

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

Université Ferhat Abbas-Sétif
Faculté des Sciences
Département de Physique

Mémoire de Magister

Présenté par Mr. Mébarki Mourad
En vue de l'obtention du diplôme
de Magister en physique

Option
Physique de Solide

Thème :

Étude des propriétés physiques
des couches minces de Fe/Al, Fe/Si(100)
et Fe/Verre déposées par évaporation.

Soutenu publiquement devant le jury suivant :

Président	Mr Khaled Bouamama	Professeur	U.F.A.	Sétif
Rapporteur	Mr A/Hamid Layadi	Professeur	U.F.A.	Sétif
Examineur	Mr Amor Azizi	Professeur	U.F.A.	Sétif
Examineur	Mr Mahfoud Benkerri	Maître de conférences	U.F.A.	Sétif

le 23-09-2010.

REMERCIEMENTS ;

Je remercie les membres de jury : Monsieur Khaled Bouamama d'avoir accepté la présidence, Monsieur Amor Azizi et Monsieur Mahfoud Benkerri d'avoir acceptés de juger mon travail de thèse de Magister et de l'avoir fait avec beaucoup de sérieux.

Je tiens à remercier A. Layadi de m'avoir accueilli durant toute la période de mon travail. Je garderai le souvenir de ton optimisme légendaire, qui est la touche indispensable pour maintenir le cap dans les aléas de la thèse.

Je tiens également à remercier Monsieur Boudissa de m'avoir accueilli dans le Laboratoire ENMC. UFA-Sétif, et ce, dès mon élaboration des couches minces de Fe. Je dois également remercier Monsieur B. Ghebouli qui ma aidé durant le déroulement de l'élaboration.

Je remercie également Monsieur A. Guittoum, avec ta vivacité communicative ! je te suis vraiment reconnaissant de toutes ces heures passées à manipuler la RBS, la méthodes des quatres pointes et la DRX au sein du CRNA (Alger), cela à été une contribution très importantes de mon travail.

Je remercie tous les gens du Laboratoire MEB de génie des procédés, université de Béjaia.

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

Sur le plan personnel je voudrais remercier ma famille pour son soutien. Il me faut également remercier ici l'ensemble de mes ami(e)s qui ont largement contribué à créer une ambiance chaleureuse et convivial au sein de l'équipe, ainsi que les enseignants du département de Physique UFAS, par leurs enseignements, leurs confiance et leurs amitiés, ont permis l'aboutissement de ce travail.

À la mémoire de mon père.
 À ma mère
 À mes frères.
 À mes soeurs.
À mon grand père et aussi
 à ma grand-mère.
 À tous mes ami(e)s.

*Rien de ce qui est commencé n'est
jamais complètement achevé, tant
que tout ce qui est entrepris n'est
pas totalement terminé.*

PIERRE DAC.

Table des matières

TABLE DES MATIÈRES	i
Table des tableaux	iv
Table des figures	vi
Introduction générale	1
1 Élaboration des échantillons de Fe	4
1.1 Introduction	4
1.2 Nettoyage des substrats	5
1.2.1 Nettoyage ex situ	5
1.2.2 Préparation des substrats de Verre et de Si(100) .	6
1.2.3 Nettoyage de l'enceinte de l'évaporateur	6
1.2.4 Nettoyage des substrats de Al	6
1.3 Technique de dépôt sous vide	7
1.3.1 généralités	7
1.3.2 L'évaporation	7
1.4 Évaporateur MECA 2000	9
1.4.1 Caractéristiques générales :	9
1.4.2 Spécifications techniques :	9
1.4.3 Options :	10
1.4.4 Enceinte d'évaporateur	10
1.4.5 Groupe de pompage	11
1.4.6 Mesure de la pression	11

2	Étude des propriétés structurales	13
2.1	Introduction	13
2.2	La spectrométrie par rétrodiffusion de Rutherford (Analyse physico-chimique)	14
2.2.1	Étude théorique	15
2.2.2	Dispositif Expérimental	21
2.2.3	Simulation des spectres RBS	23
2.2.4	Résultats et discussion	23
2.3	Analyse structurale(La diffraction des rayons X)	29
2.3.1	Introduction	29
2.3.2	Étude théorique	29
2.3.3	Diffraction des rayons X : (méthode expérimentale)	33
2.3.4	Diffractomètre à rayons X	36
2.3.5	Résultats et discussions	37
2.4	Morphologie des couches minces : Utilisation d'un microscope électronique à balayage (MEB)	48
2.4.1	Les différents types d'interaction électron-matière[23]	48
2.4.2	Principe général d'un microscope électronique à balayage (MEB)	49
2.4.3	Principales contraintes liées à l'observation en MEB	50
2.4.4	Résultats et discussions	51
2.5	Conclusion	54
3	Études des propriétés électriques	57
3.1	Introduction	57
3.2	Dispositif de mesure de la résistance carrée	58
3.3	Mesure de la résistance électrique	58
3.4	La loi de Mathiessen	60
3.5	Résultats et discussion	62
3.5.1	Étude de la résistance carrée en fonction de l'épaisseur	62
3.5.2	Étude de la résistivité en fonction de l'épaisseur	64
3.6	Effet de taille	67
3.6.1	Introduction	67
3.6.2	Diffusion des électrons à la surface	68
3.6.3	Diffusion des électrons aux joints de grains	71

3.7 Conclusion	73
Conclusion générale	75
Bibliographie	78

Liste des tableaux

2.1	Épaisseurs et temps de dépôt des couches minces de Fe . .	28
2.2	Les rapports des intensités en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Al.	42
2.3	Les rapports des intensités en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Si(100).	42
2.4	Les rapports des intensités en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Verre.	43
2.5	Le paramètre de maille en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Al	43
2.6	Le paramètre de maille en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Si(100)	44
2.7	Le paramètre de maille en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Verre	44
2.8	Les déformations ε en fonction de l'épaisseur pour tous les systèmes	45
2.9	La taille des grains en fonction de l'épaisseur pour les systèmes Fe/Verre, Fe/Al et Fe/Si(100)	46
3.1	La résistance carrée pour le systèmes Fe/Al pour toutes les épaisseurs.	62
3.2	L'épaisseur, la taille des grains, la résistance carrée, la résistivité électrique et le coefficient de réflexion pour le système Fe/Verre.	73

3.3 L'épaisseur, la taille des grains, la résistance carrée, la résistivité électrique et le coefficient de réflexion pour le système Fe/Si(100).	73
--	----

Table des figures

1.1	Schéma de principe de l'évaporation	5
1.2	Schéma d'illustration des revêtements sous vide	8
1.3	Évaporateur MECA 2000	10
1.4	Porte creuset	11
2.1	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).	17
2.2	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.	18
2.3	Schéma représentatif d'un spectre RBS avec la variation de FWHM en fonction l'épaisseur de la couche.	19
2.4	Dispositif expérimental de l'appareillage de la technique RBS.	22
2.5	Exemples de spectres de RBS avec trois gammes d'épaisseurs dans le système Fe/Al : (a) faible épaisseur, (b) moyenne épaisseur, (c) grande épaisseur.	24
2.6	Exemples des spectres de RBS avec trois gammes d'épaisseurs dans le système Fe/Si(100) : (a) faible épaisseur, (b) moyenne épaisseur, (c) grande épaisseur.	26

2.7	Exemples des spectres de RBS avec trois gammes d'épaisseurs dans le système Fe/Verre : (a) faible épaisseur, (b) moyenne épaisseur, (c) grande épaisseur.	27
2.8	Illustration de la diffraction des rayons X (relation de Bragg)	30
2.9	Schéma représentant la différence de marche (ddm)	32
2.10	Schéma du principe du diffractomètre en mode Bragg-Brentano	36
2.11	Diffractomètre BRUKER	37
2.12	Spectres de diffraction des rayons X des films de Fe/Al pour différentes épaisseurs de Fe.	39
2.13	Spectres de diffraction des rayons X des films de Fe/Si(100) pour différentes épaisseurs de Fe.	40
2.14	Spectres de diffraction des rayons X des films de Fe/Verre pour différentes épaisseurs de Fe.	41
2.15	Volume d'interaction entre un faisceau d'électrons et la surface d'un échantillon (poire de diffusion).	49
2.16	Schema du principe de la microscopie MEB.	50
2.17	Le MEB de l'Université de Béjaia(Quanta 200 FEI).	51
2.18	Les images MEB des échantillons Fe/Al(a), Fe/Si(100)(b) et Fe/Verre(c) pour les épaisseurs 76 nm et 431 nm	52
3.1	Schéma simplifié de la technique des quatre pointes	59
3.2	Évolution de la résistance carrée en fonction de l'épaisseur pour les systèmes Fe/Si(100), Fe/Verre et Fe/Al (les points correspondants à $R_{\square} \sim 0$).	63
3.3	Schéma représentant les différentes contributions à la résistance mesurée pour le système Fe/Al[40].	64
3.4	Évolution de la résistivité électrique en fonction de l'épaisseur pour les systèmes Fe/Si(100), Fe/Verre et Fe/Al.	65
3.5	Évolution de $\rho_f.t$ en fonction de l'épaisseur t dans les systèmes Fe/Si(100) et Fe/Verre.	70
3.6	Évolution du coefficient de réflexion en fonction de l'épaisseur t dans les systèmes Fe/Si(100) et Fe/Verre.	72

Introduction générale

L'étude des propriétés physiques des films minces métalliques (quelques Å à 1000 Å d'épaisseur) a démarré il y a quelques décennies. son essor a été considérable d'une part parce que les techniques de fabrication ont permis d'atteindre des degrés de précision fantastique dans le contrôle des épaisseurs déposées. Contrôler l'épaisseur d'une couche de 10 Å à 1 Å près constitue actuellement une opération maîtrisée par les spécialistes de ces techniques de dépôt. Ainsi, il est devenu rapidement possible de construire des objets magnétiques de taille très réduite comme des tricouches constituées de deux couches magnétiques séparées par une couche appelée espaceur, constituée d'un métal, un oxyde ou un semi-conducteur. Grâce à de tels objet, la magnétorésistance géante a été découverte en 1988 par une équipe française[4], cette découverte a constitué une révolution dans le domaine car ce mécanisme est maintenant utilisé dans la fabrication de tête très sensible pour la lecture de bandes magnétiques.

Dans la pratique, il s'agit de fabriquer des matériaux en couches minces et l'étude de la croissance, de la structure, des propriétés électriques, de la morphologie des couches concerne évidemment toutes ces caractérisations. De plus il existe un objectif commun à toutes ces caractérisations : on a souvent besoin d'obtenir des dépôts continus avec des interfaces planes. Différentes techniques de synthèse conduisant à des dépôts amorphes, polycristallins ou monocristallins sont utilisées selon les thèmes d'étude.

On distingue deux grandes catégories de méthodes d'élaboration des couches minces : les méthodes physiques, telles que la pulvérisation ou

évaporation (PVD), PLD,... et les méthodes chimiques comme la CVD (Chemical vapor deposition), électro-déposition Les méthodes physiques sont en général utilisées en recherche, alors que les méthodes chimiques sont également utilisées industriellement, à cause de leur meilleur rendement (vitesse de dépôt plus grande). Dans le domaine des films minces magnétiques, il nous faut maîtriser des dépôts ayant des épaisseurs de quelques angströms, et ceci est beaucoup plus facile à réaliser avec les méthodes physiques. Nous donnons le principe de la technique utilisée dans notre travail, à savoir, l'évaporation thermique sous vide (chauffage à effet Joule).

Le matériau que nous allons déposer est un matériau ferromagnétique (Fe) qui suscite un intérêt major en couches minces et en multicouches. Les études expérimentale et théorique n'ont pas cessé d'augmenter depuis plusieurs années. Le but est de découvrir les secrets extraordinaires de leurs propriétés physiques par rapport à celles des matériaux massifs (bulk), et de les exploiter dans le profil de nouvelles technologies, tel que l'enregistrement magnétique et les têtes d'écriture et de lecture magnétorésistives. Des technologies qui marque bien le prestige de vie au future où les contraintes de poids, de taille et de coût liées au développement rapide des réseaux locaux et à l'explosion de la téléphonie mobile grand public, où la technique des couches minces est employée dans tous les systèmes nécessitant une bonne maîtrise.

L'objectif auquel participe l'étude menée dans ce travail au niveau du département de physique de l'UFAS de sétif, sous la direction de M^r. A.Layadi, est étudier l'effet du substrat sur les propriétés structurales et électriques des couches minces de Fe déposées par évaporation thermique sous vide sur des substrats de verre (structure amorphe), Si(100) (structure monocristalline) et Al (structure polycristalline), pour de différentes épaisseurs du film.

Dans le chapitre 1, nous décrivons la méthode d'élaboration de nos couches de Fe (évaporation) ainsi que les conditions de dépôt qu'on a utilisées.

Le chapitre 2 est consacré aux propriétés structurales. Nous décrivons les méthodes de caractérisation [Rutherford Backscattering Spectroscopy (RBS), Diffraction des rayons X (DRX), Microscopie Électronique à Balayage (MEB)]. Les résultats obtenus avec ces techniques seront discutés en fonction du substrat, de l'épaisseur et de la vitesse de dépôt.

Les propriétés électriques (résistance carrée et résistivité) obtenues par la méthode des quatre pointes seront discutées dans le chapitre 3.

Enfin dans une conclusion générale, on résumera les résultats obtenus ainsi que les travaux qu'on compte accomplir dans le futur.

Élaboration des échantillons de Fe

1.1 Introduction

Les couches minces magnétiques peuvent avoir des propriétés très différentes de celles des matériaux massifs. La compréhension des propriétés de ces systèmes nécessite une caractérisation précise de leurs structures et de leurs morphologies.

L'intérêt pour les propriétés physiques des couches minces et multicouches métalliques n'est pas nouveau. En effet, L.Néel et ses collaborateurs avaient déjà effectué un travail pionnier très important au cours des années 1950-60 en traitant des parois de Bloch et de Néel dans les couches minces, du couplage magnétostatique entre couches minces ferromagnétiques séparées par une couche non magnétique, de l'anisotropie de surface ou d'interface, du couplage entre des matériaux ferromagnétique et antiferromagnétique[1].

Toutefois, les progrès technologiques des deux dernières décennies ont suscité le développement d'une activité de recherche très intense dans ce domaine stimulé par la bien meilleure qualité cristallographique et chimique des échantillons préparés et par la même, un meilleur contrôle de leurs propriétés.

Le fer naturel a une structure cristallographique cubique centrée. Ce fer est ferromagnétique dans les conditions normales. En couches minces,

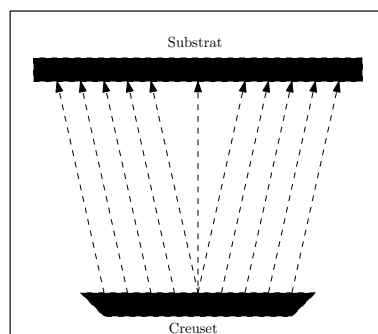


FIG. 1.1 – Schéma de principe de l'évaporation

on arrive à le stabiliser dans une phase cubique à face centrée. Celle-ci n'est pas magnétique.

Dans l'élaboration des couches minces et multicouches, un flux d'atomes continu arrive et se condense sur un substrat. Pour obtenir une bonne structure cristallographique de la couche mince déposée, on choisit en général un substrat monocristallin dont la surface libre présente une maille cristallographique aussi proche que possible de celle du matériau que l'on cherche à déposer sur le substrat[2].

1.2 Nettoyage des substrats

1.2.1 Nettoyage ex situ

Le fait de nettoyer les substrats avant chaque dépôt permet d'améliorer l'adhérence entre la couche mince et son support. Cependant, l'obtention d'une bonne adhérence ne dépend pas uniquement de cette étape.

En effet, d'autres facteurs entrent en jeu, comme les contraintes thermiques, mécaniques ou chimiques. La phase du nettoyage ex situ a pour but d'éliminer toutes les particules solides (grains de poussière ou d'abrasif) se trouvant en surface.

Pour cela il est nécessaire d'utiliser un solvant (alcool) qui dissout les contaminants sans attaquer le substrat. Mais un tel nettoyage n'est pas suffisant pour obtenir une surface correcte.

1.2.2 Préparation des substrats de Verre et de Si(100)

Les substrats de Verre et de Si(100) sont des lames à faces parallèles, d'épaisseur de 1 mm.

On les a seulement nettoyés chimiquement comme suit :

- On les immerge dans de l'acétone (99,999%) pendant quelques secondes ($\simeq 30$ s).
- On frotte chaque lame soigneusement avec du papier absorbant pour enlever les salissures.
- On rince les lames de verre et de Si(100) dans de l'eau distillée.
- On les sèche à l'aide d'un ballant d'air, ce qui se fait rapidement.

On refait le nettoyage plusieurs fois, afin d'obtenir de bon résultats (Verre et Si(100) visiblement net (à oeil nu)), on les laisse sécher à l'air libre dans un endroit propre, ensuite on les fixe sur le porte substrats.

1.2.3 Nettoyage de l'enceinte de l'évaporateur

L'évaporateur MECA 2000 est utilisé par plusieurs chercheurs de l'université de Sétif et autres, pour différents dépôts de couches minces, soit un seul matériau à évaporer ou bien un alliage., donc on doit nettoyer l'enceinte à chaque utilisation pour minimiser la contamination avec d'autres éléments non désirés dans nos couches. Le nettoyage a été fait à l'aide du papier absorbant, on frotte bien l'intérieur de l'enceinte en ajoutant de l'acétone 99,999 % pour enlever le maximum de salure collée à l'intérieur de l'enceinte, on répète l'opération plusieurs fois et en laisse sécher l'enceinte.

1.2.4 Nettoyage des substrats de Al

Vu les différentes manipulations déjà faites, par le constructeur des substrats d'aluminium, un bon nettoyage s'avère nécessaire avant chaque dépôt. Les étapes sont les mêmes que celle décrites pour le verre et Si(100).

Ces opérations permettent d'éliminer les contaminants organiques (huile, graisses, ...) et peuvent être refaites plusieurs fois, pour un meilleur résultat.

On les place sur le porte substrats avec les substrats de verre et Si(100). On doit les mettre le plus vite possible sous vide pour éviter une oxydation importante des substrats de Al.

1.3 Technique de dépôt sous vide

1.3.1 généralités

Les nombreuses techniques d'élaboration des couches minces se répartissent en deux grandes catégories : les processus physiques de dépôt par évaporation (physical vapor deposition ou PVD) et les processus chimiques (chemical vapor deposition ou CVD). Le choix de l'une ou l'autre technique dépend de la nature du matériau à déposer. Les processus chimiques qui font intervenir la décomposition d'un gaz porteur au niveau d'un substrat sont principalement utilisés pour l'élaboration de couches minces de semi-conducteurs. Le dépôt de couches métalliques par électrochimique (plaquage par électrolyse) a néanmoins été utilisé récemment pour l'élaboration de multicouches magnétiques métalliques. On sait couramment déposer par électrolyse les métaux suivants : Al, Ag, Au, Cd, Co, Cu, Cr, Fe, Ni, Pb, Pt, Rh, Sn, Zn [3].

Dans ce travail, nous avons déposé nos couches minces de Fe par la technique d'évaporation thermique sous vide (PVD), en utilisant l'évaporateur MECA2000, Laboratoire d'Élaboration de Nouveaux Matériaux et leurs Caractérisations (ENMC), Université Ferhat Abbas Sétif, département de Physique.

1.3.2 L'évaporation

Cette technique de PVD (Physical Vapor Deposition) comporte trois étapes (Fig 1.1) :

L'évaporation d'un matériau par chauffage d'une charge située dans un creuset, puis le transfert de ces particules évaporées de la charge vers le substrat, suivi enfin de la condensation de ces mêmes particules à la surface du substrat. La tension de vapeur, donc la vitesse d'évaporation,

d'un matériau va s'accroître au fur et à mesure que sa température augmente et que la pression ambiante diminue. Par conséquent, le fait de chauffer un matériau, qui plus est sous vide, augmente grandement les chances d'évaporer celui-ci, et donc de réaliser un revêtement adhérent et homogène, à condition toutefois qu'il y ait suffisamment de particules évaporées, et que le substrat ait une préparation de surface efficace et adaptée.

Un exemple qui illustre bien les revêtements sous vide : le dépôt par

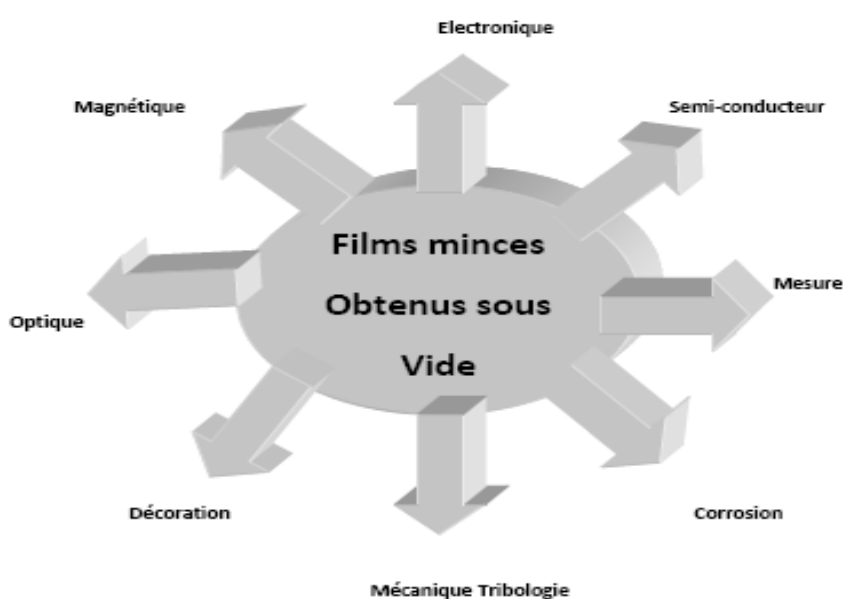


FIG. 1.2 – Schéma d'illustration des revêtements sous vide

évaporation thermique, est une technique où le matériau est chauffé sous une pression réduite jusqu'à sa température d'évaporation.

Il existe plusieurs techniques qui diffèrent suivant la nature des sources d'énergie utilisées pour chauffer le matériau :

- chauffage par effet joule,
- laser de puissance,
- canon à électrons,
- arc électrique ...

Nous nous intéresserons uniquement à la première méthode, les autres ne sont pas à notre disposition.

Effet Joule

Cette méthode d'évaporation est la plus simple à mettre en oeuvre. Le matériau à évaporer est placé dans un creuset chauffé soit thermiquement (flamme) soit électriquement (passage d'un fort courant dans le creuset d'évaporation, résistance chauffante) jusqu'à obtenir la température de sublimation ou d'évaporation (passage par une phase liquide) du matériau.

La phase vapeur, se condense ensuite sur un substrat placé en regard. Ceci conduit à la formation d'une couche mince solide.

1.4 Évaporateur MECA 2000

1.4.1 Caractéristiques générales :

Le système de dépôt EVC conçu pour la recherche permet la co-évaporation par effet joule de matériaux métalliques et céramiques sur des échantillons de dimension jusqu'à $150 \times 150 \text{ mm}^2$ (sans cache substrat). Très flexible et évolutif, il permet une réelle maîtrise du processus d'évaporation tout en laissant une grande souplesse d'utilisation.

Ainsi répond-il parfaitement aux attentes des chercheurs les plus exigeants sur la qualité et la versalité de leurs matériel, pour un coût d'investissement modéré. Le système est équipé d'un groupe de pompage permettant d'atteindre la gamme de 10^{-7} mbar.

Un porte-substrat permet de maintenir en place les échantillons.

1.4.2 Spécifications techniques :

- chambre inox de diamètre 300 mm
- pression limite : 10^{-7} mbar
- 3 creusets
- porte d'échantillon 7,5 cm avec cache manuel
- hublot de visualisation
- jauge de mesure de pression (10^{-9} mbar à 1000 mbar)
- pompage turbomoléculaire
- un système d'excitation.

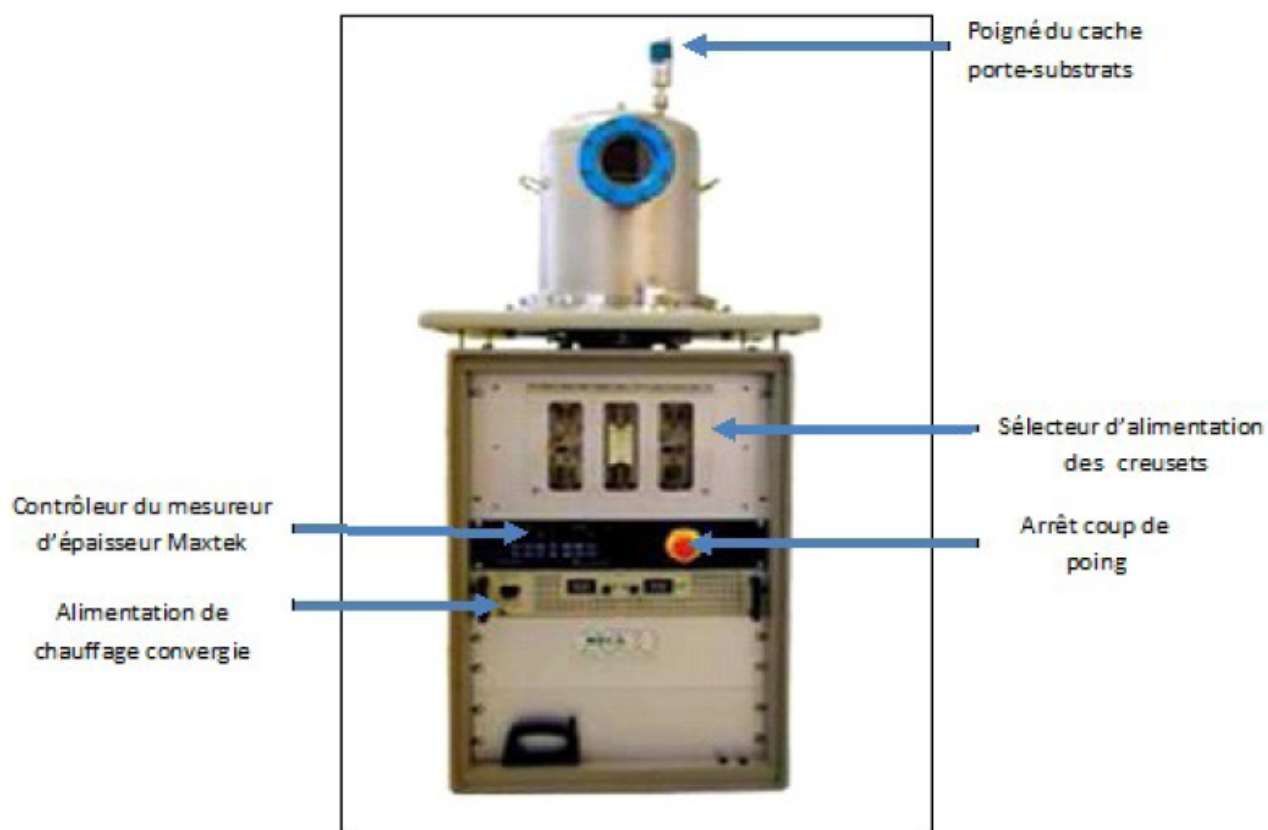


FIG. 1.3 – Évaporateur MECA 2000

1.4.3 Options :

- chauffage du substrat de l'échantillon jusqu'à 800 °C
- quartz de mesure d'épaisseur
- vanne d'isolation du groupe de pompage.

L'évaporateur avec ses différents accessoires, sont disponibles au laboratoire de couches minces du département de physique de l'université Ferhat Abbas Sétif(Fig 1.2)

1.4.4 Enceinte d'évaporateur

L'enceinte d'évaporateur MECA 2000 est constituée d'une chambre inox cylindrique, de 300 mm de diamètre et de 360 mm de hauteur. A l'intérieur de l'enceinte on peut créer un vide meilleur à 3.10^{-7} mbar. On



FIG. 1.4 – Porte creuset

trouve dans l'enceinte :

- Un porte-substrat en acier, démontable, fixé sur une tige en acier.
- Trois électrodes en cuivre sont fixées au bas de l'enceinte. Les creusets (nacelles en tungstène W) sont fixés sur ces électrodes.
- Un cache manuel en tôle métallique est placé entre le porte-substrat et le creuset. Il est fixé à un bras mobile de l'extérieur (mouvement de rotation). Ce cache est utilisé pour masquer le substrat lors du dégazage ionique et lors de la préévaporation.
- Un autre cache monté au-dessous des électrodes sur le trou d'évacuation reliant l'enceinte au groupe de pompage pour éviter l'intrusion de corps étrangers dans ce dernier.

1.4.5 Groupe de pompage

Le groupe de pompage est monté à la partie inférieure de l'enceinte. Il est composé d' :

- Une pompe primaire ALCATEL série PASCAL 2015 SD.
- Une pompe turbomoléculaire ALCATEL ATP 150 qui peut atteindre un vide meilleur que 3.10^{-7} mbar.

1.4.6 Mesure de la pression

La mesure de la pression se fait à l'aide d'un Manomètre constitué d' :

- Une jauge Pirani ACT 600 T pour la mesure de la pression primaire et secondaire.

-
- **Un contrôleur ACS 1000 pour la mesure de la vitesse de rotation de la pompe turbomoléculaire. La vitesse de rotation de la pompe est fixée entre : 25076-25083 tr/min.**

Étude des propriétés structurales

2.1 Introduction

La réduction des dimensions dans les couches minces a des conséquences importantes sur les propriétés physiques des matériaux déposés. Les propriétés structurales sont un bon témoin, car le paramètre de maille, la structure cristallographique, la taille des grains, la texture, etc, sont très sensibles à cet effet.

Avant de s'étaler dans l'étude des propriétés structurales pour nos couches minces de Fe déposées sur Al, Verre et Si(100) par évaporation sous vide, il faudra connaître (avec une précision suffisante) les épaisseurs des couches élaborées.

Dans ce chapitre, on présente les caractéristique physico-chimiques et structurales des dépôts de Fe , 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 Fe 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, 6.05, 1997-2009) pour simuler les spectres expérimentaux. Nous montrons aussi les conditions opératoires dans lesquelles 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 des 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 cristallographique de nos couches (texture, paramètre de maille et taille des grains). Nous présentons aussi les différents résultats obtenus, avec une étude détaillée du paramètre de maille et de la taille des grains en fonction de l'épaisseur, du substrat et la vitesse de dépôt.

La troisième partie de ce chapitre, sera consacrée aux images de microscopie électronique à balayage (MEB). Ces images seront présentées et discutées en détail. Nous terminerons par une conclusion sur ce chapitre.

2.2 La spectrométrie par rétrodiffusion de Rutherford (Analyse physico-chimique)

La spectrométrie par rétrodiffusion de Rutherford (RBS) est une méthode non destructive qui permet de doser les différents éléments chimiques présents dans un échantillon et de déterminer l'évolution de leur concentration en profondeur (la profondeur d'analyse étant de quelques micromètres).

Elle repose sur le principe simple qui est celui de la collision élastique entre deux particules. L'échantillon est soumis à un champ coulombien des atomes. Les ions rétrodiffusés sont collectés et analysés selon leur énergie après collision avec l'échantillon. Cette énergie dépend de la masse des atomes diffusant et de leur position. En se basant sur les lois de conservation de l'énergie et de la quantité de mouvement, on peut, pour une énergie initiale donnée et connaissant l'énergie des ions rétrodiffusés, remonter à l'élément atomique diffusant.

Les résultats de l'analyse par RBS se présentent sous la forme de spectres en énergie des particules rétrodiffusées. Pour obtenir les informations quantitatives, il est nécessaire de décomposer ces spectres à l'aide du logiciel informatique SIMNRA.

Elle permet dans notre étude de mesurer les épaisseurs et de vérifier l'état de l'interface de nos couches minces de Fe. 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 (Centre de Recherche Nucléaire d'Alger).

Notons que la technique RBS est la plus utilisée pour identifier les épaisseurs des couches minces, on cite par exemple les couches minces de Permalloy déposées sur Si(100) par Pulsed excimer laser (KrF)[14] et de Ni/verre et Ni/Si(100) préparées par évaporation thermique sous vide[15].

2.2.1 Étude théorique

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 [7]. 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 2.1). Notons ci-dessous les différentes grandeurs fondamentales de la RBS ainsi que les équations qui les régissent.

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[8].

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[9] :

$$\frac{1}{2}M_1v_0^2 = \frac{1}{2}M_1v_1^2 + \frac{1}{2}M_2v_2^2$$

La figure (2.2) 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 la 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 du matériau à analyser, et à l'angle de diffusion θ par la relation suivante[10] :

$$K = \frac{E_1}{E_0} = \left[\frac{M_1 \cos \theta + \sqrt{M_1^2 - M_2^2 \sin^2 \theta}}{M_1 + M_2} \right]^2 \quad (2.1)$$

et

$$E_1 = K E_0 \quad (2.2)$$

Ces equations 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 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_A et M_B 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 2.1). 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.

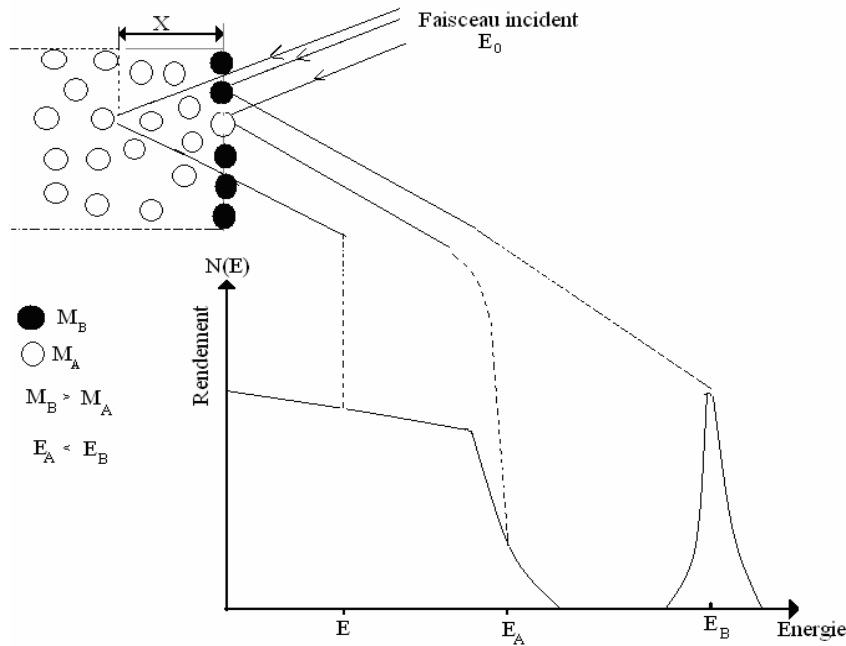


FIG. 2.1 – Principes de bases de l’analyse RBS. (M_A et M_B les masses des atomes de la cible, E_A et E_B les énergies rétrodiffusées par les atomes A et B en surface, E l’énergie rétrodiffusée par un atome A à une profondeur X , $N(E)$ le nombre de coups).

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[8]. 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[10] :

$$\varepsilon(E) = \frac{1}{N_M} \frac{dE}{dx} \quad (2.3)$$

N_M : la densité atomique de la cible constituée d’atomes de masses M .

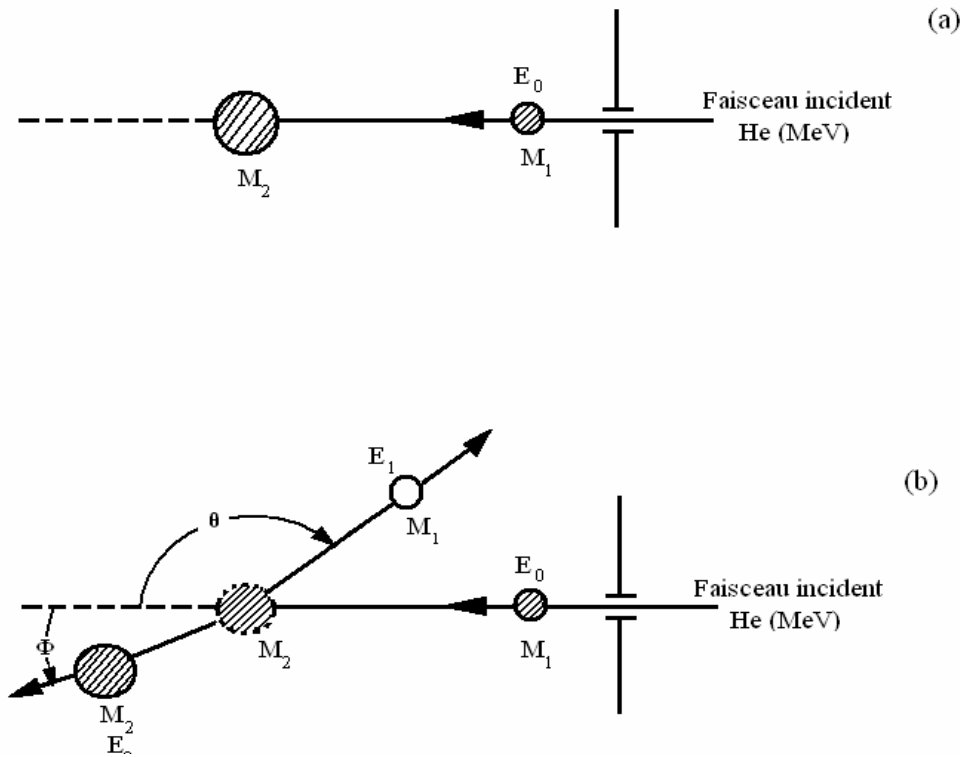


FIG. 2.2 – Schéma représentatif d'un choc élastique entre un projectile de masse M_1 et un atome de la cible de masse M_2 , (a) Avant le choc, (b) Après le choc.

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 la cible. On considère que les particules perdent leurs énergies durant le chemin d'aller et de retour. La perte d'énergie est donnée par la relation suivante[10] :

$$\Delta E = K E_0 - E = X \left[K \varepsilon(E_0) + \frac{1}{\cos \theta} \varepsilon(E_1) \right] \quad (2.4)$$

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. La relation (2.4) démontre que la perte d'énergie augmente si la profondeur de pénétration des particules chargées augmente.

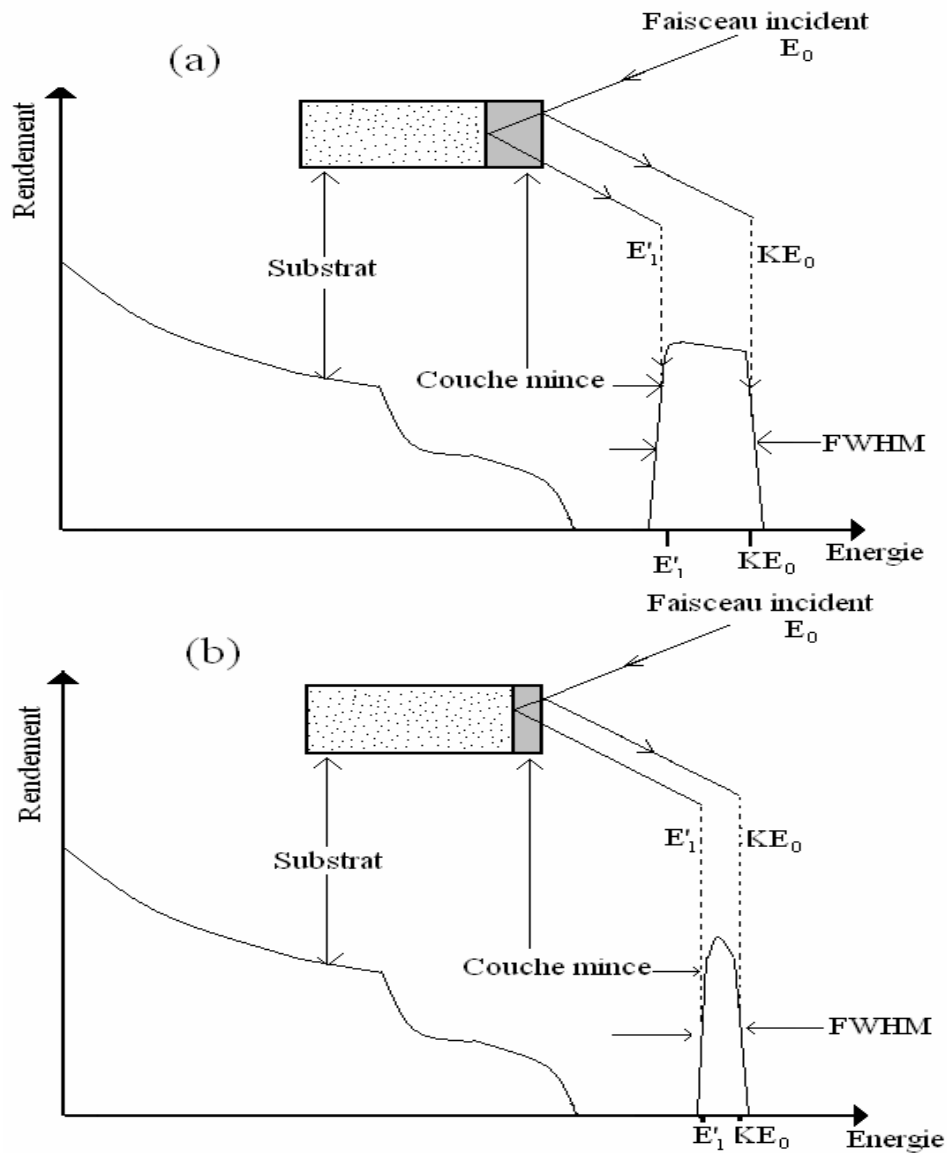


FIG. 2.3 – Schéma représentatif d'un spectre RBS avec la variation de FWHM en fonction l'épaisseur de la couche.

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.

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[9]. Elle est donnée par la relation suivante[11] :

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{Z_1 Z_2 e^2}{4E}\right)^2 \frac{4}{\sin^4 \theta} \frac{\left(\sqrt{1 - \left(\frac{M_1}{M_2} \sin \theta\right)^2} + \cos \theta\right)^2}{\sqrt{1 - \left(\frac{M_1}{M_2} \sin \theta\right)^2}} \quad (2.5)$$

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

Cette relation tient en compte les 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.

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 l'un des objectifs de cette technique est de mesurer les épaisseurs de nos couches. À partir des spectres RBS, on déduit 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[11] :

$$FWHM = \Delta E = KE_0 - E'_1 = \varepsilon Nt \quad (2.6)$$

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 rétrodiffusés (voir la figure 2.3).

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 (2.3) 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[11]. 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[12].

2.2.2 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 2.4).

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 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

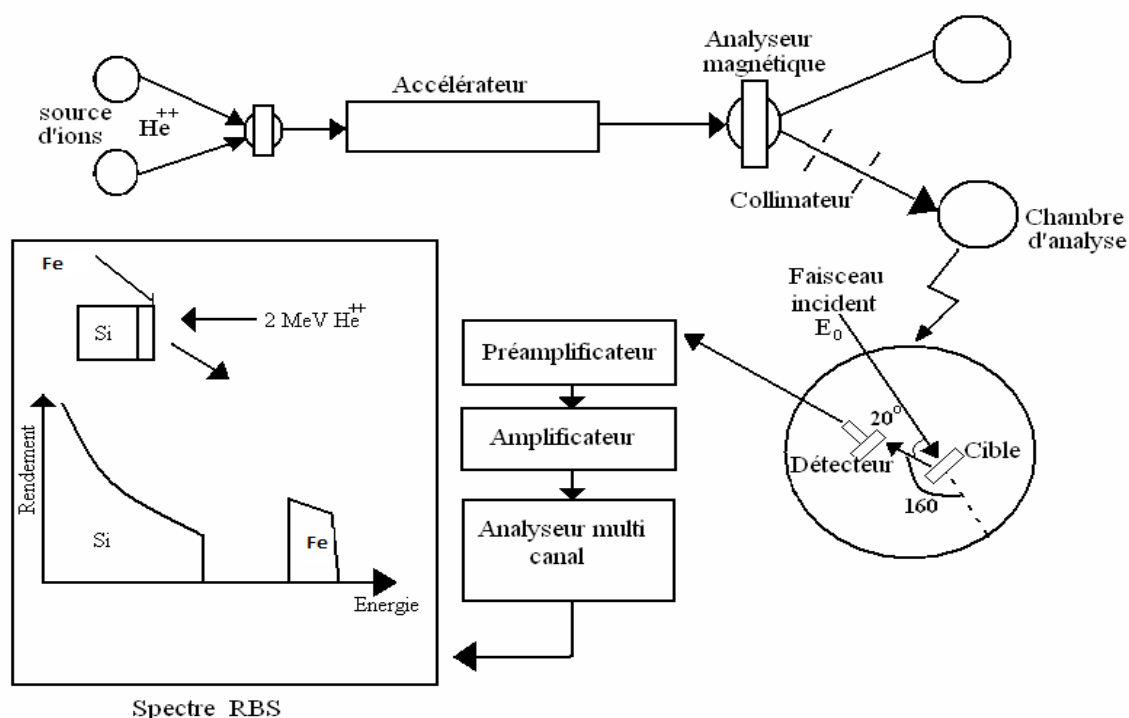


FIG. 2.4 – Dispositif expérimental de l'appareillage de la technique RBS.

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.

Un accélérateur de type Van de Graaff émet un faisceau d'ions helium avec une énergie égale à 2 MeV et un diamètre de 1 mm. 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 retrodiffusions avec un angle θ égal à 160° par rapport à la direction du faisceau incident. Le détecteur est à une distance de 12 cm de cible, ce dernier est alimenté par un courant de 50 nA.

En générale, la précision de la technique RBS dépend du temps mis pour recevoir et traiter le faisceau rétrodiffusion[13].

2.2.3 Simulation des spectres RBS

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 (6.05), 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. Dans cette simulation, on a utilisé les paramètres expérimentaux cités ci-dessus.

2.2.4 Résultats et discussion

Cette technique de caractérisation a été utilisée dans notre travail pour déterminer les épaisseurs des couches minces de Fe déposées sur des substrats de verre, de Si (100) et de Al. L'identification des épaisseurs des couches minces a été menée à l'aide de programme SIMNRA (6.05).

Système Fe/Al

La figure (2.5) montre certains spectres de RBS et leurs simulations exécutées par le logiciel SIMNRA. Les signaux de Al et de Fe 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 un mauvais état de surface du substrat de Al. Notons qu'on a utilisé de l'Aluminium pur. Dans la figure (2.5.(a)) le pic de surface est de Fe obtenu aux plus hautes énergies soit 1,51 MeV et dû à la diffusion des ions d'hélium sur les atomes de Fe des premiers plans. On observe un palier représentant le substrat de Al, dont on peut identifier le bord de Al à une énergie de 1,07 MeV. Pour la figure(2.5.(b)) le pic de surface est situé à une énergie de 1.50 MeV, le substrat Al à 0,6 MeV. Ainsi pour la figure(2.5.(c)), on a le pic de surface à 1,51 MeV, et le substrat Al à 0,94 MeV. Cette différence d'énergie augmente avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche de Fe, ce qui confirme l'effet de perte d'énergie avec la profondeur de la couche mince.

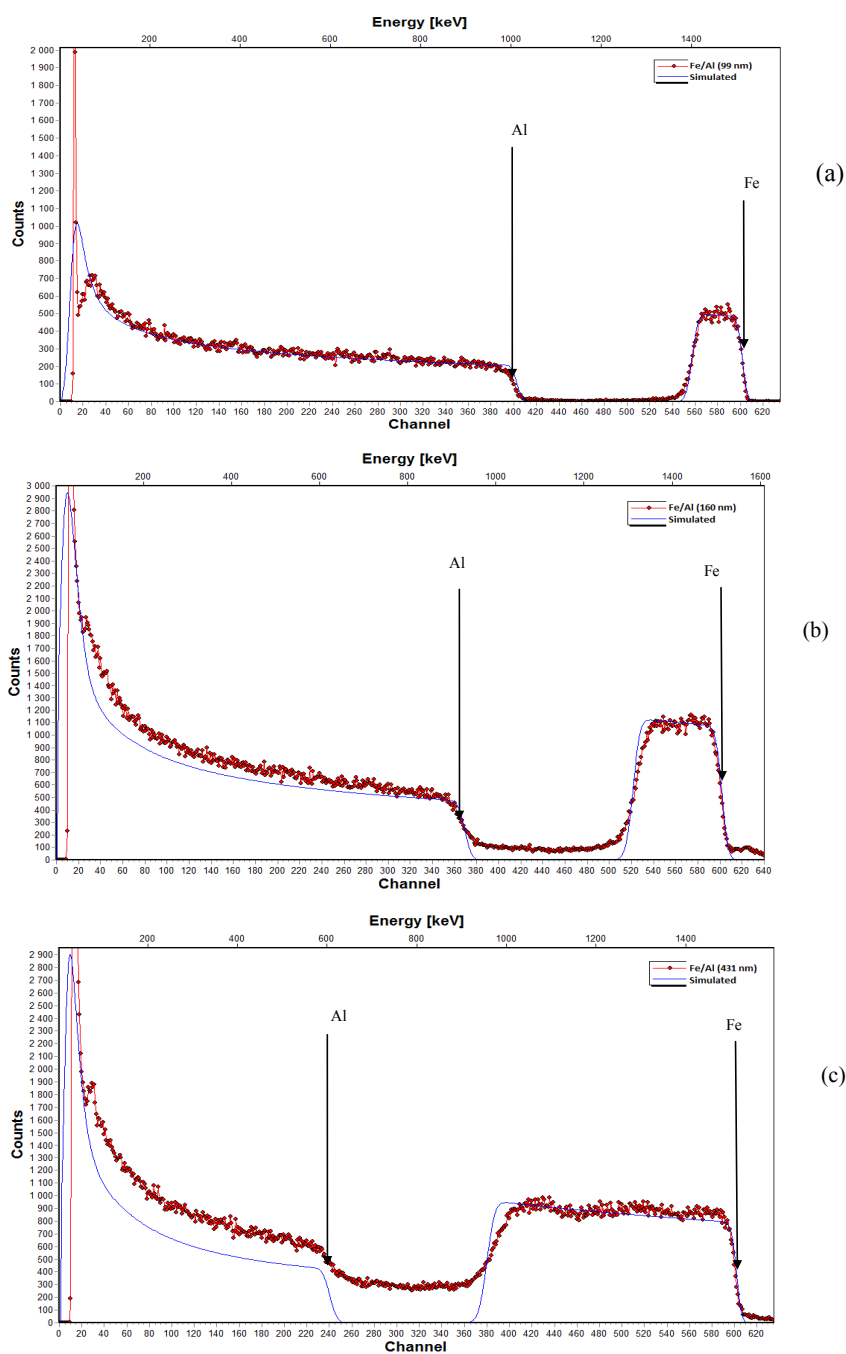


FIG. 2.5 – Exemples de spectres de RBS avec trois gammes d'épaisseurs dans le système Fe/Al : (a) faible épaisseur, (b) moyenne épaisseur, (c) grande épaisseur.

Système Fe/Si(100)

Pour le système Fe/Si(100) on observe dans la figure (2.6.(a)) que le pic de Fe est toujours à la surface avec une énergie de 1,51 MeV, alors que le palier de Si(100) se situe à une énergie de 1,06 MeV. Dans la figure (2.6.(b)) le pic de la surface est situé à une énergie de 1,51 MeV et le palier de Si(100) à 1,03 MeV. Pour la figure (2.6.(c)) le pic de Fe est situé à 1,51 MeV et le palier du substrat Si(100) se trouve à 0,69 MeV. Notons que l'écart d'énergie des particules chargées augmente avec l'épaisseur. L'absence de bosses à l'interface confirme le bon état de surface du substrat Si(100). Aussi la bonne séparation des deux pics de films de Fe et du substrat Si(100), indique l'absence d'interdiffusion entre les deux matériaux (Fe et Si(100)).

système Fe/Verre

Dans la figure (2.7.(a)) le pic de surface est de Fe obtenu aux plus hautes énergies soit 1,51 MeV, on observe un palier représentant bien le substrat de verre, on peut identifier les deux bords de Si à 1,06 MeV et d'oxygène à 0,64 MeV. Pour la figure (2.7.(b)) le pic de surface est situé à 1,52 MeV, le Si à 0,96 MeV et l'oxygène à 0,57 MeV. Pour la figure (2.7.(c)) le pic de surface de Fe à 1,52 MeV, le Si à 0,66 MeV et l'oxygène à 0,30 MeV. Cette différence d'énergie augmente avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche mince de Fe. Les signaux de verre et de Fe obtenus 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 le mauvais état de surface du substrat de verre (verre ordinaire). Comme aussi on peut remarquer l'interdiffusion entre le film de Fe et le verre.

Les différentes épaisseurs des couches minces de Fe déterminées à partir de simulation des spectres expérimentaux par le logiciel de simulation SIMNRA (6.05), sont montrées dans la table(2.1).

On voit que les valeurs indiquées sur la tableau ne reflètent pas une dépendance linéaire entre le temps de dépôt et les épaisseurs mesurées. Ceci peut être attribué à ce qui suit :

Les creuset utilisés n'ont pas les mêmes dimensions ; ce qui donne des courants électriques différents et variables, on peut avoir des résultats

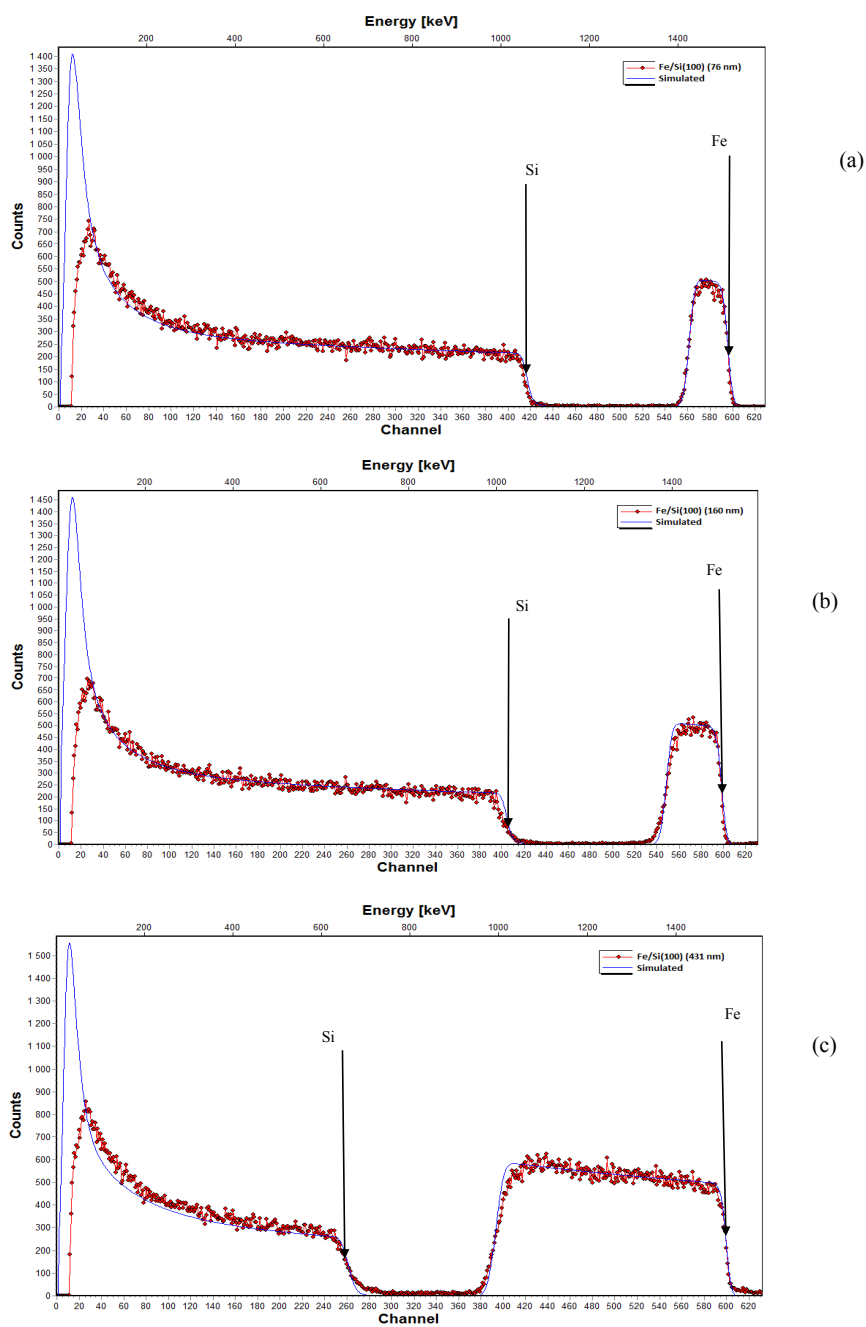


FIG. 2.6 – Exemples des spectres de RBS avec trois gammes d'épaisseurs dans le système Fe/Si(100) : (a) faible épaisseur, (b) moyenne épaisseur, (c) grande épaisseur.

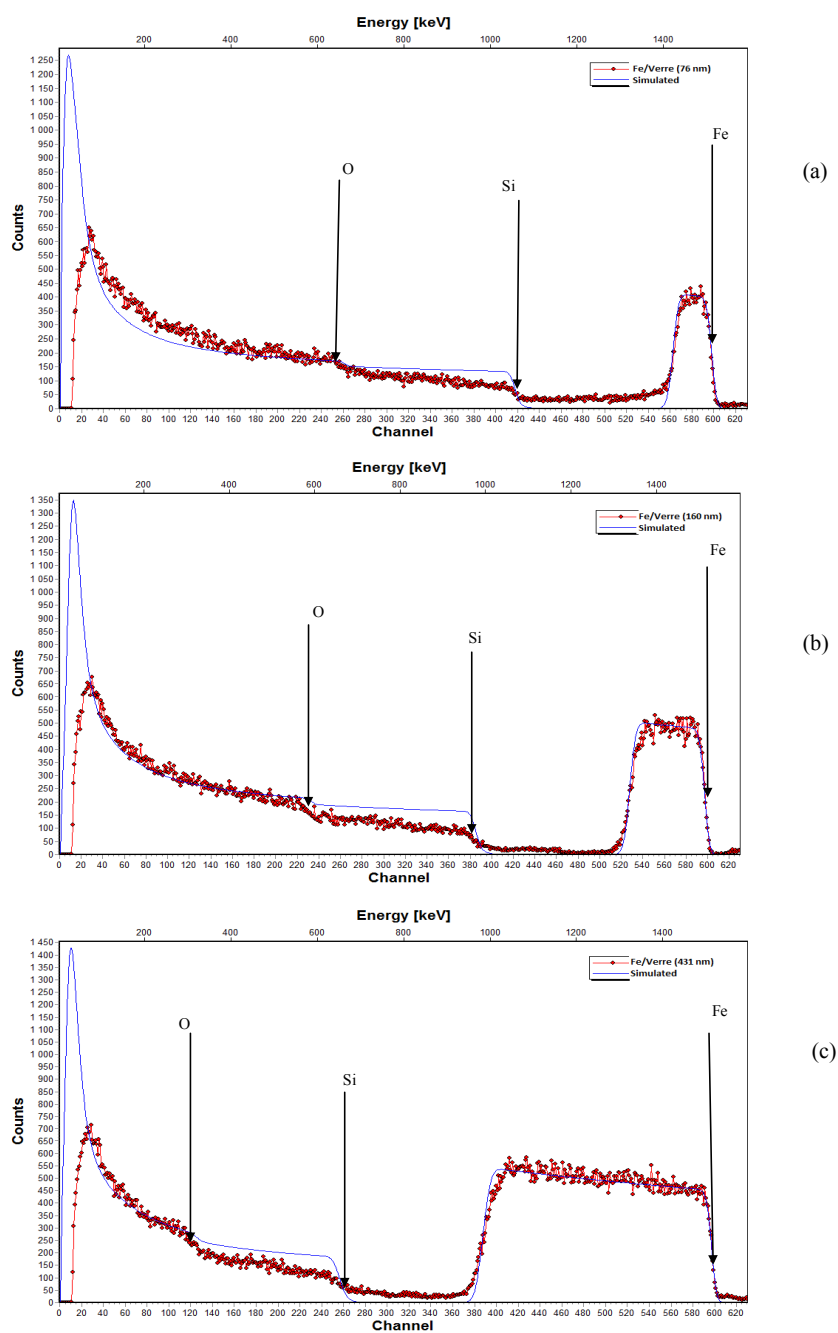


FIG. 2.7 – Exemples des spectres de RBS avec trois gammes d'épaisseurs dans le système Fe/Verre : (a) faible épaisseur, (b) moyenne épaisseur, (c) grande épaisseur.

Numéros de séries	Épaisseurs t(nm)	temps de dépôt (min)
01	76	40 :00
02	99	03 :51
03	105	62 :00
04	160	21 :40
05	431	05 :00

TAB. 2.1 – Épaisseurs et temps de dépôt des couches minces de Fe

différents.

Lors du dépôt, on a des instabilités du vide pendant la croissance, ce qui influe fortement sur la vitesse du dépôt de nos couches minces.

Lors de la caractérisation RBS des couches minces on avait aussi des instabilités du vide de l'enceinte d'analyse, ce qui perturbe le faisceau, donc on aura des spectres un peu décalés, ce qui influe sur la précision des épaisseurs mesurées.

Tous ces facteurs non contrôlables ont fait en sorte qu'on obtient les résultats mentionnés sur le tableau ci-dessus.

Vitesse de dépôt

L'effet d'instabilité de l'intensité de courant a une grande influence sur la variation de la vitesse de dépôt, c'est le cas dans cette étude. Nous 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 obtenir différentes épaisseurs de films de Fe. Après avoir déterminé les épaisseurs par RBS, nous avons calculé la vitesse de dépôt. Les 04 échantillons d'épaisseurs 76, 99, 105 et 160 nm ont une vitesse de dépôt comprise entre 0,3 et 4,3 Å/s, et pour l'échantillon d'épaisseur 431 nm, la vitesse est de 13,7 Å/s.

2.3 Analyse structurale(La diffraction des rayons X)

2.3.1 Introduction

La compréhension des matériaux est fortement associée à l'évolution des techniques de caractérisations et, dans le cas des solides cristallisés, les méthodes de diffraction ont apporté des informations essentielles concernant l'arrangement périodique tridimensionnel des atomes. Contrairement aux techniques spectroscopiques qui sondent principalement l'environnement local d'un atome, la diffraction renseigne sur l'ordre atomique à longue distance en exploitant le caractère ondulatoire d'un rayonnement (rayons X, électrons, neutrons) interagissant avec la matière. L'échantillon solide doit présenter une bonne cristallinité ou un état ordonné, c'est-à-dire que chaque atome ou molécule est disposé d'une certaine manière dans le cristal et cet arrangement se répète à l'identique dans les trois dimensions de l'espace. Cette technique exclut du champ d'étude tous les composés faiblement cristallisés ou amorphe pour lesquels aucun signal ne pourra être détecté. La localisation précise des atomes ainsi que les distances interatomiques et angles de liaison sont obtenus presque exclusivement à l'aide de la diffraction sur monocristal ou sur poudre.

Cette partie est consacrée à la description des méthodes de diffraction, conjointement à l'utilisation de techniques de simulation comme outil d'aide à la résolution structurale. La mise en oeuvre et le traitement des données seront abordés.

2.3.2 Étude théorique

La diffraction des rayons X a été développée initialement pour étudier les matériaux cristallins monodomaines, c'est-à-dire un unique cristal dans lequel les atomes sont parfaitement alignés.

Cependant un tel cristal est parfois difficile à obtenir, et on étudie plus couramment les matériaux sous forme de poudre ou des matériaux polycristallins. Une poudre (et les matériaux polycristallins) est une grande

quantité de grains cristallins, orientés au hasard les uns par rapport aux autres.

Un tel spectre permet d'obtenir un certain nombre d'informations (par exemple distance entre atomes dans le réseau cristallin), mais moins que le spectre d'un cristal monodomaine (aussi appelé monocristal). En effet, en faisant tourner le monocristal dans le faisceau de rayons X, on peut caractériser chaque face du cristal, et donc avoir une représentation tridimensionnelle très précise du matériau.

Il est également possible d'étudier la diffusion des rayons X sur des matériaux non cristallins. On parle alors de diffusion au lieu de diffraction. En étudiant des polymères (sous forme liquide ou solide vitreux, c'est-à-dire non cristallin) ou des cristaux liquides par exemple, on peut obtenir des informations concernant la distance moyenne entre les molécules ou leur orientation relative.

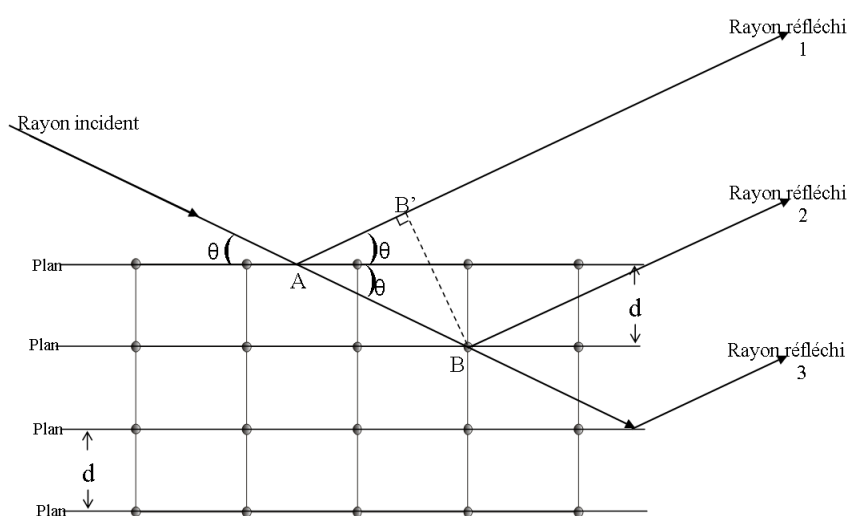


FIG. 2.8 – Illustration de la diffraction des rayons X (relation de Bragg)

Diffraction des rayons X :

La loi de Bragg

Quand un faisceau monochromatique de rayon X tombe sur la surface d'un cristal, il est réfléchi. Mais la réflexion a lieu seulement pour

certaines valeurs de l'angle d'incidence. Ces valeurs dépendent de la longueur d'onde du faisceau et des paramètres cristallins du réseau.

Un cristal peut être représenté par un ensemble de plans parallèles (Fig.2.8).

Le faisceau incident est partiellement réfléchi à chacun de ces plans qui agissent comme des miroirs.

Les rayons réfléchis sont collectés simultanément par un détecteur situé assez loin du cristal de sorte que les rayons réfléchis soient pratiquement parallèles.

Ceux-ci interfèrent au détecteur et l'interférence est constructive seulement si la différence de marche (d.d.m) entre deux rayons consécutifs est un multiple de la longueur d'onde λ . Soit

$$ddm = n\lambda, \quad n = 1, 2, 3, \dots \quad (2.7)$$

La ddm entre les rayons réfléchis 1 et 2 est

$$ddm = AB - AB' \quad (2.8)$$

Sachant que l'angle d'incidence = angle de réflexion on a :

$$AB' = AB \cos 2\theta \quad \text{et} \quad ddm = AB(1 - \cos 2\theta) \quad (2.9)$$

Si d désigne la distance entre les plans, il découle de la figure que

$$AB = \frac{d}{\sin \theta} \quad \text{et} \quad ddm = d\left(\frac{1 - \cos 2\theta}{\sin \theta}\right) \quad (2.10)$$

Or $\cos 2\theta = 1 - 2\sin^2 \theta \Rightarrow ddm = 2d \sin \theta$

Les conditions pour avoir des interférences constructives est donc

$$2d \sin \theta = n\lambda \quad (2.11)$$

C'est cette relation (2.11) qui exprime la loi de Bragg.

Question : Pourquoi on ne peut pas utiliser la lumière visible pour faire de la diffraction sur les cristaux ?

Réponse : on utilise rayons X pour la diffraction sur cristaux, car leurs longueur d'onde ($\lambda = 1,5406\text{\AA}$) est de même ordre (ou inférieure) que les paramètres de maille des cristaux.

Formulation de LAUE pour la diffraction des rayons X par un cristal

LAUE ne divise pas le cristal en plans mais le considère, formé d'objets microscopiques (ions, atomes, ...) identiques placés sur les sites \vec{R} d'un réseau de Bravais.

Le rayonnement incident peut être diffusé sur chacun de ces sites.

Considérons deux ions situés à la distance d l'un de l'autre. Soit un rayon

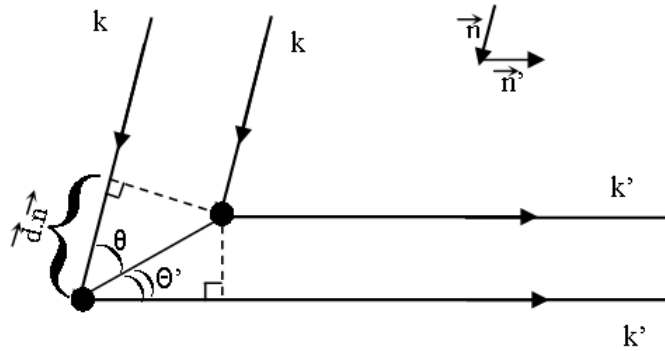


FIG. 2.9 – Schéma représentant la différence de marche (ddm)

X incident (de loin) selon la direction \vec{n} , avec une longueur d'onde λ et un vecteur d'onde $\vec{k} = \frac{2\pi}{\lambda}\vec{n}$. Un rayon diffusé sera observé dans la direction \vec{n}' avec une longueur d'onde λ (dans l'hypothèse d'une diffusion élastique) et un vecteur d'onde $\vec{k}' = \frac{2\pi}{\lambda}\vec{n}'$, si la d.d.m ($ddm = \vec{d}\cdot\vec{n} - \vec{d}\cdot\vec{n}'$) entre les deux vecteurs diffusés par les deux ions est un multiple entier de λ .

Sur la figure (2.9) on voit que

$$d \cos \theta + d \cos \theta' = \vec{d}\cdot(\vec{n} - \vec{n}') \quad (2.12)$$

La condition pour une interference constructive s'écrit donc :

$$\vec{d}\cdot(\vec{n} - \vec{n}') = m\lambda \quad m : \text{entier} \quad (2.13)$$

Soit

$$\vec{d}\cdot(\vec{k} - \vec{k}') = 2\pi m \quad (2.14)$$

Si on considère non seulement deux centres de diffusion mais, un arrangement d'ions situés sur les sites d'un réseau de Bravais, la condition pour

chaque paire d'ions reliés par les vecteurs du réseau \vec{R} s'écrit :

$$\vec{R} \cdot (\vec{k} - \vec{k}') = 2\pi m \quad (2.15)$$

Cette dernière peut s'écrire :

$$e^{i(\vec{k}-\vec{k}') \cdot \vec{R}} = 1 \quad \text{pour tout vecteur du réseau.} \quad (2.16)$$

Formulation de LAUE et réseau réciproque :

Considérons un ensemble de points (de vecteurs) \vec{R} constituant un réseau de Bravais. Une onde plane $e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}}$ n'a pas en général la périodicité du réseau (ie : $e^{i\vec{k} \cdot \vec{r}} \neq e^{i\vec{k} \cdot (\vec{r} + \vec{R})}$). Cependant pour certains vecteurs \vec{K} , l'onde possède la périodicité du réseau.

L'ensemble de ces vecteurs \vec{K} constitue le réseau réciproque du réseau de Bravais considéré. Analytiquement, ces vecteurs \vec{K} satisfont

$$e^{i\vec{K} \cdot \vec{R}} = 1, \quad \text{pour tout vecteur } \vec{R} \text{ du réseau direct.}$$

Soit $\vec{K} \cdot \vec{R} = 2\pi \times \text{entier}$.

Si on revient maintenant à la condition de LAUE, on voit que la condition d'avoir une interférence constructive est que $\vec{k}' - \vec{k}$ soit un vecteur du réseau réciproque :

$$\vec{k}' - \vec{k} = \vec{K}. \quad (2.17)$$

Évidemment chaque vecteur \vec{K} peut s'écrire dans une base de (03) vecteurs fondamentaux $\vec{b}_1, \vec{b}_2, \vec{b}_3$ du réseau réciproque :

$$\vec{K} = m_1 \vec{b}_1 + m_2 \vec{b}_2 + m_3 \vec{b}_3 \quad (2.18)$$

m_i entiers et \vec{b}_i ($i = 1, 2, 3$) sont des vecteurs du réseau réciproque qui s'écrivent en fonction de $\vec{a}_1, \vec{a}_2, \vec{a}_3$:

$$\vec{b}_1 = 2\pi \frac{\vec{a}_2 \times \vec{a}_3}{\vec{a}_1 \cdot (\vec{a}_2 \times \vec{a}_3)} \quad \text{et} \quad \vec{b}_i \cdot \vec{a}_j = 2\pi \delta_{ij} \quad (2.19)$$

2.3.3 Diffraction des rayons X : (méthode expérimentale)

La diffraction des rayons X est une technique d'identification des structures cristallines. Lorsqu'on irradie la matière avec un faisceau de rayons

X, différentes interactions vont se produire. Parmi celle-ci, on notera la diffusion élastique des phonons incidents par les atomes. Or dans un cristal, l'organisation périodique des atomes va conduire à la formation des interférences entre les ondes diffusées par les atomes, on notera donc des maxima d'intensité diffusés dans certaines directions de l'espace alors que dans les autres directions l'intensité diffusée sera faible ou pratiquement nulle, c'est le phénomène de la diffraction.

La diffraction des rayons X peut servir soit à déterminer les caractéristiques cristallographiques d'une phase, soit à identifier une phase présente dans un échantillon en identifiant ses caractéristiques et en les comparant à celle d'une base de données.

Il existe plusieurs techniques expérimentales de diffraction des rayons X, la méthode de LAUE utilisée pour l'analyse des monocristaux et la détermination des structures cristallographiques et la méthode des poudres ou méthode de Debye-Sherrer utilisée sur des polycristaux, principalement pour identification des phases.

Le principe de cette seconde méthode est de repérer les angles auxquels sont diffractés les rayons X afin d'identifier les plans cristallographiques responsables de cette diffraction et d'en calculer les distances interréticulaires caractéristiques d'une phase donnée grâce à la formule de Bragg

$$2d \sin \theta = n\lambda. \quad (2.20)$$

Pour cela, on enregistre grâce à un détecteur l'intensité des rayons X émis par l'échantillon en fonction de l'angle de déviation (2θ) du faisceau incident (voir Fig.2.10). La courbe obtenue est caractéristique de l'échantillon.

Facteur de structure géométrique :

L'équation $\vec{R} \cdot (\vec{k} - \vec{k}') = 2\pi m$, donnent toutes les réflexions possibles pour un réseau cristallin donné. Ces réflexions sont représentées par les nœuds du réseau réciproque

$$\vec{G}_{hkl} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3 \quad (2.21)$$

Les intensités relatives des diverses réflexions dépendent du contenu de la maille ; ie, du nombre, de la position et de la distribution électronique

des atomes de la maille.

Étudions maintenant la liaison entre le contenu de la maille et les intensités des réflexions. Considérons un cristal avec un motif de n atomes comme par exemple le carbone dans la structure diamant ou bien le ZnS dans la structure zincblende ou le motif contient deux atomes ($n = 2$) identiques dans le diamant mais différente dans ZnS. chaque atome du motif va diffuser une certaine amplitude et l'intensité de la radiation diffractée dépendra de la façon dont les rayons diffusés interfèrent. Ceci conduit à un pic de Bragg dans le cas d'une interférence constructive et à l'absence de pic dans une interférence destructive.

Si $\vec{d}_1, \vec{d}_2, \vec{d}_3, \dots, \vec{d}_n$ désignent les n atomes de maille, on montre que les amplitudes diffusées par chacun des n atomes sont respectivement proportionnelles à

$$f_1 e^{i\vec{K} \cdot \vec{d}_1}, f_2 e^{i\vec{K} \cdot \vec{d}_2}, f_3 e^{i\vec{K} \cdot \vec{d}_3}, \dots, f_n e^{i\vec{K} \cdot \vec{d}_n}. \quad (2.22)$$

L'amplitude résultante de tous les atomes de la maille est donc proportionnelle à

$$S_K = \sum_{j=1}^n f_j e^{i\vec{K} \cdot \vec{d}_j} \quad (2.23)$$

S_K le facteur de structure, n'est pas nécessairement réel; l'intensité diffusée est fonction de $S_K \cdot S_K^*$ où S_K^* est le complexe conjugué de S_K .

f_j est appelé facteur de forme atomique, il dépend de la structure interne de l'atome diffusant.

Des atomes identiques possèdent le même facteur de forme.

On parle d'une réflexion (hkl) lorsque le vecteur \vec{K} du réseau réciproque est

$$\vec{K} = h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3. \quad (2.24)$$

Pour cette réflexion, nous avons

$$\vec{K} \cdot \vec{d}_j = (h\vec{b}_1 + k\vec{b}_2 + l\vec{b}_3) \cdot (x_j\vec{a}_1 + y_j\vec{a}_2 + z_j\vec{a}_3) \quad (2.25)$$

$$= 2\pi(x_j h + y_j k + z_j l) \quad (2.26)$$

et

$$S_{hkl} = \sum_j f_j e^{i2\pi(x_j h + y_j k + z_j l)} \quad (2.27)$$

2.3.4 Diffractomètre à rayons X

Les propriétés structurales des couches minces de Fe/Verre, Fe/Si(100) et Fe/Al ont été déduites à partir des spectres de diffraction des rayons X aux grands angles.

Les échantillons de Fe préparés au laboratoire de couches minces de l'Université Ferhat Abbas-Sétif, ont fait l'objet d'une caractérisation par diffraction de rayons X à l'Université de Jijel. Les échantillons ont été caractérisés par un diffractomètre de type D8 ADVANCE-BRUKER (Fig. 2.11) utilisant un rayonnement X monochromatique produit par un générateur à anticathode en cuivre (Cu). Un filtre ou un monochromateur est utilisé pour sélectionner la raie K_{α} du Cu à 40 mA et 40 KV, de longueur d'onde $\lambda = 1,54 \text{ \AA}$. On utilise le diffractomètre Bragg-Brentano (Fig. 2.10) ou le mode $\theta - 2\theta$ (2θ est comprise entre 30 et 100°).

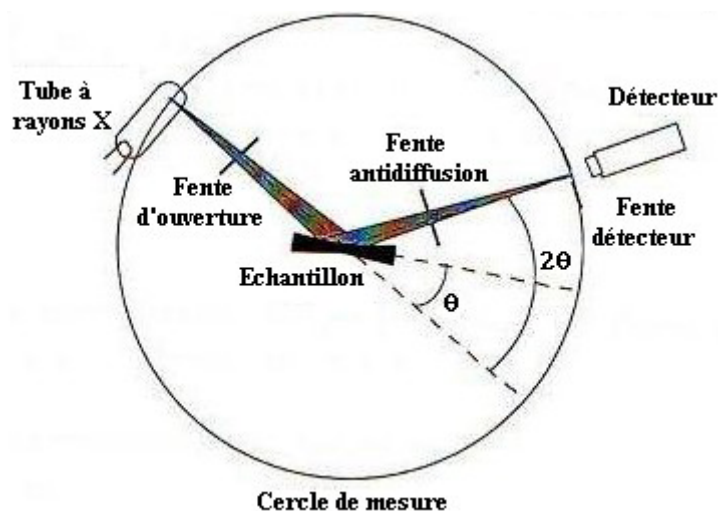


FIG. 2.10 – Schéma du principe du diffractomètre en mode Bragg-Brentano

Cette technique non destructive et très performante nous a permis de déterminer la structure cristalline, la texture, le paramètre de maille et la taille des grains et aussi les contraintes (stress) de nos couches minces de Fe.

Nous avons réalisé nos études sur une gamme de $2\theta = 30^{\circ} - 100^{\circ}$; elle est suffisante pour l'identification des principaux pics de Fe, Si(100) et Al.

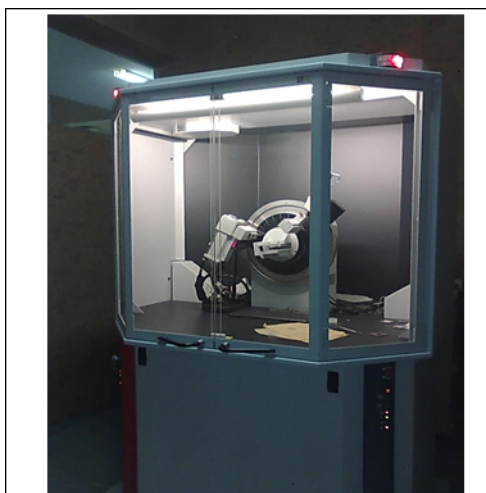


FIG. 2.11 – Diffractomètre BRUKER

Les spectres de rayons X obtenus ont été simulés (identifiés) à l'aide du logiciel X'Pert HighScore qui contient la base de données PDF-2 (fiche ASTM, JCPDS de Fe et autre élément chimique), il identifie les pics et donne des informations sur les angles 2θ , les intensités (counts) I des pics, FWHM (la largeur à mi-hauteur des pics), les indices de miller (hkl), la nature de la maille élémentaire, les différents paramètres de maille (a, b, c), le groupe du matériau, ... La fiabilité de la fiche ASTM (Quality) et la référence bibliographique qui permet d'obtenir ces données, sont également des informations très importantes.

2.3.5 Résultats et discussions

Spectres de diffraction des rayons X

Dans certains matériaux polycristallins, quelques orientations prédominent. Cette orientation préférentielle ou texture est due aux caractéristiques géométriques des cristaux. La connaissance de la texture est importante, car elle influe sur les propriétés physiques du matériau.

Les couches minces de Fe déposées par les techniques en phase vapeur (CVD, PVD) présentent en général une orientation préférentielle ou texture. Cette orientation préférentielle varie selon le type de substrat et la méthode d'élaboration. Néanmoins, on peut changer la texture en jouant sur les

paramètres de l'atmosphère gazeuse, la vitesse de dépôt, la nature de substrat et aussi sa température...

Pour les films de Fe élaborés par PVD, déposés sur des substrats amorphes (verre) et semi-conducteurs (Si(111) et Si(100)) [6], l'orientation la plus fréquemment observée est celle selon la direction (110) [16].

Comme on peut trouver des couches de Fe déposées sur différents types de substrats, avec une autre orientation préférentielle (002) ou une absence de texture [17].

Système de Fe/Al

La figure (2.12) montre quelques spectres de rayons X des couches minces de Fe déposées sur des substrats de Al, pour différentes épaisseurs (76, 99, 105, 160 et 431 nm).

On observe des pics de Al situés aux positions suivantes : $2\theta = 38,5, 78,2$ et $99,1^\circ$ pour tous les échantillons, ces pics sont identifiés comme suit : Al(111), Al(311) et Al(400) respectivement.

On observe aussi des pics aux positions $2\theta = 44,8, 65,1,$ et $99,1^\circ$ pour tous les échantillons, ces pics sont identifiés par les orientations suivantes : (110), (200) et (220); ces pics présentent bien Fe de structure cubique centrée. On observe aussi un autre pic de Fe situé à $2\theta = 82,5^\circ$ pour l'épaisseur 431 nm qui est identifié comme (211).

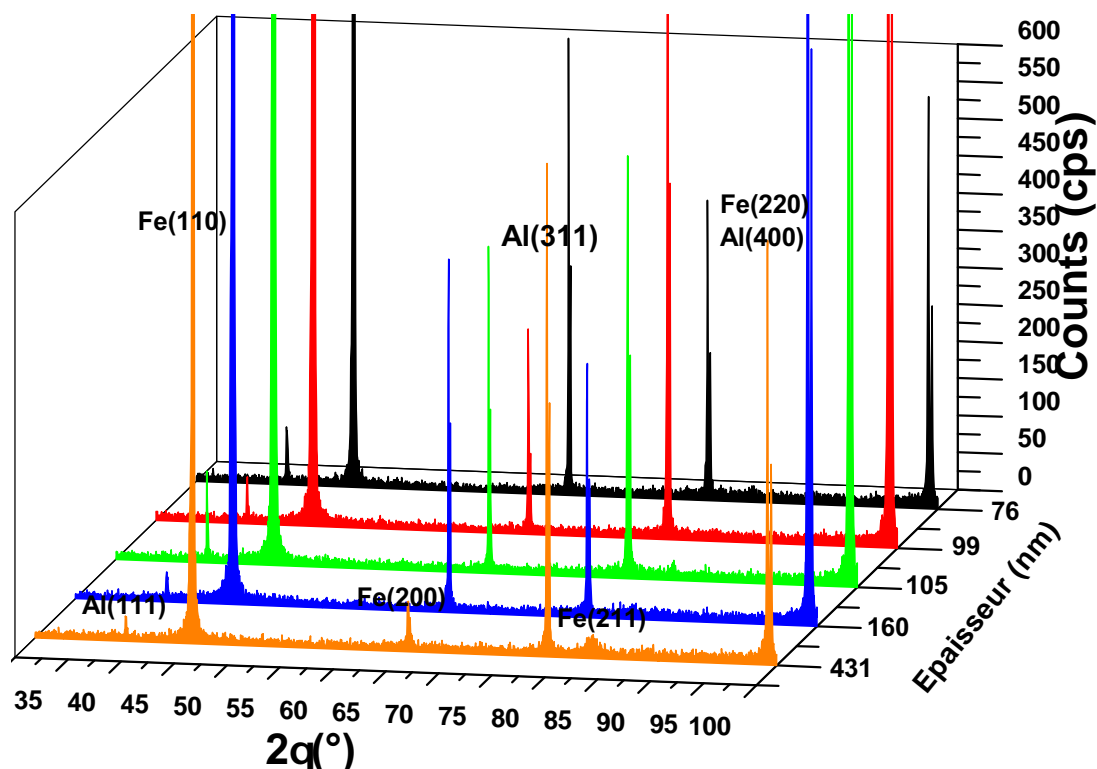


FIG. 2.12 – Spectres de diffraction des rayons X des films de Fe/Al pour différentes épaisseurs de Fe.

Système de Fe/Si(100)

Dans la figure(2.13) on présente les spectres de diffraction des rayons X des films de Fe/Si(100) pour diverses épaisseurs.

On observe un pic de Silicium à $2\theta = 68,9^\circ$ pour tous les échantillons. Ce pic est identifié comme (100) du Silicium monocristallin. On observe aussi un pic à $2\theta = 44,9^\circ$ pour tous les échantillons, qui correspond à la direction (110) de Fe. On a aussi un autre pic pour l'épaisseur 431 nm à $2\theta = 82,6^\circ$ correspondant à la direction (211) du Fe avec une structure cubique centrée.

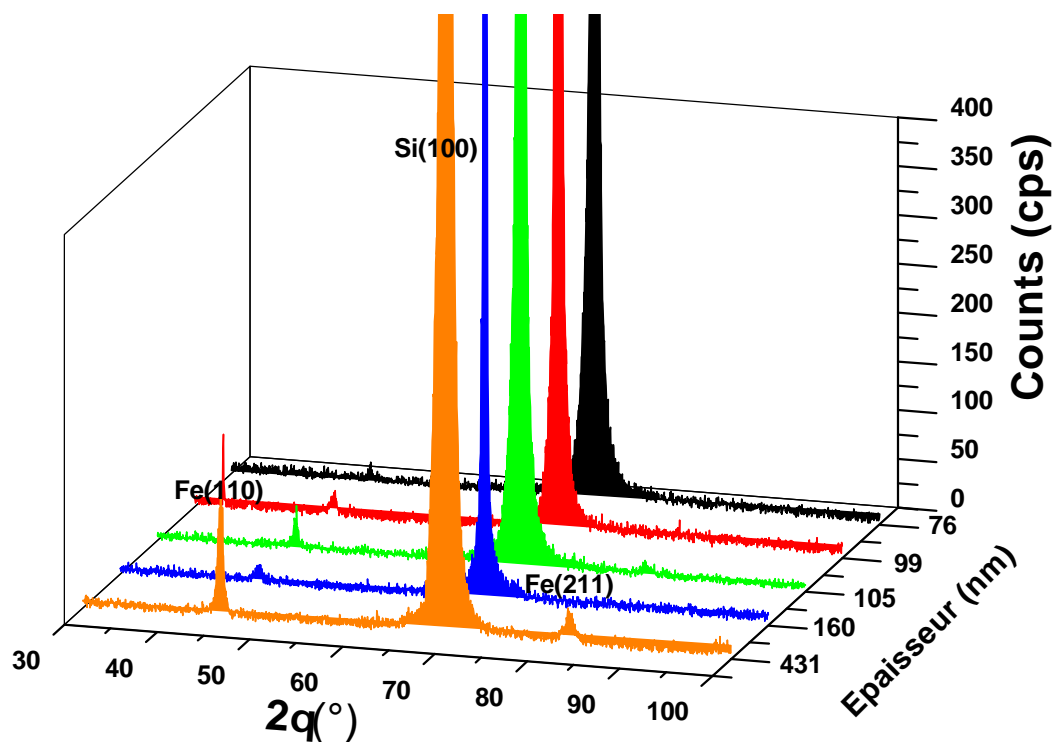


FIG. 2.13 – Spectres de diffraction des rayons X des films de Fe/Si(100) pour différentes épaisseurs de Fe.

système de Fe/Verre

La figure(2.14) montre les spectres de diffraction des rayons X des films de Fe/Verre pour différentes épaisseurs de Fe.

On observe, pour tous les échantillons, un pic de Fe à $2\theta = 44,8^\circ$ d'orientation (110) ; la couche la plus mince (76 nm) montre un autre pic de Fe à $2\theta = 65,6^\circ$ d'orientation (200) et aussi la couche la plus épaisse (431 nm) montre un pic à $2\theta = 82,7^\circ$ d'orientation (211) de la structure cubique centrée. On remarque aussi que les intensités des pics augmentent avec l'augmentation de l'épaisseur de Fe.

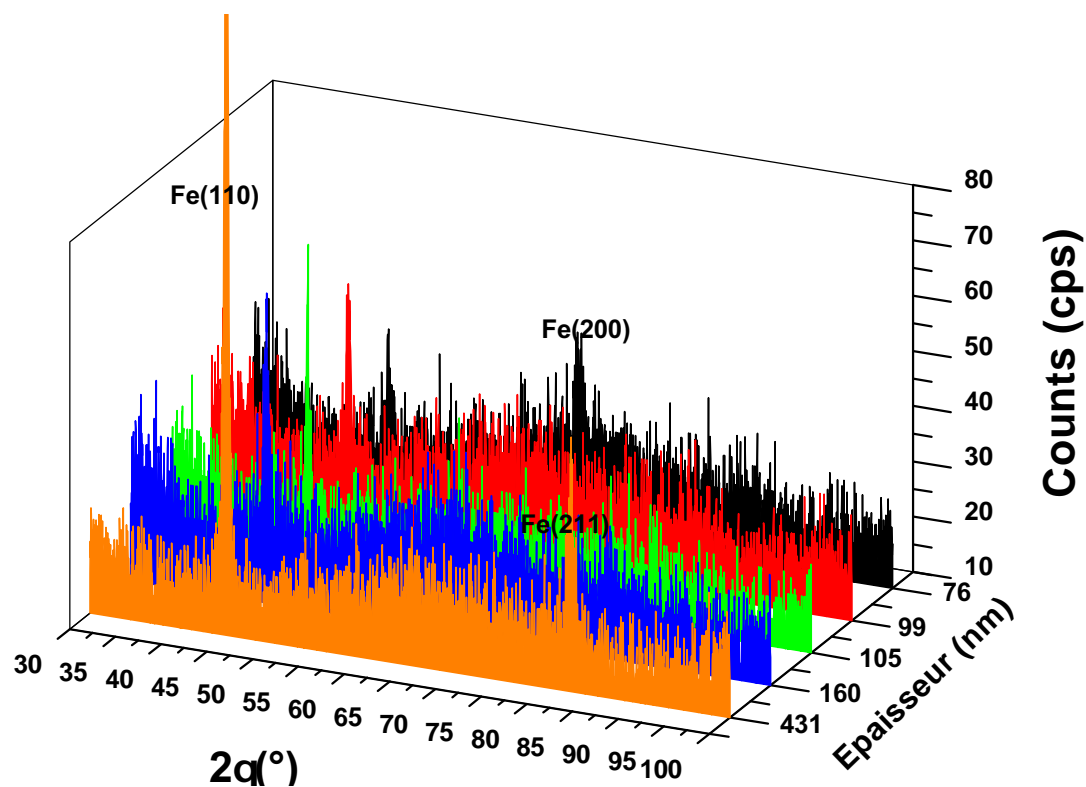


FIG. 2.14 – Spectres de diffraction des rayons X des films de Fe/Verre pour différentes épaisseurs de Fe.

Texture

On représente dans les tables(2.2, 2.3, 2.4), le rapport des intensités des raies de diffraction, par exemple $\frac{I_{[211]}}{I_{[110]}}$ des films de Fe/Al, Fe/Si(100) et Fe/Verre en fonction de l'épaisseur de la couche mince Fe.

Épaisseurs (nm)	76	99	105	160	431
$\frac{I_{[200]}}{I_{[110]}}$	0,13	0,03	0,37	0,07	0,01
$\frac{I_{[220]}}{I_{[110]}}$	0,11	0,27	1,47	0,22	0,17
$\frac{I_{[211]}}{I_{[110]}}$	/	/	/	/	0,004
$\frac{I_{[110]}}{I_{[220]}}$	8,63	3,66	0,67	4,47	5,68
$\frac{I_{[200]}}{I_{[220]}}$	1,13	0,12	0,25	0,32	0,10
$\frac{I_{[211]}}{I_{[220]}}$	/	/	/	/	0,02

TAB. 2.2 – Les rapports des intensités en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Al.

Épaisseurs (nm)	76	99	105	160	431
$\frac{I_{[211]}}{I_{[110]}}$	/	/	/	/	0,19

TAB. 2.3 – Les rapports des intensités en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Si(100).

Pour les couches minces Fe/Al, pour l'épaisseur $t=76$ nm on n'a pas de texture, on a une forte texture $\langle 220 \rangle$ pour $t=105$ nm, et aussi une texture $\langle 220 \rangle (\langle 110 \rangle)$ pour les épaisseurs 99, 160, 431 nm (Tab. 2.2).

Dans les films Fe/Si(100), un seul pic (110) existe pour les échantillons de 76 à 160 nm alors que pour l'épaisseur 431 nm, le rapport d'intensité des raies $\frac{I_{[211]}}{I_{[110]}}$ est égal à 0,19. Donc, on a une texture $\langle 110 \rangle$ pour tous les échantillons (Tab. 2.3).

Pour les films Fe/Verre d'épaisseur 76 nm, le rapport d'intensité des raies $\frac{I_{[200]}}{I_{[110]}}$ est égal à 1,26 et pour l'épaisseur 431 nm, le rapport d'intensité $\frac{I_{[211]}}{I_{[110]}}$ est égal à 0,18, et tous les autres rapports sont nuls, car seul le pic (110) existe. Pour des grains orientés aléatoirement (Fe en poudre), le rapport $\frac{I_{[200]}}{I_{[110]}}$ est égal à 0,38. Donc, on en déduit que la couche d'épaisseur 76 nm a la texture $\langle 200 \rangle$. Pour les autres épaisseurs, une variation de l'orientation préférentielle de (200) à (110) est observée pour cette série de Fe/Verre.

Donc, forte texture $\langle 200 \rangle$ pour $t=76$ nm ensuite texture $\langle 110 \rangle$ pour les autres échantillons (Tab. 2.4).

Épaisseurs (nm)	76	99	105	160	431
$\frac{I_{[200]}}{I_{[110]}}$	1,26	/	/	/	/
$\frac{I_{[211]}}{I_{[110]}}$	/	/	/	/	0,18

TAB. 2.4 – Les rapports des intensités en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Verre.

paramètre de maille

Le paramètre de maille est un paramètre très utile à connaître car il peut nous renseigner sur les contraintes (stress) éventuelles qui s'exercent sur le film. La différence entre la valeur du paramètre de maille massif (bulk en anglais) et la valeur mesurée par la diffraction des rayons X nous donne le strain ε^{hkl} [18]

$$\varepsilon^{hkl} = \frac{a_{\text{mesuré}} - a_{\text{massif}}}{a_{\text{massif}}} \quad (2.28)$$

Il peut être positif, négatif ou nul :

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

Le paramètre de maille est calculé à partir de la relation entre la distance interréticulaire et les indices de Miller (hkl). Dans notre cas, le Fe a une structure cubique centrée, donc le paramètre de maille a est donné par [19, 20]

$$a = \frac{\lambda^2(h^2 + k^2 + l^2)}{4 \sin^4 \theta} \quad (2.29)$$

On présente dans les tables (2.5, 2.6, 2.7), le paramètre de maille en fonction de l'épaisseur des films de Fe pour les systèmes Fe/Al, Fe/Si(100) et Fe/Verre suivant les différentes textures :

Épaisseurs (nm)	76	99	105	160	431
paramètre de maille suivant (110) (Å)	2,858	2,858	2,859	2,859	2,859
paramètre de maille suivant (200) (Å)	2,864	2,864	2,859	2,859	2,859
paramètre de maille suivant (220) (Å)	2,862	2,862	2,860	2,862	2,862
paramètre de maille suivant (211) (Å)	/	/	/	/	2,862

TAB. 2.5 – Le paramètre de maille en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Al

Épaisseurs (nm)	76	99	105	160	431
paramètre de maille suivant (110) (Å)	2,849	2,840	2,849	2,849	2,849
paramètre de maille suivant (211) (Å)	/	/	/	/	2,859

TAB. 2.6 – Le paramètre de maille en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Si(100)

Épaisseurs (nm)	76	99	105	160	431
paramètre de maille suivant (110) (Å)	2,865	2,865	2,858	2,858	2,858
paramètre de maille suivant (200) (Å)	2,844	/	/	/	/
paramètre de maille suivant (211) (Å)	/	/	/	/	2,856

TAB. 2.7 – Le paramètre de maille en fonction de l'épaisseur pour le système Fe/Verre

Dans les tables (2.5, 2.6, 2.7) on montre l'évolution du paramètre de maille des films de Fe en fonction de l'épaisseur de la couches pour les systèmes Fe/Al, Fe/Si(100) et Fe/Verre. Le paramètre de maille est calculé pour différents pics de diffraction. Les valeurs du paramètre de maille sont comprises entre 2,840 et 2,865 Å.

Notons que les valeurs trouvées pour le paramètre de maille dans l'ensemble de nos échantillons, ont des valeurs plus petites ou plus grandes que celle de Fe massif citée dans la littérature 2,861 Å[21]. Ce qui indique l'existence de contraintes de compression ($\varepsilon^{hkl} < 0$) et de dilatation ($\varepsilon^{hkl} > 0$) dans les grains. On note qu'il n'y a pas une variation claire du paramètre de maille avec l'épaisseur des couches de Fe. On remarque que pour une épaisseur donnée le paramètre de maille dans le système Fe/Si(100) est plus petit que ceux mesurés dans les systèmes Fe/Al et Fe/Verre.

Les contraintes et la vitesse de dépôt

Les déformations ou "strain" ε sont calculées à partir des paramètres de maille $a_{\text{mesuré}}$ et a_{massif} de Fe (voir relation (2.28)). Les résultats sont dans la table suivante :

Pour le système Fe/Al, ε est négatif et petit (compression) et est égal à -0,1 % pour les films de $t < 100$ nm et diminue à -0,07 % pour $t > 100$ nm.

Épaisseurs t(nm)	76	99	105	160	431
ε (%) Fe/Al	-0,10	-0,10	-0,07	-0,07	-0,07
ε (%) Fe/Si(100)	-0,42	-0,73	-0,42	-0,42	-0,42
ε (%) Fe/Verre	+0,14	+0,14	-0,10	-0,10	-0,10

TAB. 2.8 – Les déformations ε en fonction de l'épaisseur pour tous les systèmes

Dans le système Fe/Si(100), ε est trouvé négatif et constant (-0,42 %) pour tous les échantillons sauf pour $t=99$ nm, $\varepsilon=-0,73$ %.

Pour Fe/Verre, nous avons ε petit et positif (+0,14 %) pour les couches minces de Fe fines (<100 nm), cependant pour $t>100$ nm, ε est négatif et constant (-0,1 %).

Il y a plus de contraintes dans le système Fe/Si(100) que les autres systèmes.

Mesure de la taille moyenne des grains

Il est possible, à partir des spectres de diffraction, de calculer la taille des cristallites. Plusieurs paramètres peuvent affecter de manière considérable la largeur des pics de diffraction. Parmi ces paramètres on peut citer :

– La contrainte :

Les contraintes sont les forces internes à la matière. Si chaque cristallite est soumise à une contrainte différente, on a alors une juxtaposition de pics voisins qui se superposent. Si ces forces induisent des déformations de la maille cristalline (déformation élastique), elles vont faire varier les distances interréticulaires d , et donc décaler la position des pics. Si l'on mesure le décalage des pics, on peut donc en déduire l'état de contrainte de l'échantillon. Ces contraintes internes peuvent être source d'imperfections.

– La taille des cristallites :

Plus les cristallites sont petits, plus les pics sont larges. Lorsque l'on est en condition de Bragg pour un plan de famille (hkl) ($2\theta = 2\theta_{hkl}$), les rayons diffractés par deux plans atomiques successifs sont en phase, donc les intensités s'additionnent. Si nous nous écartons légèrement des conditions de Bragg ($2\theta = 2\theta_{hkl} + \epsilon$), il n'y a alors

qu'un léger déphasage α entre les rayons diffractés par deux plans successifs mais les intensités s'additionnent également. En fait, le rayon diffracté par le premier plan atomique sera annulé par le premier rayon en opposition de phase, donc le rayon diffracté par le plan d'équation $k_x + k_y + k_z = m$ avec $m = \frac{\pi}{\alpha}$. S'il y a moins de m plans dans le cristallite, l'intensité ne sera pas nulle pour cet angle de diffraction ($2\theta_{hkl} = \epsilon$), ce sera le cas si le cristallite est plus petit que $m.d$, d étant la distance interréticulaire des plans (hkl). Par rapport à un pic mesuré sur un échantillon présentant des cristallites de taille $\gg m.d$, on observe un élargissement du pic, ou la largeur à mi-hauteur. La taille des grains D est donné par la formule de Sherrer[22]

$$D = \frac{f \cdot \lambda}{\Delta(2\theta) \cos \theta} \quad (2.30)$$

où f le facteur de forme qui vaut 1 ou 0,9 (selon la forme supposée du cristallite), $\Delta(2\theta)$ désigne la largeur à mi-hauteur et λ la longueur d'onde des rayons X ($\lambda = 1,54056 \text{ \AA}$ dans notre cas).

– L'appareil :

Une part significative de l'élargissement des pics peut être attribuée à l'appareil. Cette élargissement est en général plus faible que celui induit par les deux facteurs précédents et surtout, il est mesurable sur le spectre d'un échantillon monocristallin de grande taille et peu contraint.

Nous présentons la taille des grains en fonctions de l'épaisseur de Fe dans le table(2.9)

Épaisseurs (nm)	76	99	105	160	431
D (nm) pour Fe/Al	54,7	43,6	72,8	54,7	43,6
D (nm) pour Fe/Si(100)	18,1	10,9	18,2	13,7	13,6
D (nm) pour Fe/Verre	9,2	15	29,9	11,2	21,8

TAB. 2.9 – La taille des grains en fonction de l'épaisseur pour les systèmes Fe/Verre, Fe/Al et Fe/Si(100)

Dans le tableau (2.9), on montre la variation de la taille des grains des films de Fe dans la direction (110) en fonction de l'épaisseur du film pour les différents substrats.

On trouve que pour Fe/Verre, la taille des grains augmente lorsque l'épaisseur augmente sauf pour $t=160$ nm ($D = 11,2$ nm) qui est comparable à D de $t=76$ nm.

Cependant pour le système Fe/Si(100), la taille des grains est comprise entre 10 et 18 nm pour toutes les épaisseurs, il n'y a pas une variation remarquable.

La taille des grains pour le système Fe/Al est grande par rapport aux tailles trouvées pour les autres système, on n'observe pas de variation monotone par rapport à l'épaisseur du film de Fe.

Effet de l'épaisseur pour une vitesse de dépôt fixe

Les films d'épaisseurs $t=76$ nm et $t=105$ nm ont été déposés avec la même vitesse de dépôt ($0,3$ Å/s).

Le système Fe/Al : l'augmentation de l'épaisseur de la couche mince de Fe de 76 à 105 nm conduit à un changement dans le film avec une absence de texture à une forte texture $\langle 110 \rangle$, à la diminution de ε (de $-0,1$ à $-0,07$ %) et à une augmentation de D (de 54,7 à 72,8 nm). Ceci est similaire à ce qui on a observé dans le système Fe/Verre, mais il est différent de ce qui est observé dans Fe/Si(100), malgré les mêmes conditions de préparation.

Le système Fe/Si(100) : la texture, la contrainte ε et la taille des grains ne sont pas affectées par l'augmentation de l'épaisseur de 76 à 105 nm.

Le système Fe/Verre : l'augmentation de t de 76 à 105 nm, conduit à un changement dans la texture de $\langle 100 \rangle$ à $\langle 110 \rangle$, une décroissance et un changement de signe de ε ($+0,14$ à $-0,1$ %) et une augmentation dans la taille des grains (de 9,2 à 29,9 nm).

Effet de la vitesse de dépôt pour une épaisseur fixe

Pour la même épaisseur ($t=100$ nm), deux films ont été préparés par des vitesses de dépôt différentes : $4,3$ Å/s et $0,3$ Å/s.

Dans Fe/Al, la décroissance de la vitesse de dépôt (de $4,3$ à $0,3$ Å/s), pour la même épaisseur (≈ 100 nm) conduit à la diminution de ε

(de -0,1 à -0,07 %) et à l'augmentation de D (de 43,6 à 72,8 nm) ; cependant, la texture $\langle 110 \rangle$ devient plus forte lorsque la vitesse de dépôt diminue.

Pour Fe/Si(100), pour la même épaisseur (≈ 100 nm), la décroissance de la vitesse de dépôt (de 4,3 à 0,3 Å/s), n'influe pas sur la texture. Mais, elle conduit à la diminution de ε (-0,73 à -0,42 %) et à l'augmentation de D (de 10,9 à 18,2 nm).

Dans Fe/Verre, pour pratiquement la même épaisseur (≈ 100 nm) de la couche mince de Fe, la décroissance de vitesse de dépôt (de 4,3 à 0,3 Å/s) n'affecte pas la texture, par contre elle conduit à une augmentation de la taille des grains (15 à 29,9 nm) et une diminution de la contrainte ε (de +0,14 à -0,1 %)

2.4 Morphologie des couches minces : Utilisation d'un microscope électronique à balayage (MEB)

La microscopie à balayage électronique est parmi les techniques les plus performantes pour l'observation de la morphologie et l'étude de la qualité optique de la surface des couches minces. Cette technique est non-destructive et permet des observations en surface avec une résolution de quelques nanomètres et une profondeur de champ très importante. Son grand avantage est la diversité des informations fournies.

2.4.1 Les différents types d'interaction électron-matière[23]

Lorsqu'un électron suffisamment énergétique rencontre de la matière, plusieurs types de rayonnements peuvent être induits :

- les électrons rétrodiffusés, qui proviennent d'une collision élastique avec l'échantillon, et qui sont renvoyés vers la source ;
- les électrons Auger, issus d'un processus « d'autoionisation » des atomes excités de l'échantillon : l'atome, dans un état excité après irradiation par le faisceau, se désexcite en émettant un rayonnement X dont l'énergie est utilisée par un autre électron (dit Auger) d'une autre couche pour s'éjecter ;
- les électrons transmis qui traversent l'échantillon de part en part ;

- les électrons secondaires qui proviennent des couches situées près de la surface ;
- la cathodoluminescence qui est l'émission de photons (de l'infrarouge à l'ultraviolet) dans certains matériaux ;
- enfin, le rayonnement X qui provient de la désexcitation de certains atomes.

Chaque type de rayonnement est exploitable pour connaître la nature d'un matériau. Nous nous intéresserons à l'émission d'électrons secondaires et rétrodiffusés (Fig.2.15).

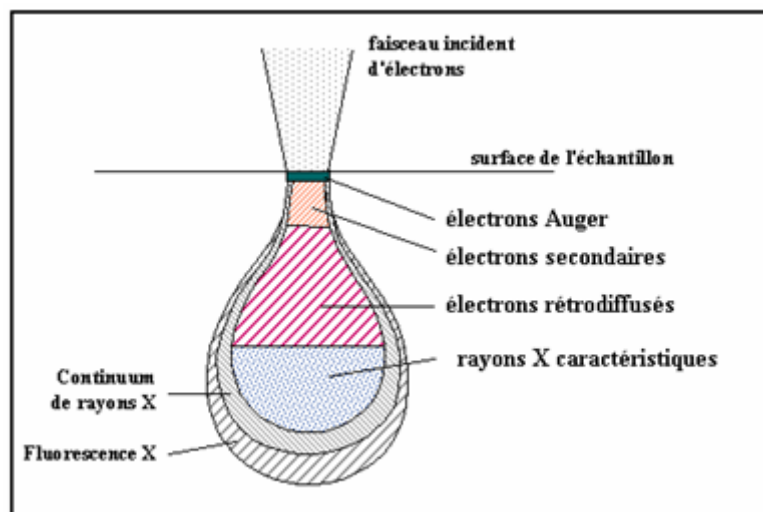


FIG. 2.15 – Volume d'interaction entre un faisceau d'électrons et la surface d'un échantillon (poire de diffusion).

2.4.2 Principe général d'un microscope électronique à balayage (MEB)

Dans le cas de l'imagerie par MEB, ce sont les électrons secondaires et les électrons rétrodiffusés qui sont exploités. L'observation de la surface des couches se fait grâce à un microscope électronique Quanta 200 FEI. Un schéma de principe d'un appareil d'analyse est présenté sur la figure (2.16).

Les électrons sont créés dans le canon (1) au potentiel $-V_0$, accélérés par

une anode mise à la masse (2), focalisés par un condenseur (3), guidés latéralement sur le matériau à étudier par un système de déflexion/balayage (4), concentrés par un objectif (5) à la surface de l'échantillon qui est lui-même placé sur un goniomètre (6).

Différents détecteurs sont ajoutés à l'ensemble afin de permettre, avec une correspondance point de l'écran et de l'objet, la formation de l'image : un détecteur d'électrons à scintillation (7), d'électrons rétrodiffusés à semi-conducteur (8), d'électrons secondaires (9), d'électrons transmis (10). La mesure du courant reçu par l'échantillon est faite par un micro-ampèremètre (11). Enfin, l'ensemble des données collectées est exploité par un logiciel de visualisation (12).

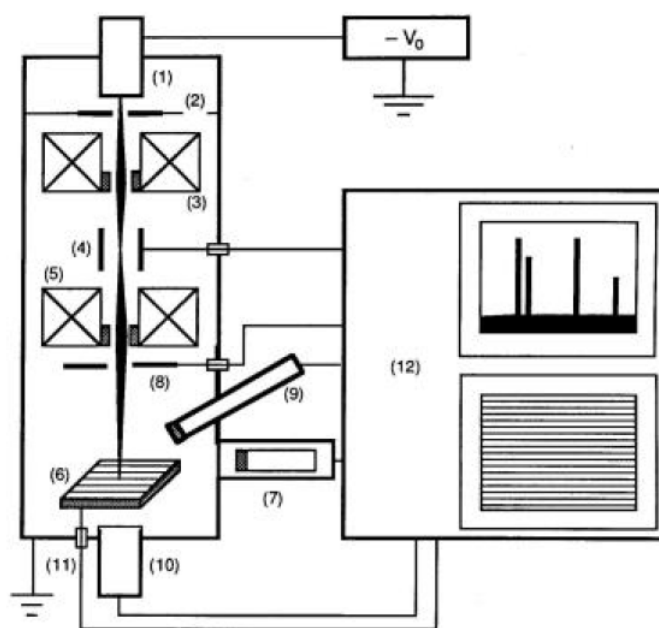


FIG. 2.16 – Schema du principe de la microscopie MEB.

2.4.3 Principales contraintes liées à l'observation en MEB

- **Le vide secondaire** : Afin d'obtenir un faisceau d'électrons le plus stable et contrôlable possible, il est impératif de réaliser un vide très poussé, de l'ordre de 10^{-6} à 10^{-7} torr (où 1 bar = 0,987 atm = 75 torr) dans

la colonne. Le vide permet notamment d'éliminer toute molécule gazeuse qui pourrait dévier le faisceau.

- La haute tension : Plus elle est élevée plus la résolution sera augmentée mais plus les électrons seront pénétrants.
- La taille des échantillons : Elle doit être faible, de l'ordre du cm^3 .

Le rendement en électrons secondaires dépend de la composition et de la topographie de la surface. Les couches analysées étant fines et conductrices, aucun traitement préalable des échantillons n'a été réalisé.

Les expériences de MEB(ou SEM : Scanning Electron Microscopy) ont été faites au laboratoire des génies des procédés de l'Université A/Mira Béjaia (Fig.2.17) ; le MEB est un Quanta 200 de marque FEI dont la source est un filament de tungstène. Sa résolution ultime est de 3 nm. La tension d'accélération des électrons peut être réglée entre 200 V et 30 KV et le courant du faisceau d'électrons entre 5 pA et 50 nA.

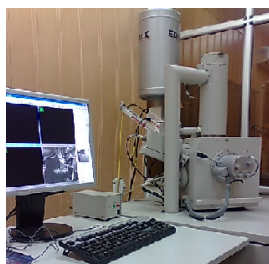


FIG. 2.17 – Le MEB de l'Université de Béjaia(Quanta 200 FEI).

2.4.4 Résultats et discussions

Nous présentons sur les figures 2.18 (a), (b) et (c) quelques images MEB pour les systèmes Fe/Al, Fe/Si(100) et Fe/Verre en électrons secondaires. Les images ont été faites à un grossissement de $6000\times$ en "high vacuum mode".

Premièrement, nous remarquons que les surfaces présentées sur ces images, sont rugueuses, avec des grains de différentes tailles mais de forme circulaire et on les constate clairement pour l'épaisseur 431 nm de tous les systèmes.

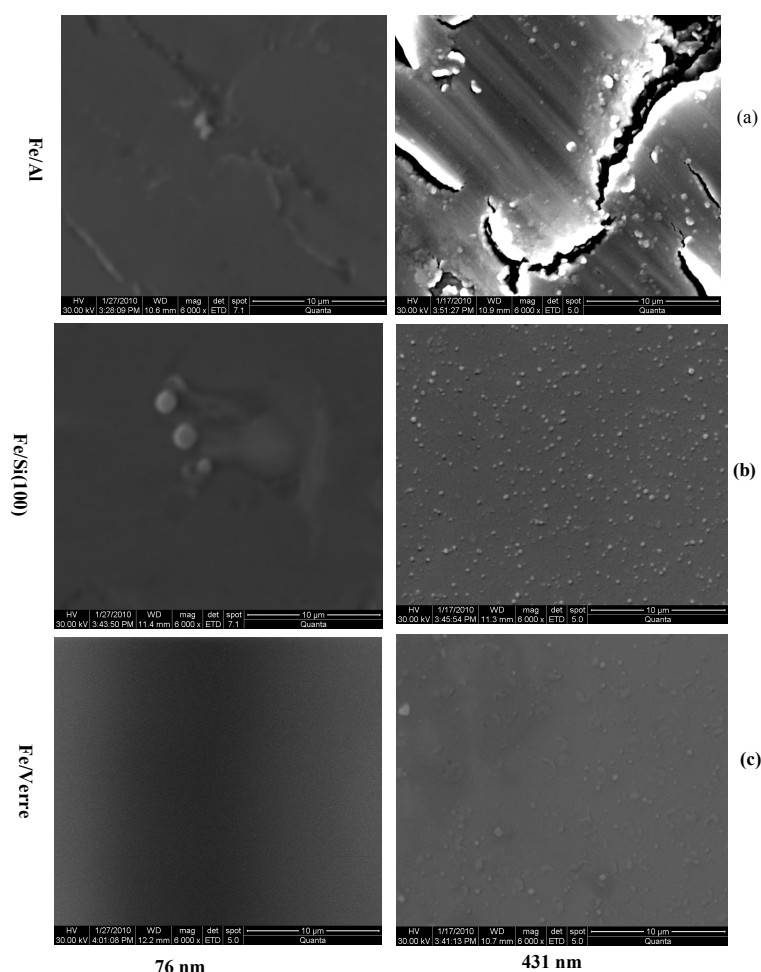


FIG. 2.18 – Les images MEB des échantillons Fe/Al(a), Fe/Si(100)(b) et Fe/Verre(c) pour les épaisseurs 76 nm et 431 nm

Système Fe/Al [Fig.2.18(a)]

L'image (a), qui correspond à l'épaisseur 76 nm et de taille des grains $D = 54,7$ nm, on voit bien de gros grains et on remarque une certaine orientation des grains (inclinée) et aussi de faibles fissures.

Pour l'épaisseur 431 nm de taille des grains $D = 43,6$ nm correspondante à l'image (a), on voit de gros grains et formation de fissures microscopiques : germination et croissance rapide d'une fissure courte. La formation de la fissure microscopique par germination, croissance, coalescence de fissures courtes est due aux phénomènes suivants :

- arrêt aux barrières structurales,
- pour les joints de grains : barrière efficace,
- taille des grains.

On remarque aussi dans la surface de l'échantillon Fe/Al de 431 nm d'épaisseur, des alignements comme ceux observés lors du polissage des substrats durant le traitement mécanique des surfaces (nettoyage) ; par exemple on observe le même phénomène pour les couches minces de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ déposés sur des substrats $\text{SrTiO}_3(001)$ et $\text{NdGaO}_3(011)$ qui ont subi le polissage au cours du traitement avant le dépôt[24]. Et pour les fissures remarquées, on cite le papier[25].

Système Fe/Si(100) [Fig.2.18(b)]

Pour l'image (b), qui correspond à une couche mince Fe d'épaisseur 76 nm, et de taille des grains $D = 18,1$ nm, on voit trois gros grains de forme circulaire sur la surface de la couche mince Fe, qu'on interprète par des "gouttelettes" ; ces "gouttelettes" ou gouttelettes sont généralement rondes (circulaires) et elles se forment lors de l'évaporation de Fe en poudre (transformation en phase liquide), ensuite on aura un jet de gouttelettes du matériau.

Mais pour l'épaisseur 431 nm de $D = 13,6$ nm, on voit des grains de taille moyenne, de forme circulaire dans différentes directions, mais plus de grains par rapport à ceux du système Fe/Verre 431 nm.

On peut citer la morphologie des couches minces de SiC déposées par PLD (Pulsed Laser Deposition : ablation laser) sur des substrats Si(100), où on remarque le même phénomène en surface qui est dû essentiellement au flux élevé de matière évaporées, qui arrive sur le substrat, ce qui donne des gouttelettes rondes sur la surface de la couche[26].

Système Fe/Verre [Fig.2.18(c)]

Pour l'image de la figure 2.18(c), qui correspond à une couche mince de Fe d'épaisseur 76 nm, on voit une image nette, on ne peut pas constater grand chose, compte tenu du fait que la taille des grains pour cet échantillon $D = 9,2$ nm est petite.

Pour l'image (c), qui correspond à la couche de Fe d'épaisseur 431 nm et

$D = 21,8$ nm, on remarque des grains de forme circulaire, allongés suivant différentes directions, témoignant d'une coalescence plus large entre les grains.

Les deux images précédentes suggèrent que pour nos dépôts Fe sur verre par évaporation sous vide, la croissance se fait par îlots. Lorsque ces derniers acquièrent une taille suffisante, ils se rejoignent les uns aux autres pour constituer des grains de taille plus grande.

2.5 Conclusion

En conclusion, nous avons utilisé la technique RBS pour déterminer les épaisseurs des couches minces de Fe déposées sur verre, Si(100) et Al. Les épaisseurs de ces échantillons varient de 76 à 431 nm. La RBS nous a permis d'indiquer l'absence d'interdiffusion. Le calcul des vitesses de dépôt (épaisseur par rapport au temps de dépôt) pour chaque échantillon conduit aux valeurs suivantes : de 0,3 à 4,3 Å/s pour 76, 99, 105 et 160 nm et 13,7 Å/s pour 431 nm.

La diffraction des rayons X (XRD) a permis de déterminer la structure cristalline des couches minces, par exemple la texture, le calcul du paramètre de maille et la taille moyenne des grains D . Notons que les échantillons (Fe/Verre, Fe/Si(100) et Fe/Al) avec les mêmes épaisseurs présentent des propriétés structurales différentes. On a remarqué pour le système Fe/Verre, la forte texture $\langle 200 \rangle$ pour $t=76$ nm et une texture $\langle 110 \rangle$ pour les autres échantillons. Par contre, pour les deux autres systèmes la texture préférentielle est $\langle 110 \rangle$.

Le paramètre de maille des couches minces de Fe est calculé pour différents pics de diffraction pour tous les systèmes, il est compris entre 2,840 et 2,865 Å. Ces valeurs sont différentes du paramètre de maille de Fe massif ; ce qui indique l'existence de contraintes dans les films de Fe.

◇Fe/Al : Les valeurs de la déformation (strain) ε sont plus petites et négatives (compression) et égales à -0,1 % pour les films avec t moins de 100 nm, elles diminuent à -0,07 % et restent constantes pour t plus grandes que 100 nm.

◇Fe/Si(100) : ε , s'avère négatif et constant (-0,42 %) pour tous les échantillons

excepté $t=99$ nm où ε est égal à $-0,73$ %.

◊Fe/Verre : ε , s'avère petit et positif ($+0,14$ %) pour $t \approx 100$ nm, tandis que les plus épais, ε devient constant et négatif ($-0,1$ %).

La taille moyenne des grains du système Fe/Al est plus grande que celle des deux autres systèmes pour la même épaisseur. La plus grande taille des grains correspond à $t=105$ nm (Fe/Al) qui est égale à $72,8$ nm et la plus petite est $9,2$ nm qui correspond à $t=76$ nm du système Fe/Verre.

◊Fe/Al : Pour une épaisseur d'environ 100 nm, la diminution de la vitesse de dépôt $4,3$ Å/s à $0,3$ Å/s entraîne une augmentation de D (de $43,6$ à $72,8$ nm). Pour une vitesse de dépôt fixe ($0,3$ Å/s), l'augmentation de l'épaisseur des films de Fe de 76 à 105 nm conduit à une augmentation de D (de $54,7$ à $72,8$ nm). Ce dernier comportement est semblable à celui observé dans le système Fe/Verre, mais est différent de celui du Fe/Si(100) où aucun changement dans la texture, ε et D n'a été noté.

◊Fe/Si(100) : Pour une épaisseur environ 100 nm, la diminution de la vitesse de dépôt de $4,3$ Å/s à $0,3$ Å/s, conduit à une augmentation de D (de $10,9$ à $18,2$ nm). Pour une vitesse de dépôt fixe ($0,3$ Å/s), l'augmentation de l'épaisseur de Fe de 76 à 105 nm n'a pas en un effet sur la valeur de D .

◊Fe/Verre : Pour la même épaisseur (environ 100 nm), la diminution de la vitesse de dépôt de $4,3$ Å/s à $0,3$ Å/s, conduit à une augmentation de D (de 15 à $29,9$ nm). En outre, pour une vitesse de dépôt fixe ($0,3$ Å/s), l'augmentation de l'épaisseur des films de 76 à 105 nm entraîne une augmentation de D (de $9,2$ à $29,9$ nm).

L'effet de la vitesse de dépôt D et ε semble être identique dans les trois systèmes, i.e : pour une faible vitesse de dépôt donne une plus petite contrainte et une plus grande taille des grains pour les films de Fe indépendamment de la nature des substrats (Al, Silicium et verre). La morphologie de nos couches minces de Fe est observée à l'aide du MEB sous vide poussé. L'analyse a été faite pour deux épaisseurs différentes $t=76$ et 431 nm pour les trois systèmes. Le MEB a montré que nos échantillons ont des surfaces claires pour $t=76$ nm. Pour $t=431$ nm, on a observé la formation de fissures pour le système Fe/Al et des grains de

forme circulaire, dense pour Fe/Verre et peu dense pour Fe/Si(100). Ces grains ("droplets") circulaires se forment lors de l'évaporation de Fe en poudre (transformation en phase liquide), suivi d'un jet de gouttelettes du matériau sur le substrat.

Études des propriétés électriques

3.1 Introduction

Les dépôts atomistiques sont utilisés depuis les années 1950 dans l'industrie électrotechnique et électronique. Le moteur principal, qui a motivé les études des dépôts physiques, a été le développement des circuits intégrés. Il existe plusieurs sources qui décrivent les propriétés électriques des couches minces[27].

Il faut souligner que l'épaisseur est un facteur qui influence moins les propriétés électriques que les propriétés mécaniques. Par exemple, l'effet d'épaisseur sur la conductivité électrique devient négligeable lorsque le libre parcours moyen des électrons devient inférieur à l'épaisseur du dépôt. Ce parcours à $T=273$ K n'est que 13 nm pour Ni ou 40 nm pour Au[28]. Par conséquent, la plupart des dépôts atomistiques ont des épaisseurs qui sont des dizaines, ou même des centaines de fois plus grandes que le libre parcours moyen[29].

Les matériaux ferromagnétiques en couches minces possèdent des propriétés différentes de celles des matériaux massifs. Ce qui donne aux couches minces et multicouches une place privilégiée dans la technologie moderne.

Dans notre étude, on s'intéressera à la résistivité électrique des couches minces de Fe. Celle-ci, étant un phénomène de transport, véhicule beaucoup d'information sur l'état structural et électrique du système étudié.

Notons aussi que les propriétés électriques dépendent fortement des méthodes et des conditions expérimentales des couches minces et de certains paramètres parmi lesquels on peut citer, l'épaisseur, la taille des grains, les défauts cristallins ainsi que la nature du substrat.

Dans ce chapitre nous allons étudier l'effet de l'épaisseur, de la taille des grains de Fe et du substrat sur la résistance carrée R_{\square} et la résistivité électrique ρ des échantillons de Fe. Ensuite on séparera les différentes contributions à la résistivité, présentées par la loi de Mathiessen. Les résultats seront présentés et discutés pour les systèmes Fe/Al, Fe/Si(100) et Fe/Verre et seront traités suivant certains modèles.

3.2 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 à deux dimensions de la conduction pour mesurer la résistance carrée. La mesure de la résistance carrée de nos échantillons a été effectuée à l'air libre (condition normale de pression et température) par la méthode des quatre pointes (Fig.3.1). L'expérience de mesure de la résistance a été faite au niveau du CRNA à Alger (Centre de Recherche Nucléaire d'Alger). Le dispositif est piloté par ordinateur et la distance entre deux pointes successives est de 1 mm. La mesure de la résistance carrée se fait avec une erreur de $10 \mu\Omega$ pour un échantillon de section 1 cm^2 .

3.3 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 (3.1). La résistance carrée est donnée généralement par l'expression[30].

$$R_{\square} = C_f \cdot \frac{V}{I} \quad (3.1)$$

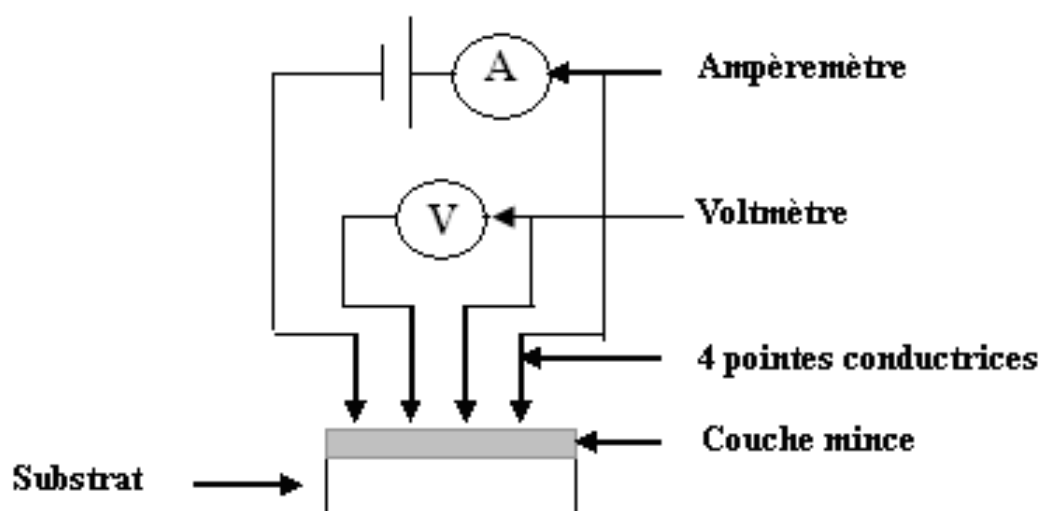


FIG. 3.1 – Schéma simplifié de la technique des quatre pointes

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 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, ($t \ll \frac{b}{2}$) alors $C_f = 4.53$ [31].

- ▷ 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[32] :

$$\rho_f = R_{\square} \cdot t \quad (3.2)$$

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

De manière générale, la résistivité électrique des métaux est attribuée à

l'interaction des électrons de conduction avec leur environnement (phonons, impuretés, dislocation, lacunes...).

3.4 La loi de Mathiessen

Les dépôts conducteurs sont typiquement des métaux et alliages. Ces matériaux ont des électrons libres et leur résistivité peut être décomposée selon la loi empirique de Mathiessen (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[33] :

$$\rho = \sum_i \rho_i \quad (3.3)$$

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[34]

$$\rho_0 = \rho_r + \rho_t \quad (3.4)$$

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. D'une manière générale, elle est donnée pour une couche mince continue par la relation suivante[35]

$$\rho_r = \rho_i + \rho_d + \rho_m + \rho_g + \rho_s \quad (3.5)$$

avec

- ▷ ρ_i la résistivité due aux impuretés. L'origine des impuretés peut être dans notre cas les creusets utilisés en tungstène qui laissent des traces de W dans nos dépôts et les différents gaz présents dans une atmosphère de 3×10^{-7} mbar.
- ▷ ρ_d la résistivité due aux défauts intergranulaires, qui se forment lors de la croissance du film.

- ▷ ρ_m la résistivité due au désordre magnétique. Dans les métaux de transition ferromagnétiques, tel que le Fe, cette résistivité est due à la diffusion en désordre du spin des électrons de conduction s par les électrons localisés d dans le métal[35], ainsi que la diffusion des électrons par les parois de domaines magnétiques.
- ▷ ρ_g la résistivité due à la diffusion des électrons par les joints de grains présents dans le film. Les joints de grains limitent le mouvement des électrons de conduction, d'où on observe une résistivité élevée comparée avec celle du métal en volume[36]. Dans le matériau massif les grains sont plus grands que dans la couche mince. Ils sont de l'ordre du micron à titre d'exemple[37].
- ▷ ρ_s la résistivité due à la diffusion par la surface. Lorsque l'épaisseur de la couche mince est comparable avec le libre parcours moyen de l'électron dans le matériau massif, la diffusion des électrons de conduction par les deux bords, supérieur et inférieur du film, fait augmenter la résistivité de celui-ci. Par conséquent, ρ_s augmente lorsque 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 :

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[38] 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 la résistance carrée et la résistivité augmentent avec la diminution de la vitesse de dépôt donc l'augmentation de la rugosité de la surface. G.Fischer et al [39] montrent que plus la vitesse de dépôt diminue plus la rugosité de la surface augmente.

3.5 Résultats et discussion

3.5.1 Étude de la résistance carrée en fonction de l'épaisseur

Les résultats de la résistance carrée de nos films, à température ambiante, sont toutes finies, ce qui confirme la continuité de nos couches minces, car dans le cas contraire, nous aurons une résistance infinie.

La variation de la résistance carrée en fonction de l'épaisseur des films de Fe déposés sur verre, Si(100) et Al est montrée sur la figure (3.2).

On remarque que la résistance mesurée diminue d'une façon monotone quand l'épaisseur de la couche de Fe augmente de 99 à 431 nm pour les deux séries d'échantillons Fe/Verre et Fe/Si(100). La plus grande résistance est observée dans le système Fe/Verre où R_{\square} varie de 5,48 à 0,97 Ω lorsque l'épaisseur augmente de 99 à 431 nm. La résistance R_{\square} pour le système Fe/Si(100), varie de 3,64 à 0,51 Ω pour la même gamme d'épaisseur. L'erreur sur la mesure de la résistance carrée est de l'ordre de $10^{-5}\Omega$.

On remarque aussi que les deux systèmes Fe/Si(100) et Fe/Verre pour $t=76$ nm, ont deux résistances carrées égales à 2,72 et 3,92 Ω respectivement, ces deux valeurs sortent de la décroissance monotone de R_{\square} en fonction de l'épaisseur.

Mais, pour les films de Fe déposés sur Al, on remarque que les propriétés électriques des films de Fe sont fortement masquées par les substrats de Al. On ne peut pas séparer la contribution du film Fe de celle du substrat de Al par la méthode des quatre pointes.

Il est intéressant de remarquer que la résistance carrée R_{\square} , du système Fe/Al est de l'ordre de 0,27 à 0,35 m Ω . Ces valeurs sont très faibles (voir table (3.1)). D'autre part, elles sont proches de la valeur du substrat Al,

Épaisseurs (nm)	$R_{\square}(m\Omega)$
76	0,351
99	0,323
105	0,275
160	0,345
431	0,289

TAB. 3.1 – La résistance carrée pour les systèmes Fe/Al pour toutes les épaisseurs.

ie : la résistivité du système Fe/Al est pratiquement dictée par celle de

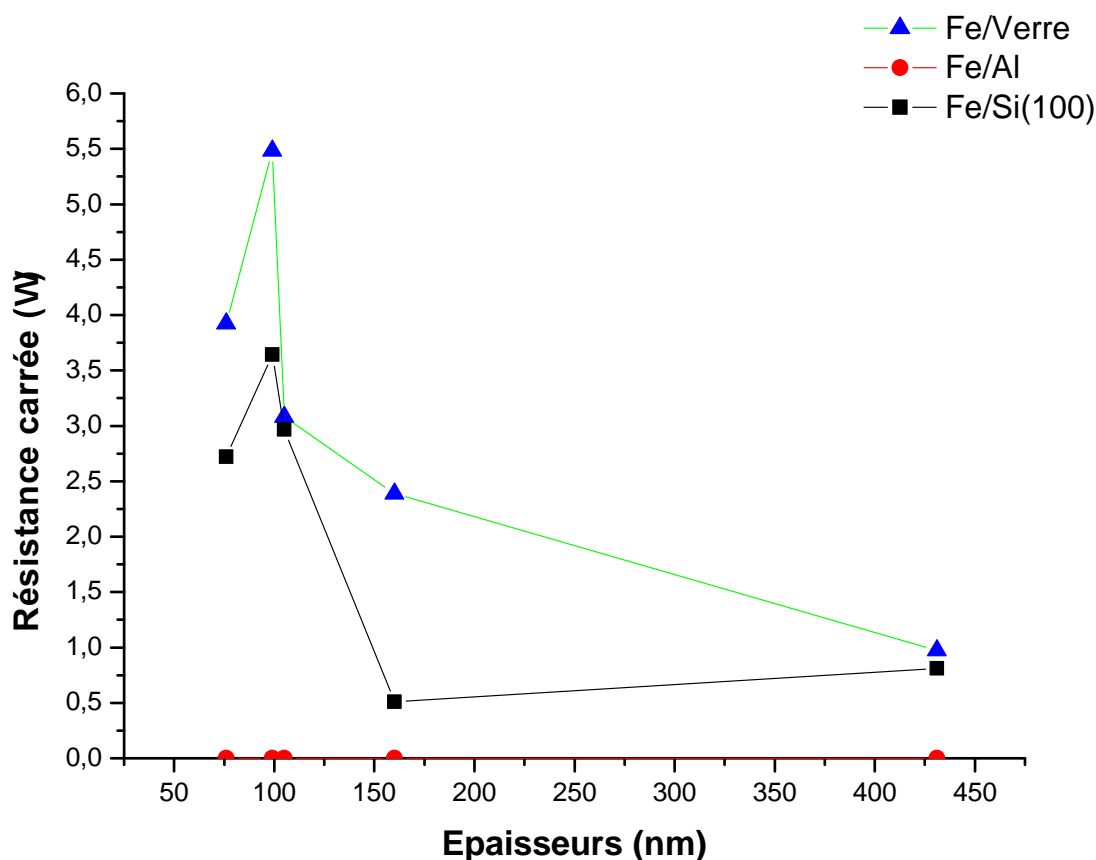


FIG. 3.2 – Évolution de la résistance carrée en fonction de l'épaisseur pour les systèmes Fe/Si(100), Fe/Verre et Fe/Al (les points correspondants à $R_{\square} \sim 0$).

Al. Ceci est fortement justifié en raisonnant de la manière suivante :

Une couche mince de Fe qui recouvre parfaitement le substrat de Al, au passage du courant, forme un système électrique qu'on peut représenter par deux résistances parallèles R_{Fe} et R_{Al} (voir Fig.3.3)

La résistance relevée par la méthode des quatre pointes, la résistance mesurée R_m du système Fe/Al, est donnée par

$$\frac{1}{R_m} = \frac{1}{R_{Fe}} + \frac{1}{R_{Al}} \quad (3.6)$$

d'où

$$\frac{1}{R_{Fe}} = \frac{1}{R_m} - \frac{1}{R_{Al}} \quad (3.7)$$

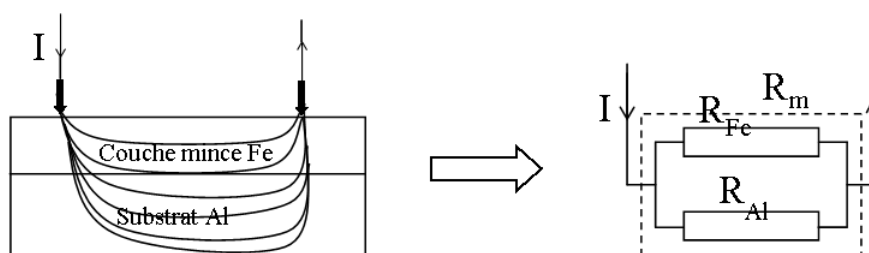


FIG. 3.3 – Schéma représentant les différentes contributions à la résistance mesurée pour le système Fe/Al[40].

R_{Fe} et R_{Al} représentent la contribution de la couche de Fe et du substrat Al respectivement.

Les valeurs de R_{Fe} peuvent être prises des résultats du système Fe/Si(100) et Fe/Verre car les couches de Fe ont les mêmes épaisseurs, et comme $R_{Fe} \gg R_m$ (d'un ordre de mille fois), on aboutira à

$$R_{Al} \approx R_m. \quad (3.8)$$

Donc, ce qu'on mesure par la méthode des quatre pointes n'est que la résistance du substrat de Al. Ceci indique que cette méthode n'est pas indiquée pour la détermination de la résistivité d'un film conducteur déposé sur un substrat conducteur aussi[36].

À titre de comparaison B. Ghebouli[5] rapporte pour une gamme d'épaisseur de 45 à 110 nm pour les systèmes Fe/Si(100) et Fe/Verre, des résistances carrées d'une décroissance monotone allant de 24,87 à 1,98 Ω et C. Nacerddine[40], rapporte pour une gamme d'épaisseur 31 à 165 nm pour les systèmes Ni/Verre et Ni/Cu où les résistances carrées varient de 14,83 à 1,55 Ω .

3.5.2 Étude de la résistivité en fonction de l'épaisseur

La résistivité ρ_f d'une couche mince d'épaisseur t est déduite de la résistance carrée R_{\square} par la relation suivante

$$\rho_f = R_{\square} \cdot t \quad (3.9)$$

La variation de la résistivité des films de Fe avec l'épaisseur pour l'ensemble des substrats utilisés est montrée sur la figure (3.4).

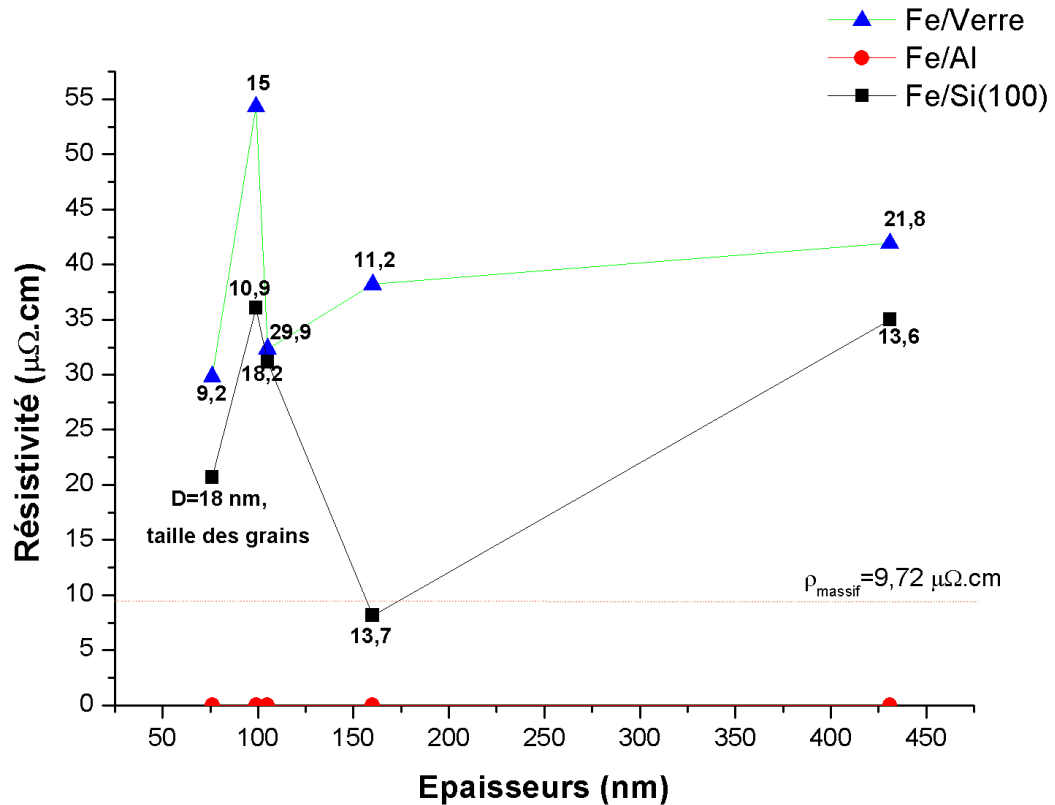


FIG. 3.4 – Évolution de la résistivité électrique en fonction de l'épaisseur pour les systèmes Fe/Si(100), Fe/Verre et Fe/Al.

On remarque que la variation de la résistivité électrique en fonction de l'épaisseur t pour les systèmes Fe/verre et Fe/Si(100), peut être divisée en trois régions ;

1 de 76 à 99 nm, une augmentation de la résistivité électrique du film de Fe lorsque l'épaisseur augmente, cette augmentation peut être due à la présence des défauts,

2 de 99 à 160 nm, on remarque une décroissance monotone pour le système Si(100) jusqu'à une valeur $\rho = 8,16 \mu\Omega$ proche de celle du massif ($9,72 \mu\Omega$) ; cette diminution de ρ avec l'épaisseur t est at-

tribuée à la diffusion par la surface. Pour Fe/Verre, ρ diminue avec l'épaisseur entre $t=99$ nm et 105 nm puis augmente pour $t=160$ nm ; dans Fig.3.4, on montre la taille des grains pour chaque échantillon, on remarque que la diminution de ρ correspond à une augmentation de la taille des grains (de 15 à 29,9 nm) alors que l'augmentation de ρ entre $t=105$ à 160 nm correspond à une diminution de la taille des grains de 29,9 à 11,2 nm, ceci indique que la diffusion par les joints de grains est le facteur important dans le comportement de ρ dans cette gamme d'épaisseur.

3 enfin, de 160 à 431 nm, on remarque un palier pour le système Fe/Verre et une augmentation pour Fe/Si(100) qui peut être due aux défauts ; tels que des défauts de surface qu'on a observés dans les images MEB (voir Fig.2.18 pour $t=431$ nm).

Une résistivité maximale est observée pour chaque système, pour une épaisseur de 99 nm qui vaut $54,30 \mu\Omega.cm$ (Fe/Verre) et $36,07 \mu\Omega.cm$ (Fe/Si(100)).

Les couches minces de Fe déposées sur un substrat semiconducteur Si(100) présentent une résistivité inférieure à celle des couches préparées sur un substrat isolant et amorphe (verre) pour la même épaisseur de Fe.

Effet de v pour $t \approx 100$ nm et effet de t pour $v=0,3 \text{ \AA/s}$

Fe/Si(100) :

Pour la même épaisseur (environ 100 nm), la diminution de la vitesse de dépôt de $4,3 \text{ \AA/s}$ à $0,3 \text{ \AA/s}$, a conduit à une diminution de ρ (de $36,07$ à $31,15 \mu\Omega.cm$).

Pour une vitesse de dépôt fixe ($0,3 \text{ \AA/s}$), l'augmentation de l'épaisseur de Fe de 76 à 105 nm, conduit à une augmentation de ρ (de $20,7$ à $31,2 \mu\Omega.cm$).

Fe/Verre :

Pour une épaisseur d'environ 100 nm, la diminution de la vitesse de dépôt (de $4,3 \text{ \AA/s}$ à $0,3 \text{ \AA/s}$) a conduit à une diminution de la résistivité ρ (de $54,30$ à $32,35 \mu\Omega.cm$).

Pour une vitesse de dépôt fixe ($0,3 \text{ \AA/s}$), l'augmentation de l'épaisseur des films de 76 à 105 nm a conduit à une augmentation de ρ (de 29,8 à $32,4 \mu\Omega.\text{cm}$).

3.6 Effet de taille

3.6.1 Introduction

Dans le matériau massif, le mouvement de l'électron de conduction entre deux collisions successives, suivant une direction donnée peut atteindre une distance λ qui est son libre parcours moyen. Après une collision avec un autre corps dans le réseau : ion, impureté, défaut, ..., son mouvement change de direction et sa vitesse change de module. Ce qui fait que le matériau massif présente une résistivité ρ_0 (qui est généralement connue et qu'on trouve dans la littérature).

En outre, une couche mince se caractérise par :

- ◇ La réduction des dimensions suivant une direction (la perpendiculaire au plan du film). Ce qui se traduit par une faible épaisseur.
- ◇ Des grains de tailles inférieures à celles rencontrées dans le matériau massif. Lorsque l'épaisseur d'un film 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 "taille" [36].

Plusieurs modèles sont rapportés dans la littérature pour distinguer entre les différentes contributions. Pour un film métallique dont la résistivité est régie par l'effet de la diffusion par la surface, on a le modèle de Fuchs-Sondheimer[41] qui est le plus répandu.

Pour un film métallique dont la résistivité est dominée par l'effet de la diffusion par les joints de grains, le modèle de Mayadas-Shatzkes[35] est le plus indiqué (aussi le plus ancien). Pour un film métallique dont la résistivité regroupe les deux effets, on a le modèle de Tellier.

Dans ce qui suit, on essaiera de voir quel est le modèle le plus adapté pour nos résultats expérimentaux.

3.6.2 Diffusion des électrons à la surface

Nous essaierons 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.

La résistivité d'un film métallique suivant ce modèle est donnée par la relation suivante[36] :

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = \left[1 - \frac{3}{2}(1-p) \int_1^{+\infty} \left(\frac{1}{a^3} - \frac{1}{a^5} \right) \frac{1 - e^{-\frac{a,t}{\lambda}}}{1 - pe^{-\frac{a,t}{\lambda}}} da \right]^{-1} \quad (3.10)$$

où

ρ_f : la résistivité électrique du film.

ρ_0 : la résistivité électrique du matériau massif (pour le Fe massif, $\rho_0 = 9,72 \mu\Omega.cm$).

λ : le libre parcours moyen de l'électron de conduction dans le matériau massif (pour le Fe, $\lambda = 19,2 \text{ nm}$ [36])

a : une variable d'intégration.

t : l'épaisseur du film.

p : paramètre de specularité ($0 < p < 1$). Ce paramètre représente la probabilité pour qu'un électron soit réfléchi aux interfaces de la couche de façon spéculaire, c'est à dire en conservant l'information sur la phase et la vitesse[42].

Les diffusions limites, $p=0$, correspondent à la diffusion diffuse, dont l'effet est maximal sur la résistivité du film (pour des interfaces rugueuses), et $p=1$ à la diffusion spéculaire et donc pas d'effet sur la résistivité de la couche (pour une surface parfaitement plane et rigide)[42, 43].

Nous supposons que les deux faces de la couche sont équivalentes, c'est

à dire le même paramètre de spécularité. D'où l'équation (3.10) peut prendre les formes simplifiées suivantes[35] :

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = 1 + \frac{3}{8} \frac{\lambda}{t} (1 - p), \quad t > \lambda \quad (3.11)$$

et

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = \frac{3}{4} \frac{(1 - p) \frac{\lambda}{t}}{\{1 + p \ln(\frac{\lambda}{t}) + 0,4228\}}, \quad t \ll \lambda \quad (3.12)$$

Les épaisseurs de nos couches minces correspondent à la condition de l'équation (3.11), qu'on peut mettre sous la forme suivante :

$$\rho_f.t = \rho_0.t + \frac{3}{8} \lambda \rho_0 (1 - p) \quad (3.13)$$

On voit que la dépendance de $\rho_f.t$ en fonction de t est linéaire. Si les résistivités de nos films sont régies par l'effet de la diffusion par la surface, on aura (dans la limite des erreurs de l'expérience) une droite en traçant ($\rho_f.t$) vs t , avec ρ_0 comme pente.

Sur la figure (3.5), on montre les points expérimentaux et le fit linéaire correspondant pour les systèmes Fe/verre et Fe/Si(100). Le fit linéaire de nos résultats (fait par le logiciel ORIGINE) donne :

$$\rho_f.t = 4,2817.t - 4,1415.10^{-5} \quad (\mu\Omega.cm^2) \quad (3.14)$$

et

$$\rho_f.t = 3,7207.t - 1,5183.10^{-5} \quad (\mu\Omega.cm^2) \quad (3.15)$$

Donc on a les valeurs de $4,2817\mu\Omega.cm$ et $3,7207\mu\Omega.cm$, comme pente de la droite pour les systèmes Fe/verre et Fe/Si(100) respectivement. Cette pente correspond, suivant l'équation (3.13), à la résistivité électrique ρ_0 du matériau massif.

Rappelons que cette résistivité peut s'exprimer de la manière suivante[35] :

$$\rho_0 = \rho_t + \rho_i + \rho_d + \rho_m \quad (3.16)$$

Elle regroupe tous les termes qu'on peut trouver dans un matériau massif. Pour le Fe massif, R. M. Bozorth[44] rapporte une résistivité idéale $\rho_t = 9,72\mu\Omega.cm$ à température ambiante, d'où par soustraction de celle-ci on aurait les contributions : des défauts, du désordre magnétique et des

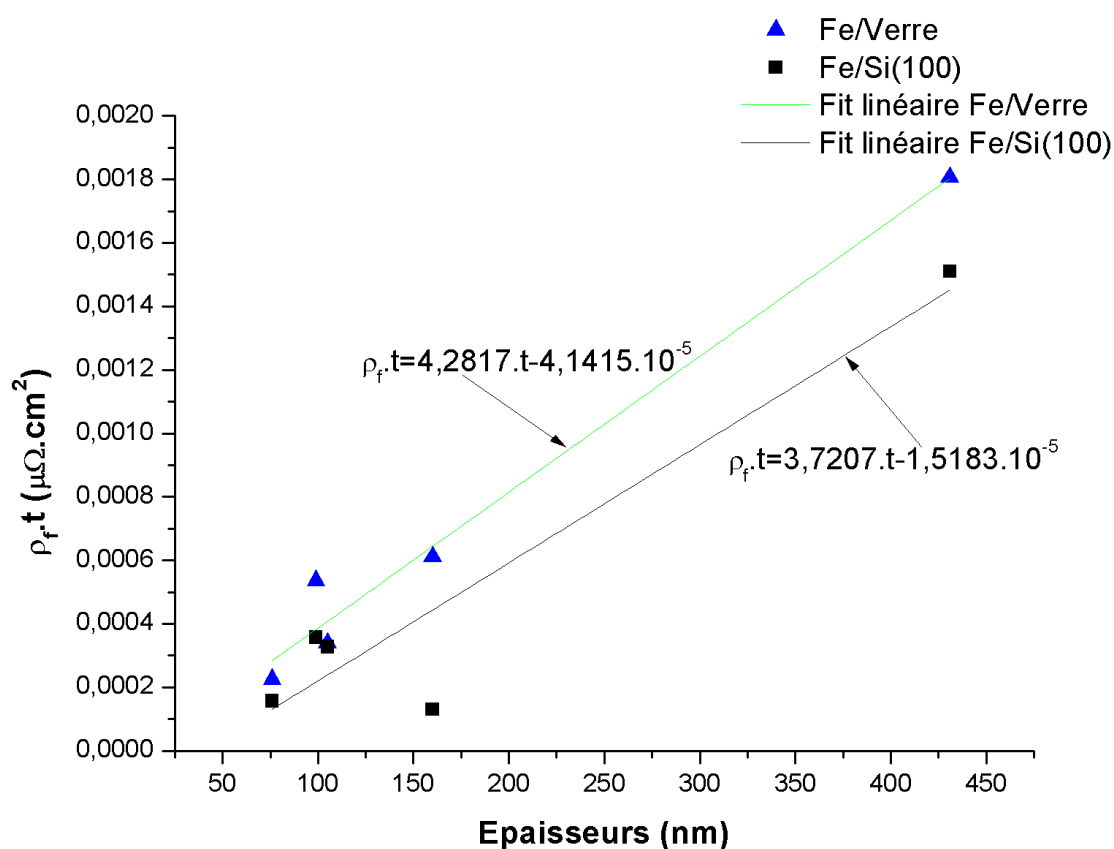


FIG. 3.5 – Évolution de $\rho_f.t$ en fonction de l'épaisseur t dans les systèmes Fe/Si(100) et Fe/Verre.

impuretés, à la résistivité électrique de nos films de Fe pour les deux systèmes. Cette contribution est de $-5,4183 \mu\Omega.cm$ (comme résistivité résiduelle) pour le système Fe/Verre et de $-5,9793 \mu\Omega.cm$ pour le système Fe/Si(100).

Mais d'autre part, on ne peut pas trouver un p tel que : $0 < p < 1$, en bon accord avec nos résultats (les valeurs de p calculées de l'intersection de la droite de la figure (3.5) avec l'axe des ordonnées sont : $p = -4,1415.10^{-5}$ (Fe/Verre) et $p = -1,5183.10^{-5}$ (Fe/Si(100)), Ceci nous indique que la résistivité de nos films est régie par un autre effet plus dominant dans la gamme d'épaisseurs étudiée qui masque l'effet de la surface.

3.6.3 Diffusion des électrons aux joints de grains

Le modèle de Mayadas-Shatzkes tient compte de l'effet de la diffusion des électrons de conduction par les joints de grains. La résistivité d'un film métallique suivant ce modèle est donnée par[35] :

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = \left[1 - \frac{3}{2}\alpha + 3\alpha^2 - 3\alpha^3 \ln\left(1 + \frac{1}{\alpha}\right) \right]^{-1} \quad (3.17)$$

avec

$$\alpha = \frac{\lambda}{D} \frac{R}{1 - R} \quad (3.18)$$

et

ρ_f : la résistivité électrique du film.

ρ_0 : la résistivité électrique du matériau massif.

λ : le libre parcours moyen de l'électron de conduction dans le matériau massif.

D : la taille moyenne des grains dans le film

R : coefficient de réflexion aux joints de grains ($0 < R < 1$).

Quand le coefficient de réflexion s'approche de 1, la résistivité totale du film devient infinie et l'effet de la diffusion par les joints de grains est maximal. Tandis que pour des valeurs de R voisines de 0, il n'y a pas d'effet de la diffusion par les joints de grains sur la résistivité électrique.

En remplaçant les valeurs de la taille des grains mentionnées au chapitre 2, on peut évaluer le coefficient de réflexion R . On montre dans les tables (3.2, 3.3) les valeurs de l'épaisseur, la taille des grains, la résistance carrée, la résistivité électrique et le coefficient de réflexion dans les systèmes Fe/verre et Fe/Si(100). Dans la figure (3.6), on montre l'évolution du coefficient de réflexion en fonction de l'épaisseur de la couche de Fe dans les systèmes Fe/Si(100) et Fe/verre.

Fe/Si(100)

Pour $t=76$ à 105 nm, le coefficient de réflexion R augmente de façon monotone; ensuite, on observe un palier pour $t>105$ nm. Notons que pour $t=160$ nm, on n'a pas de valeur de R , car on a trouvé un ρ_f ($8,16 \mu\Omega.cm$), inférieur à celui du massif ($9,72 \mu\Omega.cm$), ce qui n'a

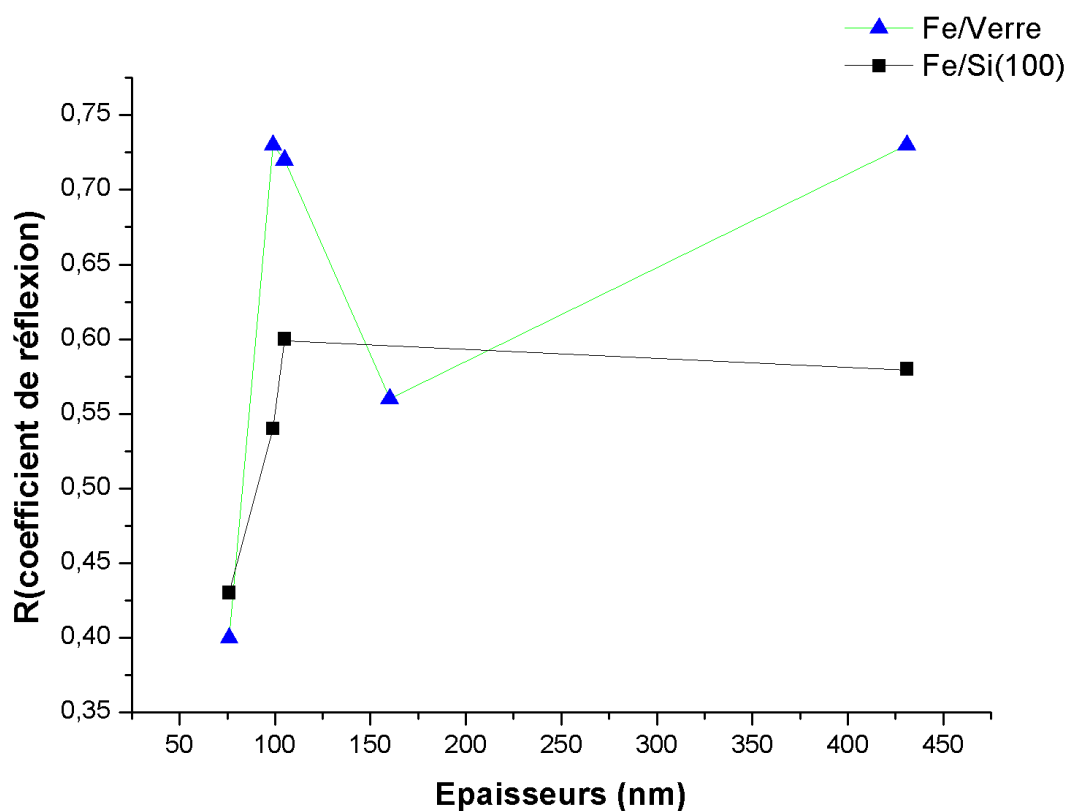


FIG. 3.6 – Évolution du coefficient de réflexion en fonction de l'épaisseur t dans les systèmes Fe/Si(100) et Fe/Verre.

pas de sens physique. L'erreur sur la mesure de ρ_f (R_{\square}) est grande dans le cas de cet échantillon.

Fe/Verre

Le coefficient de réflexion augmente entre $t=76$ et 99 nm, on remarque une décroissance monotone pour $t=99$ à 160 nm. Finalement, on constate une augmentation du coefficient de réflexion R pour $t>160$ nm.

Donc, on observe pour les deux systèmes une augmentation monotone du R , pour $t=76$ à 99 nm.

Épaisseurs (nm)	D (nm)	$R_{\square}(\Omega)$	$\rho_f(\mu\Omega.cm)$	R
76	9,2	3,925	29,83	0,4
99	15	5,485	54,30	0,73
105	29,9	3,081	32,35	0,72
160	11,2	2,387	38,19	0,56
431	21,8	0,972	41,93	0,73

TAB. 3.2 – L'épaisseur, la taille des grains, la résistance carrée, la résistivité électrique et le coefficient de réflexion pour le système Fe/Verre.

Épaisseurs (nm)	D (nm)	$R_{\square}(\Omega)$	$\rho_f(\mu\Omega.cm)$	R
76	18,1	2,721	20,67	0,43
99	10,9	3,644	36,07	0,54
105	18,2	2,967	31,15	0,6
160	13,7	0,510	8,16	/
431	13,6	0,812	35,02	0,58

TAB. 3.3 – L'épaisseur, la taille des grains, la résistance carrée, la résistivité électrique et le coefficient de réflexion pour le système Fe/Si(100).

3.7 Conclusion

Dans ce chapitre, on a étudié les propriétés électriques des couches minces de Fe déposées par évaporation sous vide sur des substrats de Si(100), de verre et de Al. On a fait une étude de la résistance carrée et de la résistivité électrique en fonction de l'épaisseur.

Les résistance carrées de tous nos films de Fe sont finies, donc les couches minces sont continues. De plus ces valeurs diminuent (d'une façon générale) avec l'augmentation de l'épaisseur. Pour les films Fe sur Al, les résistance carrées sont toutes constantes (au quatrième chiffre après la virgule) et sont égales à celle du substrat Al.

- ◇ La variation de la résistivité ρ en fonction de l'épaisseur de Fe, t , a été discutée en considérant l'effet de la diffusion en surface, de la diffusion aux joints de grains et à l'existence de défauts.
- ◇ On a observé que pour la même épaisseur de Fe, $\rho(\text{Fe/Si}(100))$ est inférieure à $\rho(\text{Fe/Verre})$.

- ◇ Pour une épaisseur fixe ($t \approx 100$ nm), la diminution de la vitesse de dépôt de $4,3 \text{ \AA/s}$ à $0,3 \text{ \AA/s}$ entraîne une diminution de la résistance carrée et de la résistivité des films de Fe sur verre et sur Si(100).
- ◇ Pour une vitesse de dépôt fixe ($0,3 \text{ \AA/s}$), l'augmentation de l'épaisseur de 76 à 105 nm conduit à une légère augmentation (diminution) de R_{\square} pour Fe/Si(100) (Fe/Verre) et une augmentation dans la résistivité ρ pour les deux systèmes.

Pour les effets de taille dans les films minces de Fe sur Verre et sur Si(100), la diffusion à la surface n'est pas apparente en général dans cette gamme d'épaisseur. C'est la diffusion au joints de grains qui domine les résistivités électrique mesurées sur nos films. De plus on a pu évaluer R (coefficient de réflexion aux joints de grains) de nos films, et on a trouvé des valeurs entre 0,4 et 0,73 pour Fe/Verre et entre 0,43 et 0,6 pour Fe/Si(100); on déduit que R dépend de l'épaisseur du film et pour une épaisseur donnée, on a $R(\text{Fe/Verre}) > R(\text{Fe/Si(100)})$.

Conclusion générale

Dans ce travail, nous avons étudié l'effet du substrat sur les propriétés structurales et électriques des couches minces de Fe déposées par évaporation thermique sous vide, sur des substrats de silicium monocristallins de texture (100), des substrats amorphes (lames de verre) et des substrats d'Aluminium polycristallins. Les films étudiés ont les épaisseurs 76 nm, 105 nm, 99 nm, 160 nm et 431 nm.

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 et de Si(100) et de l'enceinte est décrit. Nous avons présenté la méthode d'évaporation, son principe, le dispositif expérimental.

On a élaboré deux ensembles de 15 échantillons de Fe sur des substrats de verre, Si(100) et Al. La vitesse de dépôt varie de 0,3 Å/s à 4,3 Å/s.

Dans le deuxième chapitre, nous avons présenté les méthodes de caractérisation utilisées dans l'étude des propriétés structurales. Nous avons présenté en première partie la technique RBS et un résumé de sa théorie fondamentale. On a simulé les spectres de RBS par le logiciel SIMNRA(6.05). Les résultats de RBS nous ont permis de déterminer les épaisseurs de nos échantillons. On a une gamme d'épaisseurs de 76 nm à 431 nm. Par ailleurs, la RBS nous a permis d'observer l'état de l'interface entre le film Fe et le substrat ; on n'a pas détecté d'interdiffusion entre le film et les substrats.

Dans la deuxième partie, on a fait l'étude de la structure cristallogra-

phique par la technique de la diffraction des rayons X (XRD). Les résultats obtenus par cette dernière méthode montrent la même texture $\langle 110 \rangle$ pour les systèmes Fe/Al et Fe/Si(100), pour toutes les épaisseurs alors que le système Fe/Verre, le film commence par une forte texture $\langle 200 \rangle$ (pour $t=76$ nm) ensuite on retrouve la texture $\langle 110 \rangle$ pour les autres épaisseurs.

L'existence des contraintes (stress) dans nos films a été déduite des valeurs expérimentales du paramètre de maille.

On a observé que la déformation (strain) ε est négative (compression) pour le Fe/Al et Fe/Si(100) pour tous les échantillons.

Pour Fe/Al, ε diminue de $-0,1\%$ (pour $t \leq 100$ nm) à $-0,07\%$ (pour $t > 100$ nm) alors que pour Fe/Si(100), ε est pratiquement constant ($-0,42\%$). Pour une épaisseur donnée, la déformation est plus grande (en valeur absolue) dans Fe/Si(100) que dans Fe/Al. Pour le système Fe/Verre, ε est positive ($+0,14\%$, dilatation) pour $t \leq 100$ nm et devient négative et constante pour $t > 100$ nm. La plus grande taille des grains observée est dans le système Fe/Al pour $t=105$ nm qui est égale à $72,8$ nm et la plus petite taille des grains est $9,2$ nm pour $t=76$ nm dans le système Fe/Verre. Les tailles des grains de Fe/Al sont plus grandes que les tailles des autres systèmes pour la même épaisseur. Pour la même épaisseur de Fe ($t=100$ nm), la diminution de la vitesse de dépôt de $4,3 \text{ \AA/s}$ à $0,3 \text{ \AA/s}$ entraîne des effets similaires dans les trois systèmes : augmentation de la taille des grains et diminution des contraintes.

Pour une vitesse de dépôt fixe ($0,3 \text{ \AA/s}$), l'augmentation de t de 76 à 105 nm entraîne des effets similaires dans Fe/Al et Fe/Verre (augmentation de la taille des grains D et diminution de la déformation ε) ; mais ce comportement est différent de celui observé dans Fe/Si(100) où aucun changement dans D et ε n'a été détecté dans ces mêmes conditions. Le microscope électronique à balayage (MEB) montrent des surfaces claires pour les échantillons de $t=76$ nm. Mais, pour $t=431$ nm on a observé la formation de fissures pour le système Fe/Al et des grains (gouttelette ou droplets) de formes circulaires, peu dense pour Fe/Verre et dense pour Fe/Si(100).

Le troisième chapitre est entièrement consacré à l'étude des propriétés électriques de nos couches en fonction de l'épaisseur. Les résistances

carrées R_{\square} de toutes nos couches de Fe sont finies, ce qui confirme la continuité de nos couches minces. De plus la résistance montre des diminutions de façon monotone avec l'augmentation de l'épaisseur. Pour Fe/Si(100), la résistivité électrique diminue lorsque l'épaisseur augmente de 99 à 160 nm de Fe. On a noté un maximum de la résistivité électrique pour $t=99$ nm de Fe pour les deux systèmes. La résistivité dans Fe/Si(100) est plus petites que celle de Fe/Verre pour la même épaisseur.

- ◇ Pour une vitesse de dépôt fixe ($0,3 \text{ \AA/s}$), l'augmentation de l'épaisseur de 76 à 105 nm conduit à une légère augmentation (diminution) de R_{\square} pour Fe/Si(100) (Fe/Verre) et une augmentation dans la résistivité ρ pour les deux systèmes.
- ◇ Pour une épaisseur fixe ($t \approx 100$ nm), la diminution de la vitesse de dépôt $4,3 \text{ \AA/s}$ à $0,3 \text{ \AA/s}$ entraîne une diminution de la résistance carrée et de la résistivité de films de Fe sur Si(100) et sur verre.

Pour les effets de taille, la diffusion à la surface n'est pas apparente en général dans cette gamme d'épaisseur. C'est la diffusion aux joints de grains qui domine les résistivités électriques mesurées sur nos films. Le coefficient de réflexion calculé suivant le modèle de Mayadas-Shatzkes est compris entre 0,4 et 0,73 dans la système Fe/Verre et entre 0,43 et 0,60 dans le système Fe/Si(100). Le coefficient R dépend de l'épaisseur de Fe et pour une épaisseur donnée, $R(\text{Fe/Verre}) > R(\text{Fe/Si}(100))$

Dans le futur, nous proposons d'étudier les propriétés magnétiques de ces systèmes.

Bibliographie

- [1] L. NEEL, *Œuvres Scientifiques* (1978) Editions du CNRS, Paris ; C.R. Acad. Sci. (1955) 241, 533 ; J. Phys. Rad. (1968) suppl. 29, C2-87) ; C. R. Acad. Sci.(1962) 255, 1545 et 1676 ; J. Appl. Phys. (1965) 36, 944 ; I.E.E.E. Trans on Magn. (1965) 1, 10 ; J. Phys. Rad. (1954) 15, 225 ; Ann. de Physique (1967) 2, 61.
- [2] Magnétisme, II-Matériaux et Applications ; collection Grenoble Sciences, Chapitre 20, Couches minces et multicouches magnétiques rédigé par B. Dieny. p255-300 ; Sous la direction d'Étienne du Trémolet de LACHEISSERIE, Laboratoire Louis Néel, Grenoble. EDP Sciences, 2000.
- [3] L.I. MAISSEL, M.H. FRANCOMBE, *An introduction to thin films* (1973) Gordon and Breach Science Publishers, New York.
- [4] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Naguyen Van Dan, and F. Petroff ; *Phy. Rev. Lett*, 61, (1988), 2472.
- [5] B. Ghebouli ; These de Doctorat, UFAS de Sétif (2009).
- [6] B. Ghebouli, S. M. Cherif, A.Layadi, B. Helifa and M. Boudissa, *Journal of Magnetism and Magnetic Material* 312 (2007) 194-199.
- [7] H. Buberl and H. Jenett, *Surface and Thin Film Analysis*, Wiley-VCH 2002.
- [8] J. Perrière, *Vacuum*, 37 (1987) 429-432.
- [9] P. Kiréev, *La Physique Des Semi-conducteurs*, 2e édition. Mir. Moscou 1975.
- [10] J. M. Poate, K. N. Tu and J. W. Mayer, *Thin Films-Interdiffusion and Reactions*, John Wiley & Sons 1978.
- [11] R. W. Cahn, P. Haasen, E. J. Kramer, *Materials Science and Technology*, Volume 2A, Part I, New York ; Basel ; Cambridge, VCH 1992.
- [12] C. R. Brundle, C. A. Evans ; Jr, and S. Wihon, *Encyclopedia of Materials Characterization*, Butter Worth-Heinemann 1992.

- [13] **H. Lee, W. Yu, and Y. Kwon, Proceedings of the Third International Conference on Information Technology, IEEE 2006.**
- [14] **A. Guittoum, A. Layadi, T. Kardja, S. Lafane and S. Bouterfaia; Eur.Phys. J. Appl Phys. 42, 235-239(2008)**
- [15] **M. Hemmous, A. Layadi, A. Guittoum, A. Bourzami and A. Benabbas; Microelectronics journal 39 (2008) 1545-1549**
- [16] **A. I. Ustinov, S. S. Polischuk, Scripta Materialia 47(2002) 881-886**
- [17] **S. H. He, C.L. Zha, B. Ma, Z. Z. Zhang, Q. Y. Jin, Journal of Magnetism and Magnetic Material 310(2007) 2656-2658**
- [18] **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 136 (2007), 197-202.**
- [19] **P. J. Brown, J, B, Forsyth, the Crystal Structure of Solids, Edward Arnold 1973.**
- [20] **Jean-Jacques Rouseau, Cristallographie géométrique et radiocristallographie, Dunod, Paris(2000).**
- [21] **C. Martínez Boubeta, A. Cebollada, J. F. Calleja, C. Contreras, F. Peiró, and A. Cornet. J. App. Phys. 93(2003) 2126-2134**
- [22] **J. P. Eberhat, Analyse structurale et chimie des matériaux, Bordas, Paris(1989).**
- [23] **YIM J. B, Etude de la faisabilité d'une structure multicouche pour application aux antennes à polarisation circulaire, Stage de D.E.A d'électronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoge, 1999.**
- [24] **C. C. Chin, W. Ito, H. Takahashi, K. Ogawa, T. Morishita, and T. Sugimoto, CHENESE JOURNAL OF PHYSICS, VOL.31, NO.6-11 (1993).**
- [25] **M. E. Sanchez-vergara et al, journal of Non-Cristalline Solids, 356(2010) 244-249.**
- [26] **A. Keffous, K. Bourenane, M. Kechouane, N. Gabouze, T. Kerdja, Vacuum 81(2007) 632-635.**
- [27] **R. W. BERRY, P. M. HALL, M.T. HARRIS, Thin Film Technology. D. van Nostrand, Princeton, N. J., U.S.A, 1968.**
- [28] **Z. H. MEIKSIN, Thin and Tick Films for Hybrid Microelectronics, lexington Books, lexington, Mass, U.S.A, 1976.**
- [29] **Lech Pawlowski, Dépôts Physiques, Presses Polytechniques et Universitaires romandes, 2003.**
- [30] **A. Vappaille et R. Castagné, Dispositifs et circuits intégrés semiconducteurs, Bordas. Paris 1990.**

- [31] D. David et R. Caplain, Méthodes usuelles de caractérisation des surfaces, édition EYROLLES 1988.
- [32] A. Kusy, Thin Solid Films 43 (1977) 243-250.
- [33] E. Broitman, P. Alonso, R. Zimmerman, Thin Solid Films 277 (1996) 192-195.
- [34] M. Gerl et J-P. Issi, Physique des matériaux, PPUR. Lausanne 1997.
- [35] A. I. Maarooof and B. L. Evans, J. Appl. Phys. 76 (1994)1047-1054.
- [36] K. L. Chopra, Thin Film Phenomena, Mc Graw-Hill, New York (1969).
- [37] M. Gerl et J-P. Issi, Physique des matériaux, PPUR. Lausanne (1997).
- [38] N. A. Surplice, J. Muller and B. Singh, Thin Solid Films 28 (1975) 179-187.
- [39] G. Fischer, H. Hoffmann, J. Vancea, Phy. Rev. B 22(1980) 6065-6073.
- [40] C. Nacerddine, Thèse de Magister, UFA de Sétif 2004.
- [41] Juan M. Camacho and A. I. Olivia, Micro electron. J. 36, (2005) 555-558.
- [42] A. Jacquot, Thèse de doctorat. Institut National polytechnique de Lorraine (2003).
- [43] A. A. Bright and J. T. Wetzal, J. Appl. Phys. 60 (1994) 2041-2045.
- [44] Richard Bozorth, Ferromagnetism, édité par D. Van Nostrand Company, INC, (1951)(réimpression 1968).