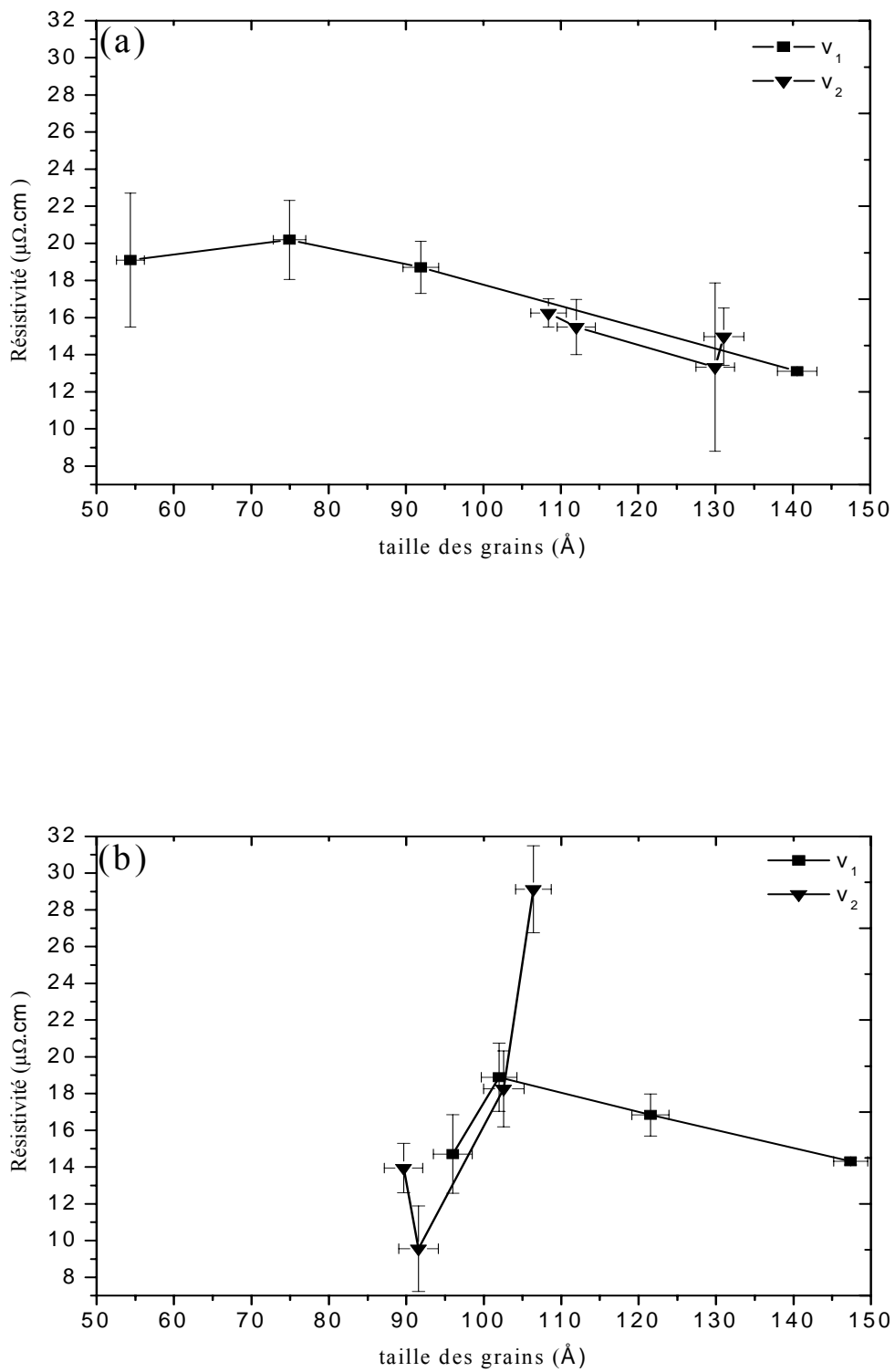


Fig.

III.5. Variation de la résistivité carrée en fonction de la taille des grains pour:

(a) Ni/verre.

(b) Ni/Si (100).

V. Effet de la taille sur les propriétés électriques

Dans un matériau massif, la résistivité électrique est définie comme l'ensemble des interactions et des collisions des électrons de conduction avec les oscillations de réseau (phonons), les impuretés et les défauts (lacune, dislocation ...). Un paramètre important qui permet d'expliquer certaines déviations des résultats expérimentaux est le libre parcours moyen qui est une mesure de la distance moyenne parcourue par l'électron entre deux collisions successives. La limitation du libre parcours des électrons de conduction entraîne une diminution du temps de relaxation (le libre parcours moyen diminue si le temps de relaxation diminue). Rappelons que lorsque l'épaisseur d'une couche métallique (ou la taille de ces grains) devient comparable avec le libre parcours moyen de l'électron de conduction, des limites géométriques seront imposées à son mouvement par les bords supérieur et inférieur du film (ou par les joints de grains); les effets physiques surgissant de cette limitation géométrique sont dits : les effets du "libre parcours moyen" ou les effets de la "taille" [44].

Au cours de ces dernières années, des modèles semi classiques plus perfectionnés ont été développés pour expliquer les résultats expérimentaux des propriétés électriques des couches minces métalliques. En général, les études précédentes montrent que le comportement de la résistivité électrique des couches minces ne dépend pas seulement du mécanisme de diffusion des électrons par la surface (modèle Fuchs-Sondheimer), mais aussi du mécanisme de diffusion aux joints de grains (modèle Mayadas-Shatzkes) [53]. Nous citerons d'autres modèles qui sont développés à partir de celui de F.S et M.S : Celui de Cottey [54] où la couche mince est identifiée à un matériau massif contenant un réseau de plans parallèles distants de l'épaisseur du film. Celui de Dimmich-Warkusz [55] (DW) où les surfaces du film mince sont planes et parallèles, et les coefficients de réflexion spéculaire sont différents sur chacune des deux surfaces du film mince. Finalement celui de Tellier [43] qui fait regrouper les effets de la diffusion à la surface et aux joints de grains. Dans ce chapitre on essayera de baser notre étude sur les modèles les plus adaptés à nos résultats expérimentaux.

V.1. Diffusion des électrons à la surface

Nous essayerons ici de voir la concordance de nos résultats expérimentaux avec les prédictions du modèle de Fuchs-Sondheimer qui est basé sur les hypothèses suivantes :

-Les films sont continus avec des surfaces lisses et parallèles.

-Lors des collisions avec les surfaces libres, les électrons ont une probabilité p d'être réfléchis spéculairement (i.e. la composante de la vitesse d'un électron de conduction perpendiculaire à la surface change de signe après la réflexion) et une probabilité $(1-p)$ d'être diffusées de manière isotrope.

Le calcul de la résistivité d'un film métallique suivant ce modèle est donnée par la relation suivante : [44]

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = \left[1 - \frac{3}{2} \frac{\lambda}{t} (1-p) \int_1^{\infty} \left(\frac{1}{a^3} - \frac{1}{a^5} \right) \frac{1 - e^{-a t / \lambda}}{1 - p \cdot e^{-a t / \lambda}} da \right]^{-1} \quad (\text{III.6}).$$

où:

ρ_f : la résistivité du film.

ρ_0 : la résistivité électrique du matériau massif (dans notre cas, Ni massif).

λ : le libre parcours moyen de l'électron de conduction dans le matériau massif; le libre parcours moyen de Ni à la température ambiante est $\lambda = 11 \text{ nm}$ [44].

a : une variable d'intégration.

p : un paramètre complètement phénoménologique; p est la probabilité qu'un électron soit réfléchi à la surface d'un film mince de façon spéculaire et prend des valeurs de 0 à 1. p est une quantité mesurable [53].

Pour $p=0$, on a une diffusion totale des électrons par la surface, (le phénomène dépend de la rugosité de la surface), ce donne une valeur maximale de ρ_f [46,54].

Pour $p=1$, la diffusion spéculaire des électrons de conduction dans laquelle on obtient que l'angle incidence soit égale à l'angle de réflexion pour des surfaces plans et rigides [46,54].

Nous avons supposé que les deux faces de la couche sont équivalentes c -a - d le même paramètre de spécularité, d'où l'équation (III.6) peut prendre la forme simplifiée suivante [44]:

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = 1 + \frac{3}{8} \frac{\lambda}{t} (1-p) \quad \text{pour } t > \lambda \quad (\text{III.7}).$$

et

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = \frac{3}{4} \frac{1-p}{1+p} \frac{\lambda/t}{\ln(\lambda/t) + 0.4228} \quad \text{pour } t \ll \lambda \quad (\text{III.8}).$$

Les épaisseurs de nos couches minces sont supérieures au libre parcours moyen. Ceci correspond à la condition de l'équation (III.8) qu'on peut mettre sous la forme suivante :

$$\rho_f \cdot t = \rho_0 t + \frac{3}{8} \lambda \rho_0 (1-p) \quad (\text{III.9}).$$

A partir de cette équation, on observe qu'il y a une dépendance linéaire entre $\rho_f \cdot t$ et t avec $0 \leq p \leq 1$, si les résistivités électriques de nos couches sont régies par le mécanisme de la diffusion par la surface. On montre sur les figures (III.6.a et b) et (III.7.a et b) les points expérimentaux et les fits linéaires correspondants aux deux systèmes Ni/verre et Ni/Si successivement (on a utilisé l'origine 7.5 pour tracer les fits). On remarque que mise à part Fig.III.6.b, le fit n'est pas bon (Fig.III.6.a pour Ni/verre et fig.III.7.b pour Ni/Si (100)), avec la résistivité du matériau massif ρ_0 est la pente de ce fit (droite).

Dans le système de Ni/verre (Fig.III.6), on obtient pour la série de vitesse v_2 une droite avec une pente $\rho_0 = 17.34 \mu\Omega \cdot \text{cm}$. Par contre dans le système de Ni/Si (100) (Fig.III.7), on remarque aussi une droite de pente $\rho_0 = 13.20 \mu\Omega \cdot \text{cm}$, mais pour la série de vitesse v_1 .

Néanmoins, pour les deux systèmes, on trouve, à partir des fits (Fig.III.6.b et Fig.III.7.a), des valeurs de p supérieures à 1 (le p est calculé à partir de l'intersection de la droite de fit avec l'axe des ordonnées). Par conséquent le modèle F-S ne s'applique pas à nos résultats expérimentaux, ce qui indique que la diffusion à la surface n'est pas le facteur dominant dans la résistivité électrique dans la gamme d'épaisseur étudiée. Ceci confirme ce qu'on a déduit précédemment (section V) lorsqu'on a noté que ρ ne diminue pas de façon monotone avec l'épaisseur.

En conséquence les valeurs de la résistivité qu'on a trouvées sont très supérieures à celles de Ni massif, ce qui peut être liée à l'effet des différentes types de contributions dans la résistivité pour les couches minces. Rappelons qu'on peut donner ρ_0 comme suit [43]:

$$\rho_0 = \rho_t + \rho_i + \rho_d + \rho_m$$

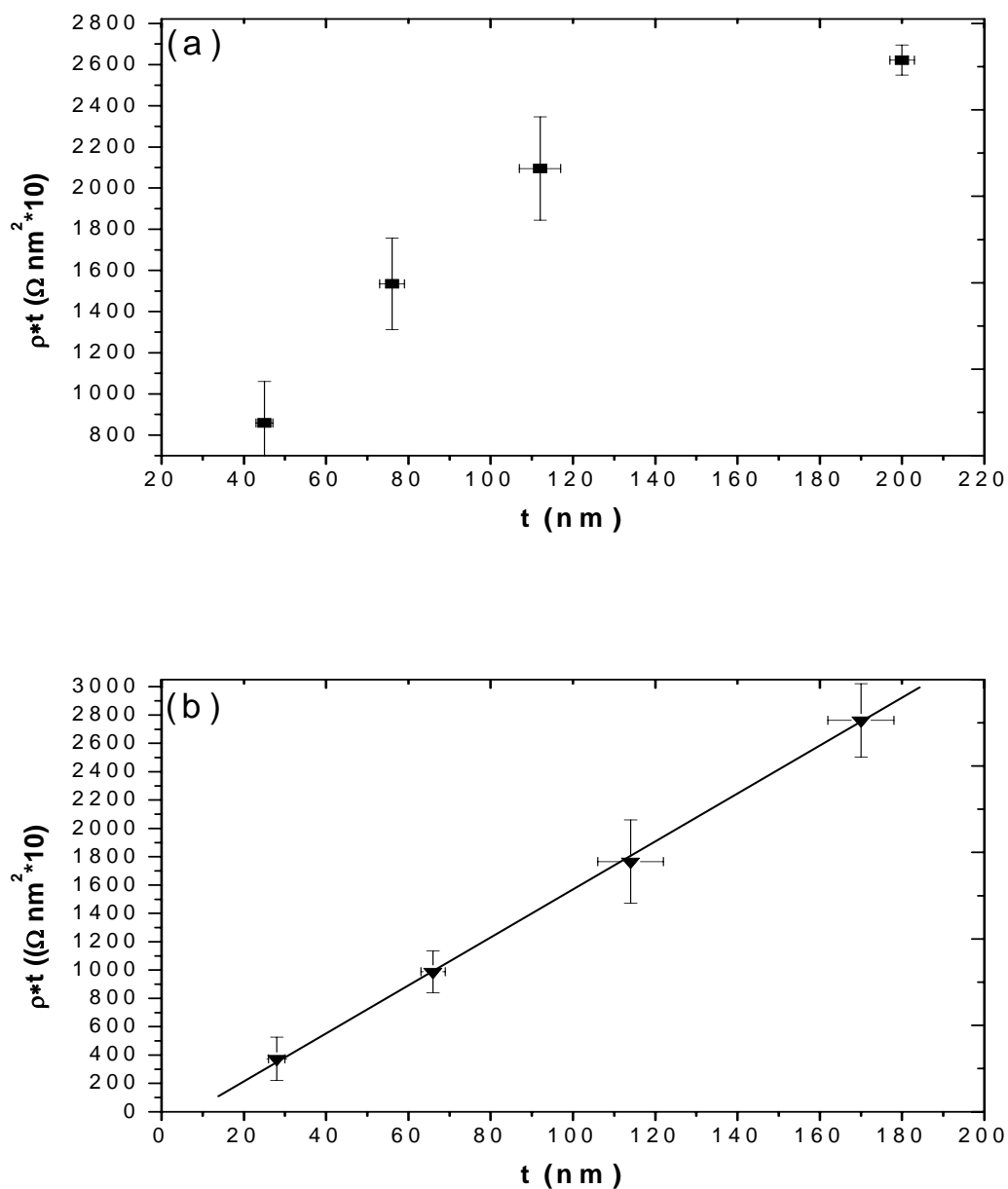


FIG III.6: Comparaison entre valeurs expérimentales et les prédictions de l'équation (III.10) dans le système de Ni/verre pour:

(a) pour la vitesse v_1 .

(b) pour la vitesse v_2 .

Notons que pour les couches minces de Ni déposées par IBS, et à l'aide de modèle de Tellier qui tient en compte les deux effets de diffusion par la surface et la par les joints de grains, A. I. Maarroof et al.[43] rapportent une valeur de la résistivité du corps massif $\rho_0=14.3\mu\Omega.cm$ à température ambiante dans laquelle $\rho_t= 6.84 \mu\Omega.cm$ et le reste de ρ_0 est défini comme les contributions des défauts, des impuretés et du désordre magnétique. L'effet de la diffusion aux joints de grains est présenté dans le modèle de Mayadas et Shatzkes qu'on exposera dans la section suivante.

V.2.Diffusion des électrons aux joints de grains

Mayadas et Shatzkes [53] proposent un modèle de conduction qui tient compte de la diffusion des électrons de conduction par les joints de grain présents dans les couches polycristallines.

La résistivité d'une couche métallique suivant ce modèle est donnée par [53]:

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = \left[1 - \frac{3}{2}\alpha + 3\alpha^2 - 3\alpha^3 \ln\left(1 + \frac{1}{\alpha}\right) \right]^{-1} \quad (\text{III-10}).$$

avec:

$$\alpha = \frac{\lambda R}{D(1-R)} \quad (\text{III-11}).$$

où

ρ_f est la résistivité électrique de la couche.

ρ_0 est la résistivité électrique du matériau massif (le Ni massif).

D est la taille moyenne des grains dans la couche.

R est le coefficient de réflexion aux joints de grains.

λ est le libre parcours moyen de l'électron de conduction du matériau massif.

A partir des valeurs de la taille moyenne des grains trouvées dans le chapitre (II) (propriétés structurales) on peut calculer le coefficient R de chaque série d'échantillon.

Dans la série déposée à la vitesse v_1 , le coefficient de réflexion R varie entre 0.37 et 0.49 pour le système de Ni/Verre et entre 0.40 et 0.52 pour le système de Ni/Si (100) (voir table III.1). Dans la série déposée à la vitesse v_2 , on remarque que le coefficient de réflexion est compris entre 0.43 et 0.48 pour le système de Ni/verre (R est pratiquement constant, tenant compte de l'incertitude avec une valeur $R=0.45\pm 0.03$) et augmente de

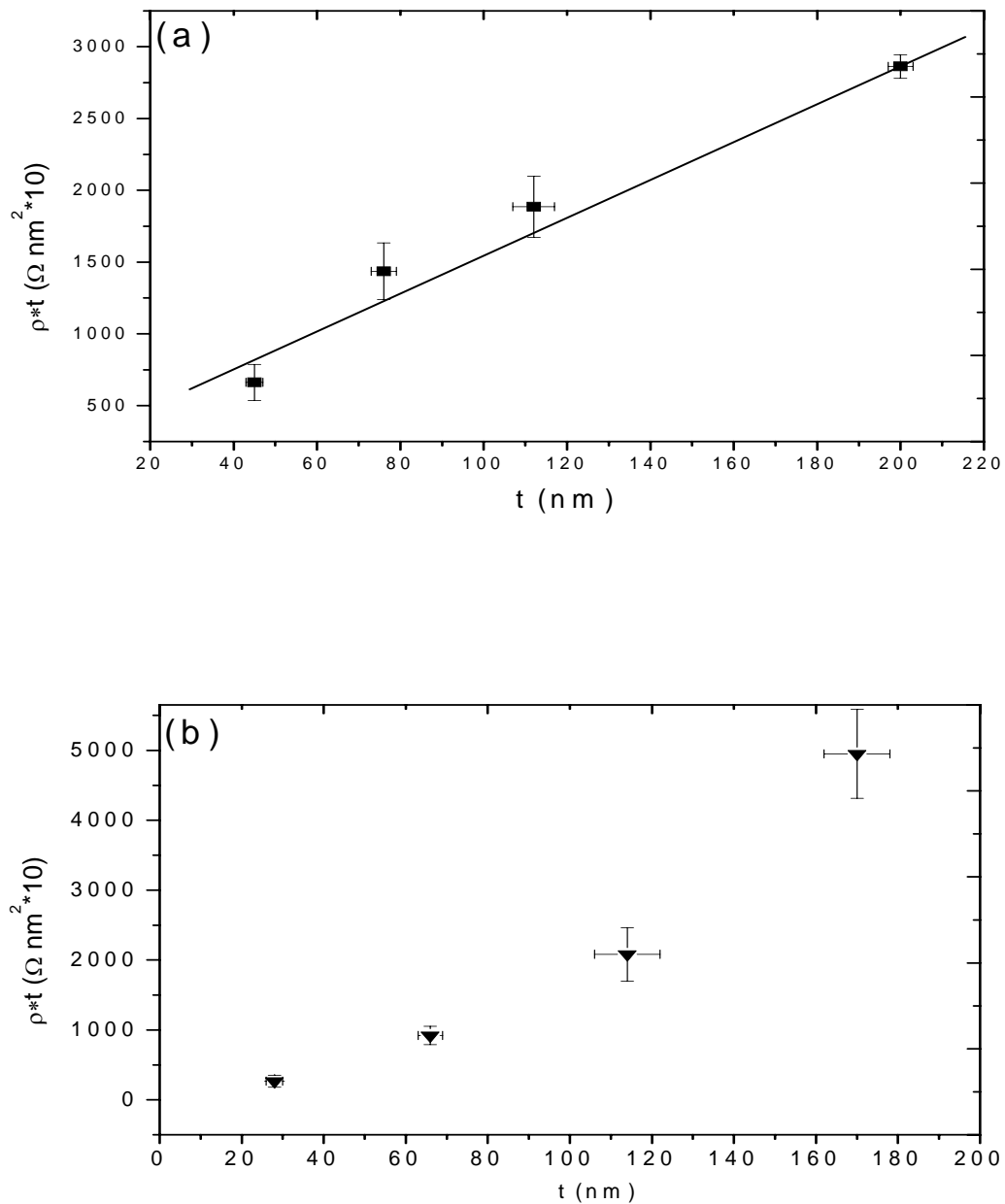


Fig.III.7: comparaison entre valeurs expérimentales et les prédictions de l'équation (III.10) dans le système de Ni/Si pour:

- (a) pour la vitesse v_1 .
- (b) pour la vitesse v_2 .

façon monotone avec l'épaisseur, tel que $0.18 \leq R \leq 0.67$ (voir table III.1) pour le système Ni/Si.

A titre de comparaison, notons que les valeurs du coefficient R trouvées par V. Stary et al. [32] pour les couches minces de Ni déposées par évaporation par faisceau électronique sur des substrats de mica et pour une épaisseur $t = 4\text{nm}$, sont comprises entre 0.3 et 0.7, après un traitement thermique. Notons aussi que M. A. Angadi et al [48] ont mesuré un coefficient de réflexion constant $R = 0.18$ pour les couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre dans une gamme d'épaisseur $25 < t < 70\text{nm}$.

C. Nacereddine et al [28,56] ont trouvé des valeurs du coefficient de réflexion R comprises entre 0.45 et 0.75, pour des couches minces de Ni/verre préparées par évaporation sous vide, pour des épaisseurs $31 \leq t \leq 165\text{ nm}$, ces valeurs de R sont plus grandes que nos valeurs.

Certaines études montrent que le coefficient de réflexion diminue de façon monotone avec l'épaisseur, ce qui n'est pas le cas pour les résultats de ce travail.

Cette différence peut être liée à plusieurs facteurs:

- changement des propriétés chimiques des joints de grains (ie : concentration des impuretés – oxygène incorporé dans les joints de grains) ou des propriétés géométriques (ie : le désordre de la matière entre les grains)
- la concentration des défauts ponctuels et l'influence des impuretés durant la préparation, ce qui peut parfois conduire à une couche amorphe.

Table III.1. Epaisseur (t), taille des grains (D), résistivité électrique (ρ) et coefficient de réflexion (R) pour les deux systèmes (Ni/verre et Ni/Si) et les deux vitesses de dépôt (13 et 22nm/min).

Vitesse (nm/min)	Epaisseur t (nm)	Ni/verre			Ni/Si (100)		
		D (Å)	ρ ($\mu\Omega.cm$)	R	D (Å)	ρ ($\mu\Omega.cm$)	R
13	45	54	19,10	0.37	96	14,71	0.40
	76	74	20,19	0.47	102	18,88	0.52
	112	91	18,71	0.49	121	16,83	0.51
	200	140	13,11	0.44	147	14,31	0.49
22	28	129	13,33	0.43	91	9,56	0.18
	66	131	14,97	0.48	89	13,95	0.36
	114	112	15,48	0.46	103	18,25	0.51
	170	108	16,25	0.47	106	29,12	0.67

VI. Conclusion

Dans ce chapitre on a étudié les propriétés électriques des couches minces de Ni déposées par évaporation sur des substrats de verre et de Si (100). On a fait une étude de la résistance carrée et de la résistivité en fonction de l'épaisseur, de la vitesse de dépôt et de la taille des grains.

Les résistances carrées de nos couches minces sont toutes finies, donc la continuité de nos couches est assurée. On observe une diminution monotone de la résistance carrée avec l'augmentation de l'épaisseur pour les deux séries de vitesse et dans les deux systèmes. Le même comportement de la résistance carrée est observé en fonction de la taille moyenne des grains pour la série de vitesse v_1 dans les deux systèmes, i.e. R_{\square} diminue de façon monotone avec D. Par contre pour la série de vitesse v_2 , on observe un pic à $t=28\text{nm}$ correspondant à $D=129\text{Å}$ et à $D=91\text{Å}$ pour le système de Ni/verre et Ni/Si (100) respectivement.

Pour le système de Ni/verre, dans la série de vitesse v_1 , la résistivité est pratiquement constante pour les faibles épaisseurs, puis elle diminue de façon monotone avec t . Pour la série préparée à la vitesse v_2 , la résistivité est constante pour toute la gamme d'épaisseurs. Par contre pour le système de Ni/Si (100), on note, pour la série de vitesse v_1 , une légère augmentation de la résistivité avec t ensuite par une diminution; alors que pour la série de vitesse v_2 , une augmentation monotone de la résistivité avec t est observée.

La variation de la résistivité en fonction de la taille moyenne des grains prend différents comportements. Pour le système Ni/verre, dans la série de vitesse v_1 , la résistivité est constante pour les deux premiers échantillons, ensuite il y a une diminution monotone avec t . Pour la série de vitesse v_2 on a noté une diminution monotone de ρ avec t . Pour le système Ni/Si (100), présente une augmentation de ρ avec t ensuite une diminution monotone pour la série de vitesse v_1 et l'inverse a été observé pour la série déposée par la vitesse v_2 .

Les modèles de Fuchs-Sondheimer et de Mayadas-Shatzkes qu'on a utilisés dans cette étude prouvent que l'effet de la diffusion aux joints de grains a une grande contribution dans la résistivité. On note par contre une contribution négligeable de l'effet de diffusion par la surface dans cette gamme d'épaisseur. De plus on a pu évaluer le coefficient de réflexion aux joints de grains R pour nos couches.

Conclusion

générale

CONCLUSION GENERALE

Les travaux qui sont décrits dans cette thèse, ont porté sur l'étude des propriétés structurales et électriques des couches minces de Ni déposées par évaporation sous vide, sur des substrats de Silicium monocristallin texturé (100) et sur des substrats amorphes (lames de verre). Nous avons fait une étude des propriétés de Ni en fonction du substrat, de l'épaisseur et de la vitesse de dépôt. L'objectif principal de ce travail est d'étudier plusieurs aspects du comportement de Ni sur Si (100). Nous avons essayé de faire une corrélation entre les propriétés structurales et électriques des couches minces de Ni.

Nous avons introduit dans le premier chapitre les différents paramètres expérimentaux qui peuvent influencer la qualité du dépôt. Le processus de nettoyage des substrats de verre est décrit. Nous avons présenté la méthode d'évaporation, son principe, le dispositif expérimental, ses avantages et ses inconvénients. L'utilisation d'une série de pompes (diffusion d'huile et palette) a permis d'atteindre un vide de l'ordre 10^{-7} mbar. On a élaboré dix huit échantillons de Ni sur des substrats de verre et de Si. Quatre échantillons de chaque système (Ni/verre et Ni/Si (100)) d'épaisseurs 45, 76, 112 et 200nm ont été préparés à la vitesse $v_1=13\text{nm/min}$, alors que quatre autres avec des épaisseurs 28, 66, 114 et 170nm ont été déposés à la vitesse $v_2=22\text{nm/min}$.

Dans le deuxième chapitre, nous avons présenté les méthodes de caractérisation utilisées dans l'étude des propriétés structurales. Nous avons présenté dans la première partie la technique RBS et un résumé de sa théorie fondamentale. On a simulé les spectres de RBS par le logiciel SIMNRA (5, 02). Les résultats de RBS nous ont permis de déterminer les épaisseurs des échantillons. Ces épaisseurs se situent dans la gamme 28-200nm.

Dans la deuxième partie on fait l'étude de la structure cristallographique par la technique de la diffraction des rayons X (DRX). Les résultats obtenues par cette dernière méthode montrent la même texture suivant la direction [111] pour tous les échantillons, indépendamment du substrat (verre, Si), de la vitesse de dépôt (v_1 , v_2) et de l'épaisseur (t).

Dans le système Ni/verre, les échantillons déposés à la vitesse v_1 ont un paramètre de maille a supérieur à celui du massif (a_{massif}) pour les faibles épaisseurs mais diminue jusqu'à a_{massif} lorsque t augmente, i.e. il y a relaxation des contraintes avec l'augmentation de t . Les échantillons de Ni/verre déposés à la vitesse v_2 ne sont pratiquement soumis à aucune contrainte ($a \approx a_{\text{massif}}$). Dans le système Ni/Si, a est supérieur à a_{massif} pour les deux vitesses et toute les épaisseurs, i.e. il y a plus de contraintes dans le Ni/Si que dans le Ni/verre et ces contraintes restent élevées pour Ni/Si même lorsque t augmente. Pour les échantillons déposés à la vitesse v_1 , on observe une augmentation monotone de la taille des grains D avec l'épaisseur t pour les deux systèmes avec $D(\text{Ni/Si})$ supérieures à $D(\text{Ni/verre})$. Pour les échantillons déposés à la vitesse v_2 , D ne varie pas de façon appréciable avec t pour les faibles épaisseurs, on constate néanmoins une légère diminution (augmentation) de D pour Ni/verre (Ni/Si) pour les grandes épaisseurs et $D(\text{Ni/verre})$ supérieures à $D(\text{Ni/Si})$. Finalement, on note que $D(v_1)$ est supérieures à $D(v_2)$ pour le système Ni/Si (100) et l'inverse pour le système Ni/verre (excepté pour l'échantillon avec $t=200\text{nm}$).

Le troisième chapitre est consacré à l'étude des propriétés électriques de nos couches en fonction de l'épaisseur, de la vitesse de dépôt et de la taille moyenne des grains. Les résistances carrées R_{\square} de toutes nos couches de Ni sont finies, ce qui confirme la continuité de nos couches minces. On a constaté que R_{\square} diminue de façon monotone avec l'augmentation de l'épaisseur dans les deux systèmes et pour les deux séries (v_1 et v_2). Le même comportement est observé en fonction de la taille moyenne des grains pour la série des faibles vitesses de dépôt, par contre pour la série des grandes vitesses on remarque un pic à $t=28\text{nm}$ dans les deux systèmes.

Dans le système Ni/verre, et pour les échantillons élaborés à la vitesse v_1 , la résistivité électrique ρ est pratiquement constantes pour $t < 110\text{nm}$ puis décroît pour les grandes épaisseurs. En tenant compte des erreurs de mesure on note aussi que ρ est constant pour toute la gamme d'épaisseurs dans la série de vitesse v_2 . Dans le système de Ni/Si et pour la série de vitesse v_1 , on observe une augmentation ensuite une diminution monotone de ρ avec l'épaisseur. Par contre pour la série de vitesse v_2 , il y a une augmentation monotone de la résistivité électrique avec l'épaisseur.

Dans le système Ni/verre, et pour les échantillons préparés à la vitesse v_1 , ρ est pratiquement constante pour les deux premiers échantillons, ensuite diminue d'une façon monotone avec D . Par contre pour la série de vitesse v_2 , il y a une diminution monotone de ρ avec l'augmentation de D . Dans le système Ni/Si, et pour la série des faibles vitesses de dépôt, il y a une augmentation avec D , ensuite une diminution monotone. Pour la série de vitesse v_2 , on remarque une diminution de la résistivité, ensuite une augmentation monotone avec l'augmentation de D .

Le traitement de nos résultats par les modèles des de M-S et F-S montre la dominance du mécanisme de diffusion aux joints de grains. L'effet de la diffusion par la surface semble négligeable dans cette gamme d'épaisseur. De plus les valeurs du coefficient de réflexion R pour le système Ni/verre sont pratiquement constantes, par contre dans le système Ni/Si il y a une augmentation monotone de R avec l'épaisseur pour la série des grandes vitesses de dépôt v_2 .

Ce travail ouvre la voie à l'étude des propriétés magnétiques des couches minces de Ni/verre et Ni/Si (100), ce qui fera l'objet d'un travail futur.

Références

bibliographiques

REFERENCES BIBLIOGRAPHIQUES

- [1] H. O. Pierson, *Hand Book of Refractory Carbides and Nitrides*, Westwood, New Jersey, U.S.A. 1996.
- [2] H. Lüth, *Solid Surfaces, Interfaces and Thin Films*, Springer Study Edition 2001.
- [3] H. Bubert and H. Jenett, *Surface and Thin Film Analysis*, Wiley-VCH 2002.
- [4] J. Perrière, *Vacuum*, 37 (1987) 429-432.
- [5] P. Kiréev, *La Physique Des Semi-conducteurs*, 2^e édition. Mir. Moscou 1975.
- [6] J. M. Poate, K. N. Tu and J. W. Mayer, *Thin Films-Interdiffusion and Reactions*, John Wiley & Sons 1978.
- [7] R. W. Cahn, P. Haasen, E. J. Kramer, *Materials Science and Technology*, Volume 2A, Part I, New York; Basel; Cambridge, VCH 1992.
- [8] C. R. Brundle, C. A. Evans; Jr, and S. Wihon, *Encyclopedia of Materials Characterization*, Butter Worth-Heinemann 1992.
- [9] H. Lee, W. Yu, and Y. Kwon, *Proceedings of the Third International Conference on Information Technology*, IEEE 2006.
- [10] S. Abhaya, G. Amarendra, B. K. Panigrahi, and K. G. M. Nair, *J. of Appl. Phy*, 99 (2006) 033512_1-033512_4.
- [11] J. Vacik, H. Naramoto, S. Yamamoto, K. Narumi, *Nucl. Inst. Methods in Physics Research (NIMB) B* 219–220 (2004) 867–870.
- [12] C. Kittel, *Physique de l'Etat Solide*, 7^{ème} édition DUNOD Paris 1998.
- [13] N. W. Ashcroft, N. D. Mermin, *Physique des Solides*, EDP Sciences 2002.
- [14] J. P. Eberhart, *Analyse Structurale et Chimique des Matériaux*, DUNOD Bordas, Paris 1989.
- [15] D. Sander, C. Schmidhals, A. Enders, and J. Kirschner, *Phys. Rev. B* 57 (1998) 1406-1409.
- [16] S. Arief, T. Terazawa, T. Ban, Y. Ohya, Y. Takahashi, *Mater. Sci. Eng. B*100 (2003) 132-135.
- [17] J.B. Yi, Y.Z. Zhou, J. Ding, G.M. Chow, Z.L. Dong, T. White, XingYu Gao, A.T.S. Wee, X.J. Yu, *J. Magn. Mater.* 284 (2004) 303–311.
- [18] M. Gruyters, *Surf. Sci.* 515 (2002) 53–60.

- [19] T. Kada, M. Ishikawa, H. Machida, A. Ogura, Y. Ohshita, K. Soai, J. Crystal Growth 275 (2005) e1115–e1119.
- [20] Per Sandstrom, Erik B. Svedberg, Jens Birch, Jan-Eric Sundgren, J. Crystal Growth 197 (1999) 849-857.
- [21] A. Kumar, U. Welzel, E.J. Mittemeijer, Acta Materialia 54 (2006) 1419-1430.
- [22] L. M. P. Pinheiro, S. S. Maluf, A. L. Gobbi, P. I. Paulin-Filho, M. C. A. Fantini and P. A. P. Nascente, J. Phys. D: Appl. Phys. **38** (2005) 4241–4244.
- [23] B. C. Kang, O. M. Moon, J. H. Boo, Thin Solid Films 501 (2006) 181 - 185.
- [24] G. Chen, J. Wan, J. Yang, X. Ding, L. Ye, X. Wang, Surf. Sci. 513 (2002) 203–210.
- [25] G. B. Cho, K. K. Cho, K. W. Kim, Materials Letters 60 (2006) 90 - 93.
- [26] M.T. Perez-Frias, J. Flores, J. L. Vicent, J. Appl. Phys. 64(10) (1986) 6110-6112.
- [27] B. T. Jonker, J. J. Krebs, and G. A. Prinz, J. Appl. Phys. 64(10) (1988) 5340-5342.
- [28] C. Nacereddine, A. Layadi, A. Guittoum, S.-M. Chérif, T. Chauveau, D. Billet, J. Ben Youssef, A. Bourzami, M. –H. Bourahli, Mater. Sci. Eng. B (2006), doi: 10.1016/j.mseb.2006.09.021.
- [29] P. J. Brown, J. B. Forsyth, *the Crystal Structure of Solids*, Edward Arnold 1973.
- [30] H. P. Klug and L. E. Alexander, *X- Ray-Diffraction Procedures*, John Wiley & Sons 1974.
- [31] J. Barralis, J. Maeder, *Elaboration; Structures-Propriétés; Normalisation*, NATHAN 1992.
- [32] V. Stary, K. SefCik, Vacuum 31 (1981) 345-349.
- [33] B. Ghebouli, Thèse de Magister, UFA de Sétif 1996.
- [34] B. Ghebouli, A. Layadi and L. Kerkache, Eur. Phys. J. AP. 3 (1998) 35-39.
- [35] L. Eckertová, *Physics of Thin Films*, 2^e edition, Plenum Press 1986.
- [36] P. Wissmann, Thin Solid Films 5 (1970) 329-338.
- [37] A. Bourzami, B. Ghebouli, A. Kharmouche, A. Guittoum, A. Layadi, O. Lenoble, M. Piecuch, Ann. Chim. Sci. Mat. 2005, 30 (2), pp. 207-215.
- [38] A. Vappaille et R. Castagné, *Dispositifs et circuits intégrés semiconducteurs*, Bordas. Paris 1990.
- [39] D. David et R. Caplain, *Méthodes usuelles de caractérisation des surfaces*, édition EYROLLES 1988.
- [40] A. Kusy, Thin Solid Films 43 (1977) 243-250.

- [41] E. Broitman, P. Alonso, R. Zimmerman, *Thin Solid Films* 277 (1996) 192-195.
- [42] M. Gerl et J-P. Issi, *Physique des matériaux*, PPUR. Lausanne 1997.
- [43] A. I. Maarroof and B. L. Evans, *J. Appl. Phys.* 76 (1994)1047-1054.
- [44] K. L. Chopra, *Thin Film phenomena*, Mc Graw- Hill, New York 1969.
- [45] N. A. Surplice, J. Muller and B. Singh, *Thin Solid Films* 28 (1975) 179-187.
- [46] G. Fischer, H. Hoffmann, J. Vancea, *Phy. Rev. B* 22(1980) 6065-6073.
- [47] L. Cheriet, H. H. Helbig, and S. Araj, *Phy. Rev. B* 39(1989) 9828-9830.
- [48] M. A. Angadi and L. A. Udachan, *Thin Solid Films* 79 (1981) 149-153.
- [49] M. A. Angadi and L. A. Udachan, *Thin Solid Films* 78 (1981) 299- 302.
- [50] D. Dayal, P. Rudolf and P. Wibmann, *Thin Solid Films* 79(1981) 193-199.
- [51] J. W. C. DE Vries, *Thin Solid Films* 150 (1987) 209-215.
- [52] J. W. C. DE Vries, *Thin Solid Films* 167 (1988) 25-32.
- [53] A. F. Mayadas and M. Shatzkes, *Phy. Rev. B* 1 (1970) 1382-1389.
- [54] A. A. Cottey, *Thin Solid Films* 1 (1967/68) 297-307.
- [55] R. Dimmich and F. Warkusz, *Thin Solid Films* 109 (1983) 103-114.
- [56] C. Nacereddine, Thèse de Magister, UFA de Sétif 2004.

في هذا العمل، تم دراسة تأثير المساند [الزجاج و السيلسيوم الموجه (100)]، سمك رقائق النيكل وسرعة التبخير [سرعة 11 nm/min و سرعة 22 nm/min] على الخصائص البنيوية والكهربائية، لرقائق من النيكل موضوعة بتقنية التبخير في الفراغ. تم تحديد سمك الرقائق من خلال محاكاة البيانات المحصل عليها بتقنية RBS وهي محصورة بين 28 و 200nm. بواسطة انعراج الأشعة السينية، وجدنا أن كل العينات متعددة البلوريات وموجمة وهي $\langle 111 \rangle$. عند دراسة ثابت الشبكة، وجدنا أن عينات النيكل/السيلسيوم تعرضت للضغط أكثر من عينات النيكل/الزجاج. من جهة أخرى، عينات النيكل/الزجاج المتشكلة بسرعة سر 1، تبين أن الضغط ينخفض كلما زاد سمك رقائق النيكل أما العينات المتشكلة بسرعة سر 2 فقد تعرضت لضغط ضعيف. حجم بلوريات النيكل/الزجاج هي تزايد مستمر مع سمك رقائق النيكل (من 54 إلى 140 \AA) حيث أنها أصغر من حجم بلوريات النيكل/السيلسيوم. من جهة أخرى بلوريات العينات المتشكلة بـ سرعة ثابتة من أجل سمك ضعيف وأيضاً حجم بلوريات النيكل/الزجاج أكبر من النيكل/السيلسيوم. عينات النيكل/الزجاج المتشكلة بسرعة سر 1 تتميز بمقاومية عالية مقارنة بتلك المتشكلة بسرعة سر 2 من أجل السلسلة الثانية، المقاومة تطبيقاً ثابتة مع سمك رقائق النيكل، وتتناقص بتزايد حجم البلوريات وهذا نتيجة التسرب عبر الفراغات الموجودة بين البلوريات في هذه العينات. أما عينات النيكل/الزجاج والنيكل/السيلسيوم المتشكلة بالسرعة سر 1 فهما تغيرات معقدة بالنسبة إلى السمك و سرعة التشكيل. الكلمات المفتاحية: رقائق النيكل، التبخير، انعراج الأشعة السينية، المقاومة الكهربائية.

Résumé :

Dans ce travail, nous avons étudié l'effet des substrats [verre et Si (100)], de l'épaisseur de Ni (t_{Ni}) et de la vitesse de dépôt [$v_1=13\text{nm/min}$ and $v_2=22\text{nm/min}$] sur les propriétés structurales et électriques des couches minces de Ni, déposées par évaporation sous vide. L'épaisseur de Ni, mesurée par la technique de la rétrodiffusion de Rutherford (RBS), situent entre 28 et 200nm. Pour la diffraction des rayons X, on l'a constaté que tous les échantillons sont polycristallins et croissent suivant la texture $\langle 111 \rangle$. Pour la mesure du paramètre de maille, nous avons trouvé que les échantillons de Ni/Si ont plus de contrainte que ceux de Ni/verre. D'ailleurs, pour échantillons de Ni/verre déposés à v_1 , les contraintes diminuent avec l'augmentation de t_{Ni} tandis que ceux déposés à v_2 sont presque soumettre à une faible contrainte. La taille moyenne des grains (D) de Ni/verre, pour les faibles vitesses de dépôt, augmente de façon monotone avec t_{Ni} (54 à 140 \AA) et est inférieur à ceux de Ni/Si. D'une part les échantillons déposés à v_2 , ont un D constant pour les petites t_{Ni} avec D dans le Ni/verre plus grand de que dans le Ni/Si. Les échantillons de Ni/verre déposés à faible vitesse sont caractérisés par une résistivité électrique (ρ) plus élevée que ceux déposés à v_2 . Pour la deuxième série, le ρ est pratiquement constant avec le t_{Ni} mais diminue avec l'augmentation de D, indiquant la dominance du mécanisme de diffusion aux joints de grains plutôt que le mécanisme de diffusion par la surface dans cette gamme d'épaisseur. Pour les échantillons de Ni/verre et de Ni/Si déposés à v_1 , la ρ a une variation plus complexe en fonction de l'épaisseur et de la vitesse de dépôt.

Mots clés : Les couches minces de Ni, évaporation, diffraction des rayons X, résistivité électrique.

Abstract:

In this work, we have studied the effect of substrates [glass and Si (100)], of Ni thickness (t_{Ni}) and of the deposition rate [$v_1=13\text{nm/min}$ and $v_2=22\text{nm/min}$] on the structural and electrical properties of evaporated Ni thin films. The Ni thickness, measured by the Rutherford backscattering (RBS) technique, ranges from 28 to 200nm. From X-ray diffraction, it was found that all samples are polycrystalline and grow with the $\langle 111 \rangle$ texture. From the measure of the lattice constant, we inferred that Ni/Si samples are under a higher tensile stress than the Ni/glass ones. Moreover, in Ni/glass deposited at v_1 , stress is relieved as t_{Ni} increases while those deposited at v_2 are almost stress-free. The grain size (D) in Ni/glass with low deposition rate monotonously increases (from 54 to 140 \AA) as t_{Ni} increases and are lower than those corresponding to Ni/Si. On the other hand samples grown at v_2 have a constant D, for small t_{Ni} with D in Ni/glass larger than D in Ni/Si. Ni/glass deposited at low v are characterized by a higher electrical resistivity (ρ) than those deposited at v_2 . For the latter series, ρ is practically constant with t_{Ni} but decreases with increasing grain size, indicating that diffusion at the grain boundaries rather than surface effect is responsible for the variation of ρ in this thickness range. For the Ni/glass deposited at v_1 and the Ni/Si series, ρ has a more complex variation with thickness and deposition rate.

Keywords: Ni thin films, evaporation, X-ray diffraction, electrical resistivity.