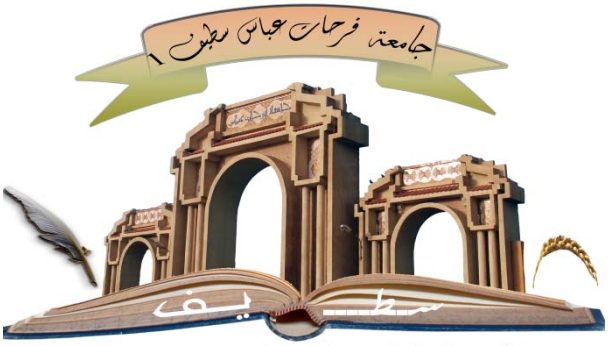
République Algérienne Démocratique et Populaire
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique
Université Ferhat ABBAS Sétif 1



Université Ferhat ABBAS Sétif 1

THESE

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

Doctorat

Option : Techniques d'analyses des matériaux

Par

Ahlem BOUREZG

THÈME

Propriétés physiques de couches minces de Co_{100-x} Pd_x élaborées sous vide par évaporation thermique

Soutenue publiquement le . . / . . / 2018
Devant le jury :

Président:	M. L. LOUAIL	Professeur, UFAS, Sétif 1.
Directeur de thèse:	M. A. KHARMOUCHE	Professeur, UFAS, Sétif 1.
Examinateurs:	M. D. DJOUADI	Professeur, UAM, Bejaïa.
	M. A. ROUMILI	Professeur, UFAS, Sétif1.
	M. A. MOSBAH	M.C.A., UFAS, Sétif 1.

A ma famille

"On fait la science avec des faits, comme on fait une maison avec des pierres: mais une accumulation de faits n'est pas plus une science qu'un tas de pierres n'est une maison".

Henri Poincaré.

Remerciements

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

J*e tiens à exprimer mes plus vifs remerciements au Professeur* ***A. KHARMOUCHE*** *de m'avoir accueilli dans son équipe. Il a dirigé mon travail avec beaucoup de patience et de compétence. Ses qualités humaines et ses remarques m'ont été précieuses.*

J*e veux aussi lui exprimer ma sincère gratitude pour ses orientations et pour son aide dans la rédaction de la thèse et l'interprétation des résultats.*

J*e remercie le Professeur* ***L. LOUAIL*** *de l'Université Ferhat Abbas Sétif1 de m'avoir honoré par sa présidence du jury de ce mémoire.*

J*e remercie aussi le Professeur* ***D. DJOUADI*** *de l'Université Abderrahmane Mira de Bejaïa pour avoir accepté de juger ce travail.*

M*es remerciements vont également au Professeur* ***A. ROUMILI*** *de l'Université Ferhat Abbas Sétif1 pour avoir accepté de juger ce travail.*

J*e tiens également à remercier le Professeur* ***A. MOSBAH*** *de l'Université Ferhat Abbas Sétif 1 pour avoir accepté de juger ce travail.*

J*e tiens à remercier le Professeur* ***B. AKTAS*** *de l'Université de Gebze (Turquie) de m'avoir accueilli dans son équipe du laboratoire.*

M*es remerciements s'adressent aussi à Monsieur* ***N. AKDOGAN****, Professeur à l'Université de Gebze (Turquie) de m'avoir guidé durant mon stage.*

J'*adresse mes salutations les plus sincères à tous mes professeurs et collègues au sein de l'Université Ferhat Abbas Sétif1.*

Sommaire

- ***Introduction et état de l'art***
- ***Chapitre I :*** *Généralités sur le magnétisme*
- ***Chapitre II :*** *Techniques expérimentales*
- ***Chapitre III :*** *Propriétés structurales*
- ***Chapitre IV :*** *Propriétés magnétiques*
- ***Conclusion générale***
- ***Annexes***

Introduction et état de l'art

Introduction générale

Au cours de ces dernières années, une extraordinaire accélération des recherches a permis une avancée considérable dans le domaine des couches minces et nanostructures magnétiques. Ces systèmes présentent des caractéristiques structurales et magnétiques tout à fait particulières du fait de leur taille réduite. Ils offrent la possibilité d'induire des phénomènes nouveaux telle qu'une augmentation spectaculaire du moment magnétique**.** Le magnétisme de ces systèmes de basse dimensionnalité est d'une importance fondamentale dans les applications technologiques, comme le sont les dispositifs à enregistrement de haute densité ou les capteurs magnétiques à haute sensibilité [1]**.**

Les fabricants de supports de stockage d'information (disques durs, disques magnéto optiques...) sont tout particulièrement intéressés par les progrès réalisés dans le domaine des nanostructures magnétiques. En effet, dans les disques durs actuels, l'information est codée dans des films minces magnétiques. Ces films comportent des domaines magnétiques dont l'aimantation est alignée dans une direction du plan de la couche et s'oriente soit dans un sens soit dans l'autre. L'information est ainsi codée en binaire.

L'augmentation des capacités de stockage passe par la réduction de la taille des bits d'information. Cependant, un phénomène apparaît: le superparamagnétisme qui est une relaxation de la direction d'aimantation due aux fluctuations thermiques. Pour pallier à cet effet, qui dans un disque dur se traduirait par la perte des données, il faut augmenter l'anisotropie magnétique des nano-objets, c'est-à-dire la hauteur de la barrière d'énergie à franchir pour retourner l'aimantation. Dans ce cadre, différents matériaux sont à l'étude pour leurs propriétés prometteuses. Dans ce travail de these, nous nous sommes intéressés à l'alliage cobalt-palladium. Le cobalt a une grande énergie d'anisotropie magnétocristalline uniaxiale. Les alliages à base de cobalt ont une importance pratique et économique considérable, en particulier les alliages cobalt- métaux de transition, de là ils peuvent être utilisés dans l'enregistrement perpendiculaire.

Les alliages CoPd ont été étudiés par de nombreux chercheurs, par différentes méthodes de déposition et sur différents substrats. Les propriétés magnétiques et structurales des films de Co et d'alliage à base de Co sont très sensibles aux paramètres suivants : l'épaisseur de la couche magnétique, la nature et la température du substrat, la concentration des composés binaires (ou ternaires) et le mode de croissance de la couche magnétique [2].

L'effet de la teneur en Pd sur les propriétés magnétiques et structurales des films CoPd a été mis en évidence par **Zangari et al.** [3] Ils ont déposé des couches minces de CoPd

d'épaisseur variable entre 100 nm et quelque µm sur des substrats de cuivre par électrodéposition. Ils ont trouvé que les films présentent une structure CFC ; la structure hcp (Pd≤16%) n'a été rencontrée que dans les films riches en Co uniquement. Les mesures magnétiques montrent que les échantillons contenant 3-5% Co sont ferromagnétiques à température ambiante. Par contre, à l'état massif, les échantillons sont ferromagnétiques avec une teneur en Co≥8%. Les échantillons riches en Co ou en Pd présentent de petites valeurs de coercivité (≈40 Oe, 3kA/m). **Weller et al.** [4] ont élaboré des films d'alliages $Co_{1-x}Pt_x$ et $Co_{1-x}Pd_x$, d'épaisseur 100 nm, sur des substrats de silicium chauffés à 200°C par évaporation par bombardement électronique sous vide (10^{-8}torr). Ils ont trouvé que l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan des films pour $X_{Pt}\geq 0.5$ et $X_{Pt}\geq 0.4$; ils ont noté que l'aimantation à saturation diminue avec l'augmentation de la concentration de Pd et présente une chute quasi abrupte (a sharp drop) aux alentours de 15% de Pd et de Pt. Cette diminution est reliée à la transition de phase hcp cfc dans cette gamme de composition. **Speetzen et collaborateurs** [5] ont réalisé des multicouches de Co/Pd (peuvent être utilisées pour l'enregistrement magnétique perpendiculaire) à température ambiante, sur des substrats de verre, par la pulvérisation magnétron. Ils ont montré que la réduction de l'épaisseur de Pd induit une augmentation de l'aimantation à saturation et le dopage de Pd par Si cause une diminution de la taille des grains. **Jeong et al.** [2] montrent que les films d'alliage $Co_{35}Pd_{65}$ déposés en croissance épitaxiale sur un substrat de Cu/Si(100), sont ferromagnétiques à température ambiante à partir d'une épaisseur de 2 monocouches avec une anisotropie planaire, et ils ont noté que la coercivité augmente avec l'augmentation de l'épaisseur des films. **Viquera et al.** [6] ont déposé des superéseaux de CoPd sur des substrats d'alumine par la technique de l'électrodéposition : ils ont montré que les superéseaux sont polycristallins, de structure cfc avec des grains orientés aléatoirement (7-12nm). Les mesures magnétiques montrent que les superéseaux sont ferromagnétiques avec un axe de facile aimantation parallèle à l'axe de la longueur du superéseaux (perpendiculaire au plan de substrat). Ils ont noté que la coercivité et la squarness augmentent avec l'augmentation de la teneur en Co et de la taille des grains. **Xu et al.** [7] ont élaboré des superéseaux de l'alliage $Co_{0.97}Pd_{0.03}$ par électrodéposition : les mesures de DRX montrent que l'orientation (002) est une orientation préférentielle et les mesures magnétiques montrent que les superéseaux présentent des propriétés magnétiques excellentes (grande valeur de coercivité, 1700 Oe, et squarness égale à 0.85) obtenues avec un champ magnétique appliqué parallèlement aux axes du superéseau. Ils ont noté que les valeurs de la coercivité et de la squarness sont très élevées par

rapport aux valeurs du superéseau de Co pur. **Noce et al.** [8] ont élaboré des nano cristaux de l'alliage $Co_{80}Pd_{20}$ par électrodéposition : ils ont trouvé que les nano cristaux ont une structure CFC et présentent des valeurs de coercivité élevées (1.69 kOe). Des films minces de l'alliage $Co_{35}Pd_{65}$ d'épaisseur variant entre 87 et 2500 Å ont été déposés sur des substrats chauffés à 180°C par évaporation sous vide de l'ordre de 10^{-6} Torr par **Jen et al.** [9]. Ils ont noté que l'axe de facile aimantation est dans le plan des films lorsque l'épaisseur n'excède pas 500 Å et qu'il sort du plan pour des épaisseurs plus grandes. Les mesures de DRX montrent que (111) est une orientation préférentielle lorsque l'épaisseur est inférieure à 500 Å et qu'elle garde cette orientation ou bien devient (002) pour des épaisseurs plus grandes, et ils ont montré que les propriétés magnétiques sont influencées par les propriétés structurales. **Tobari et collaborateurs** [10] ont élaboré des multicouches de Co/Pd avec une sous couche Pd (fcc) d'orientations (001), (111) et (011) sur des substrats de MgO, à température ambiante, par pulvérisation magnétron RF sous ultravide. Ils ont montré que les propriétés structurales et magnétiques dépendent de l'orientation de la sous couche. Les multicouches déposées sur Pd (111) et Pd (011) présentent une anisotropie perpendiculaire. Par contre, les multicouches déposées sur Pd (001) présentent une anisotropie planaire. Ils ont noté aussi que l'interdiffusion entre le Co et le Pd conduit à la formation de l'alliage CoPd et la formation de cet alliage augmente avec l'ordre suivant (001), (111), (011). **Tobari et al.** [11] ont synthétisé des multicouches de Co/Pd avec une sous couche de Pd $(111)_{FCC}$. Ils ont montré que l'alliage CoPd est formé à l'interface Co/Pd. L'interdiffusion augmente lorsque l'épaisseur des couches de Co et Pd diminue. Avec la diminution de l'épaisseur des couches de Co et Pd, et donc l'augmentation du nombre de répétition des multicouches, une importante anisotropie perpendiculaire a été observée. Les propriétés magnétiques sont également influencées par la structure du film. **Wang et al.** [12] ont déposé des couches minces de Co(0001), CoPt(0001), hcp CoPd(0001) et fcc CoPd(111) avec une sous couche de Rh(0001) d'épaisseur 10 nm, sur des substrats de MgO (111) par pulvérisation sous un vide de 10^{-6} Pa et à 573K. Ils ont étudié la relation entre l'énergie d'anisotropie magnétique et la structure cristalline de Co et d'alliages à base de Co (Co-Pt, Co-Pd). Ils ont trouvé que l'énergie d'anisotropie magnétique dépend du rapport c/a pour les structures hcp, et ils ont noté que lorsque c/a du Co (hcp) diminue à 1.61 (valeur inférieure à 1.62 de Co massif), l'énergie d'anisotropie magnétique devient importante (supérieure à 10^6 Jm^{-3}). Le même résultat a été obtenu pour CoPd et CoPt. **Guk An et collaborateurs** [13] ont élaboré des multicouches de Co/Pd sur un substrat de silicium par pulvérisation sous un vide inférieur à $2x10^{-8}$ Torr : ils ont montré qu'après recuit

à une température supérieure à 500°C, les multicouches présentent une anisotropie magnétique perpendiculaire stable. Le choix des épaisseurs égales des couches de Co et de Pd dans les multicouches assure la stabilité thermique de l'anisotropie magnétique perpendiculaire pour des températures de recuit élevée. **Hashimoto et al.** [14] ont élaboré des films minces d'alliage CoPd d'épaisseur 2000Å sur des substrats de verre, par pulvérisation magnétron RF, sous un vide inférieur à 10^{-6} Torr. Ils ont trouvé que les films présentent une structure cfc avec un axe de facile aimantation perpendiculaire au plan du film (peuvent être utilisé dans les média à enregistrement perpendiculaire). Ils ont également noté que l'aimantation à saturation M_s diminue avec l'augmentation de la concentration de Pd, et les films riches en Pd ont une constante de magnétostriction de l'ordre de 10^{-4}. D'autre part, ils ont montré aussi que les films minces de l'alliage CoPd dont l'épaisseur est inférieure à quelques centaines d'Angstrom, présentent des rotations Kerr et squarness élevées, et donc ces films peuvent être utilisés dans l'enregistrement magnéto-optique. **Takata et al.** [15] ont élaboré des films minces d'alliage CoPd d'épaisseur variable entre 2.4 et 4.7µm par électrodéposition. Les mesures de DRX montrent que les films sont amorphes, et les mesures magnétiques montrent qu'avec l'application d'un champ magnétique longitudinal les valeurs du champ coercitif varient entre 84 et 550 Oe, et l'aimantation à saturation est variable entre 0 et 1.73T. Ils ont noté que la coercivité augmente et l'aimantation à saturation diminue avec l'augmentation de concentration de Pd. **Hu et al.** [16] ont élaboré par électrodéposition des superéseaux d'alliage Co_xPd_{1-x} (x= 0.37-0.85) de diamètre 55 nm. Ils ont montré que l'alliage $Co_{0.73}Pd_{0.27}$ présent des valeurs élevées de la coercivité (1130Oe) et de squarness (94%). **Myagkov et collaborateurs** [17] ont réalisé des films minces d'alliage CoPd. Avec le recuit sous vide de bicouche de Pd/Co à 400°C, ils ont trouvé qu'il n'y a pas d'interdiffusion entre la couche de Pd et de Co et donc l'alliage CoPd n'est pas formé. Avec l'augmentation de température de recuit ? la formation de l'alliage CoPd à l'interface Pd/Co a été observée, et l'interdiffusion est complètement terminée après un recuit à 650°C. **Nozawa et al.** [18] ont élaboré par pulvérisation des films de l'alliage $Co_{100-x}M_x$, M (Pt, Pd, Rh) sur des substrats de verre. Ils ont trouvé que l'aimantation à saturation diminue avec l'augmentation de x, et pour x=50% at ils ont noté que M_s(CoPd)>M_s(CoPt)>M_s(CoRh). **Osamu et al.** [19] ont élaboré des films minces de l'alliage CoPd sur des substrats monocristallins de MgO d'orientations (001), (110), (111) à 600°C par pulvérisation magnétron RF sous ultravide. Ils ont trouvé que les films prennent l'orientation du substrat et présentent une structure cfc (la phase L_{10} n'existe pas) avec une anisotropie planaire. Ils ont noté que les propriétés magnétiques sont

influencées par la structure cristalline et l'orientation des films. **Ohtake et collaborateurs** [20] ont élaboré, par pulvérisation magnétron RF, des films minces de CoPd, CoPt, FePt et FePd, d'épaisseurs 40 nm, sur des substrats de MgO(111) chauffés à des températures variant entre 25°C (RT) et 600°C. Ils ont trouvé que les films épitaxiés de l'alliage CoPt, FePt et FePd sont obtenus dans le domaine de température choisi. Par contre, les films épitaxiés de l'alliage CoPd sont obtenus pour des températures supérieures à 200°C, et, pour des températures < 200°C, les films sont amorphes. Ils ont noté qu'à 600°C les films FePt et FePd présentent la phase ordonnée L_{10}. Par contre, aucune phase ordonnée n'a été formée pour l'alliage CoPd. Les mesures magnétiques montrent qu'à 600°C les films de CoPd, CoPt, FePt et FePd présentent une anisotropie planaire, alors que pour des températures inférieures à 600°C les films CoPt présentent une anisotropie perpendiculaire. **Ding et al.** [21] ont élaboré des superéseaux d'alliage CoPd, de 50 nm de diamètre : ils ont trouvé des valeurs élevées de coercivité (1 kOe) et de squarness (74%). Des films de l'alliage CoPd (riche en Pd) avec une anisotropie perpendiculaire et de coercivité élevée (420-666Oe) sont réalisés par **Gan'shina et al.** [22]**. Gontarz et collaborateurs** [23] montrent que les films de l'alliage CoPd déposés par pulvérisation présentent une anisotropie uniaxiale, l'axe de facile aimantation étant dans le plan des films avec H_c = 100 Oe ; ils ont également noté que les films riches en Co sont amorphes alors que les films riches en Pd présentent une structure cfc, avec, une orientation préférentielle (111). **Childress et al.** [24] ont déposé, par épitaxie par jet moléculaire, des films minces de l'alliage Co_xPd_{1-x}(x=0.20-0.25) d'épaisseurs variant entre 200 et 1000Å sur des substrats de Si(111) et de MgO(001). Ils ont montré que les films déposés sur Si(111) présentent une structure cfc avec une orientation préférentielle (111) et les films déposés sur MgO(001) présentent une structure cfc avec une orientation préférentielle (001). Les mesures magnétiques montrent que les films déposés sur Si(111) et sur MgO(001) présentent une anisotropie perpendiculaire**. Sayama et al.** [25] montrent que l'introduction d'une sous couche de C à la couche d'enregistrement d'une tête de lecture-écriture (multicouche de CoPd) supprime le problème des fluctuations de transitions et diminue le bruit magnétique. Des films de CoPd d'épaisseurs 20 et 40 nm et de composition atomique en Co de 30, 50 et 70 % at. ont été déposés par **Morgan et al.** [26] sur Si/SiO_2 par épitaxie par jet moléculaire. Les mesures de DRX ont prouvé que les films sont polycristallins, de structure cfc et de texture (111). Les mesures magnétiques ont prouvé que l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan du film. **Poulopoulos et al.** [27] ont étudié les propriétés structurales et magnétiques des multicouches de Pd_m– [CoPd]$_n$ (m = 15 et n variant entre 2 et 6)

élaborées par évaporation par bombardement électronique sur des substrats de Si et de GaAs dont l'épaisseur totale de la multicouche est 400 nm, et la concentration de Co est 60% at. Les mesures magnétiques montrent que les multicouches présentent une anisotropie perpendiculaire avec une bonne squareness (S=1). **Shin et collaborateurs** [28] ont déposé, par évaporation par bombardement électronique et par sputtering, des multicouches de Co/Pd et Co/Pt sur des substrats de GaAs. Ils ont trouvé une grande dépendance des propriétés magnétiques avec l'épaisseur et la méthode de préparation. Les films, dont l'épaisseur de Co est inférieure à 6Å et l'épaisseur du métal noble est supérieure à 5Å, présentent une anisotropie perpendiculaire. Les mesures de DRX montrent que les films présentent une structure cfc et une texture [111]. Ils ont noté également que ces matériaux sont des bons candidats pour les média à enregistrement magnéto optique. Des multicouches de CoPd ont été déposées, par pulvérisation, sur des substrats d'alumine par **Vivas et al.** [29] : les mesures structurales ont prouvé que les multicouches présentent une structure hcp et les mesures magnétiques ont prouvé que les propriétés magnétiques dépendent de la température. Une anisotropie magnétique perpendiculaire est observée à basse température et disparait à haute température. Des films $Co_{81}Pd_{19}$ d'épaisseur 60 nm ont été déposés, par pulvérisation, par **Ponchaiya et al.** [30] sur des substrats de verre, avec des sous couches de Co, Ni, Cr et Al. Ils ont noté que tous les films sont ferromagnétiques à température ambiante. Les propriétés structurales et magnétiques dépendent de la rugosité de surface de la sous couche et du substrat. **Sedrpooshan et collaborateurs** [31] ont élaboré, par ablation laser, des films minces de l'alliage CoPd d'épaisseur variable entre 6 et 24 nm et de composition atomique en Co de 25 et 40%, sur des substrats de Si(100). Les mesures magnétiques montrent que l'axe de facile aimantation est dans le plan des films déposés à 200°C et qu'il sort du plan à haute température. Ils ont noté que la coercivité et l'axe de facile aimantation dependent de l'épaisseur, de la composition atomique et de la température.

Ce travail de thèse a pour but d'étudier l'effet de la composition et du substrat sur les propriétés structurales et magnétiques des couches minces de CoPd d'épaisseur 150 nm, préparées sous vide, par évaporation thermique, et déposées sur des substrats de GaAs(100) et de Si(100).

Ce manuscrit est constitué de 4 chapitres en plus d'une introduction et d'une conclusion générale.

L'introduction générale et état de l'art passe en revue les principaux travaux antérieurs publiés sur les matériaux ferromagnétiques à base de cobalt ainsi que les applications potentielles des couches minces dans la recherche fondamentale et dans l'industrie.

Dans le *premier chapitre* on présente des rappels sur le magnétisme et l'application technologique des couches minces ferromagnétiques.

Le *deuxième chapitre* présentera les différentes techniques d'élaboration des films minces en général et décrira, d'une manière plus détaillée, la technique de l'évaporation sous vide par effet Joule, utilisée pour l'élaboration de nos échantillons ainsi que les techniques de caractérisation utilisées au cours de ce travail.

Nous présenterons dans le *troisième chapitre* les conditions de dépôt de nos couches minces de CoPd et les résultats expérimentaux avec l'interprétation des caractéristiques structurales et morphologiques obtenues par la diffraction des rayons X et le microscope à force atomique.

Le *quatrième chapitre* est consacré aux propriétés magnétiques de nos couches minces. On y exposera les cycles d'hystérésis obtenus pour différentes compositions et différents types de substrats. Nous présenterons par la suite les variations de propriétés magnétiques (aimantation a saturation, squareness, champ coercitif) en fonction de la composition et en corrélation des propriétés structurales (taille des grains, stress et rugosité surfacique).

Enfin nous terminerons ce manuscrit par une *conclusion générale* où sont résumés les principaux résultats de ce travail.

Références bibliographiques

[1] M. Finazzi, L. Duò, F.Ciccacci, Surface Science Reports **64** (2009) 139-167.

[2] J. Jeong and S. Shin, IEEE Transactions on Magnetics **39** (2003) 2705- 2707.

[3] G. Zangari, B. Bozzini, P.L. Cavallotti, G. Fontana, P.G. Maisto, E. Terrenzio, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **133** (1994) 511-515.

[4] D. Weller, H. Brändle and C. Chappert, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **121** (1993) 461-470.

[5] N. Speetzen, B.J.H. Stadler, E. Yuan, R.H. Victora, X. Qi, J.H. Judy, N. Supper, T. Pohkil, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **287** (2005) 181–187.

[6] M.S. Viqueira, G.Pozo-López, S.E.Urreta, A.M.Condó, D.R.Cornejo, L.M. Fabietti, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **394** (2015)185–194.

[7] C. Xu, H. Li, T. Xue, H. Li, Scripta Materialia **54** (2006) 1605–1609.

[8] R.D. Noce, N. Barelli, P.T.A. Sumodjo, D.R. Cornejo, A.V. Benedetti, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **306** (2006) 199–203.

[9] S.U. Jen, J.Y. Huang, C.T. Wei, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **174** (1997) 33-39.

[10] K.Tobari, M. Ohtake, K. Nagano, M. Futamoto, Thin Solid Films **519** (2011) 8384–8387.

[11] K.Tobari, M. Ohtake, K. Nagano, M. Futamoto, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **324** (2012) 1059–1062.

[12] J-J. Wang, T. Sakurai, K. Oikawa, K. Ishida, N. Kikuchi, S. Okamoto, H. Sato, T. Shimatsu and O. Kitakami, Journal of Physics C : Condensed Matter **21** (2009) 185008 (6pp).

[13] G. Guk An, J. Bin Lee, S. Mo Yang, J. Hong Kim, W. Seong Chung, K. Soo Yoon, and J. Pyo Hong, AIP Advances, **5** (2015) 027137 (7pp).

[14] S. Hashimoto, Y. Ochiai and koichi ASO, Japanese Journal of Applied Physics **28** (1989) 1596-1599 .

[15] F.M. Takata, P.T.A. Sumodjo, Electrochimica Acta **52** (2007) 6089–6096.

[16] H.N. Hu, H.Y. Chen, S.Y. Yu, L.J. Chen, J.L. Chen, G.H. Wu, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **299** (2006) 170–175.

[17] V. G. Myagkov, L. E. Bykova, V. S. Zhigalov, I. A. Tambasov, G. N. Bondarenko, A. A. Matsinin, and N. Rybakova, Physics of the Solid State **57** (2015) 1014–1022.

[18] N. Nozawa, S. Saito, S. Hinata and M. Takahashi, Journal of Physics D: Applied Physics **46** (2013) 172001(6pp).

[19] Osamu, Y., Mitsuru, O., Kouske, T., Tsutomu, N., Fumiyoshi, K., Masaaki, F, Thin Solid Films **519** (2011) 8359-8362.

[20] M. Ohtake, S. Ouchi, F. Kirino, and M. Futamoto, IEEE Transactions on Magnetics **48** (2012) 3595-3598.

[21] J.B. Ding, D.H. Qin, Y. Huang, L. Cao, H.L. Li, Journal of Materials Engineering and Performance **12** (2003) 584-588.

[22] E. Gan'shina, V. Guschin, I. Romanov, A. Skobelev, A. Tselev, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **185** (1998) 258-364.

[23] R. Gontarz and T. Lucinski, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **101** (1991) 253-255.

[24] J. R. Childress, J. L. Duvail, S. Jasmin, A. Barthélémy, and A. Fert, Journal of Applied Physics **75** (1994) 6412-6414.

[25] J. Sayama, J. Kawaji, T. Asahi, J. Hokkyo, and T. Osaka, IEEE Transactions on Magnetics **39** (2003) 1059-1063.

[26] C. Morgan, K. Schmalbuch, F. Garcia-Sanchez, Claus M. Schneider, C. Meyer, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **325** (2013) 112–116.

[27] P. Poulopoulos, M. Angelakeris, Th. Kehagias, D. Niarchos, N.K. Flevaris, Thin Solid Films **371** (2000) 225-230.

[28] S. Shin, Applied Surface Science **65/66** (1993) 110- 117.

[29] L.G. Vivas, A.I.Figueroa, F.Bartolomé, J.Rubín , L.M.García , C.Deranlot , F.Petroff , L. Ruiz , J.M González-Calbet , N.B.Brookes , F.Wilhelm , A.Rogalev , J.Bartolomé , Journal of Magnetism and Magnetic Materials **400** (2016) 248–252.

[30] P. Ponchaiya and W. Rattanasakulthong, Journal of Physics: Conference Series **901** (2017) 012158 (5pp).

[31] M. Sedrpooshan, H. Ahmadvand, M. Ranjbar, H. Salamati, Physica C: Superconductivity and its Applications **549** (2018) 122–125.

Chapitre I

Généralités sur le magnétisme

Chapitre I : Généralités sur le magnétisme

I.1. Introduction

I.2. Origine du magnétisme dans la matière

I.3. Différents types de magnétisme présent dans la matière

I.3.1. Ferromagnétisme

I.3.1.1. Cycle d'hystérésis

I. 3.1.2. Champ coercitif

I.3.1.3. Anisotropie magnétique

I.3.1.4. Anisotropie de forme et champ démagnétisant

I.3.1.5. Anisotropie magnétocristalline

1.3.1.6. Anisotropie magnétoélastique

1.3.1.7. Domaines magnétiques et parois entre domaines

I.3.1.8. Température de Curie

I.3.1.9. Mécanismes de renversement de l'aimantation

I.3.2. Diamagnétisme

I.3.3. Paramagnétisme

I.3.4. Antiferromagnétisme

I.3.5. Ferrimagnétisme

I.4. Matériaux magnétiques de stockage d'information : l'alliage Co_xPd_{1-x}

I.5. Diagramme de phase de CoPd

I.6. Applications technologiques

I.7. Mode d'enregistrement longitudinal

I.8. Le superparamagnétisme

I.9. Solutions pour l'avenir

I.9.a. Les média à enregistrement perpendiculaire

I.9.b. L'enregistrement thermiquement assisté

I.9.c. Les média discrets

Références bibliographiques

I.1. Introduction

L'origine du mot "magnétisme" est liée à la découverte de la pierre d'aimant au Moyen Age, appelée *magnétite* constituée essentiellement d'oxyde de fer Fe_3O_4, d'une ville d'Asie mineur, *Magnésie*.

Dans ce chapitre nous rappellerons les notions essentielles du magnétisme et les principes fondamentaux nécessaires à la compréhension du manuscrit. Nous parlerons de l'origine du magnétisme dans la matière et les différentes classes des matériaux magnétiques : diamagnétique, paramagnétique, ferromagnétique …etc. Nous décrirons également certaines propriétés physiques fondamentales de l'alliage Co_xPd_{1-x} et son diagramme de phase. A la fin du chapitre nous présenterons quelques applications technologiques des matériaux magnétiques.

I.2. Origine du magnétisme dans la matière

Les moments magnétiques électroniques sont les principaux contributeurs au magnétisme atomique[1,2]. Le moment magnétique électronique englobe deux moments d'origines différentes: le moment magnétique orbital dû au mouvement de l'électron sur son orbite autour du noyau, et le moment magnétique de spin qui est d'origine quantique [3].

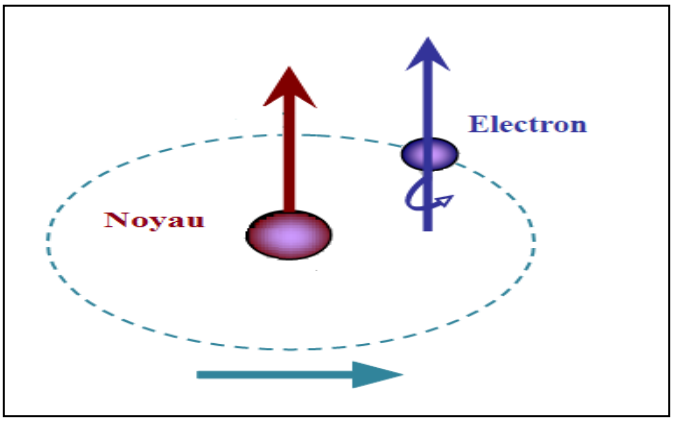


Figure I.1 : *Mouvement de l'électron.*

C'est l'interaction entre ces moments magnétiques atomiques qui détermine le magnétisme de la matière [4].

I.3. Différents types de magnétisme présent dans la matière

On peut distinguer trois grandes catégories de corps magnétiques par la détermination du signe et de la valeur de la susceptibilité magnétique χ qui est définie comme $\chi = \frac{\vec{M}}{\vec{H}}$, où $\vec{M}$ est l'aimantation (exprimée en $A.m^{-1}$ ou emu/cm^3) et $\vec{H}$ le champ d'excitation appliqué (exprimé en Tesla ou Oersted).

• si $\chi < 0$, le matériau est diamagnétique.

• si $\chi > 0$, le matériau est para- ou ferro-magnétique. La susceptibilité d'un corps

Paramagnétique est de l'ordre de 10^{-5}, tandis que celle d'un corps ferromagnétique est de l'ordre de $10^2 \sim 10^3$.

D'autres types de magnétisme existent comme l'antiferromagnétisme et le ferrimagnétisme.

I.3.1. Ferromagnétisme

Dans un corp ferromagnétique, les moments magnétiques sont orientés parallèlement. Le phénomène qui régit l'interaction entre moments magnétiques voisins est appelé *interaction d'échange d'Heisenberg* [5,6]. L'interaction d'échange agit à courte portée et concerne Les métaux de transition (Fe, Co, Ni, , ..) dont la couche 3d est partiellement remplie [7] et Les terres rares dont la couche 4f est partiellement remplie (Gd, Tb, Yb, Tm,..). Seulement le cobalt, le fer et le nickel conservent leurs propriétés ferromagnétiques à température ambiante lorsqu'ils sont purs. Cependant, il est possible d'élaborer un grand nombre d'alliages ferromagnétiques à partir de ces matériaux.

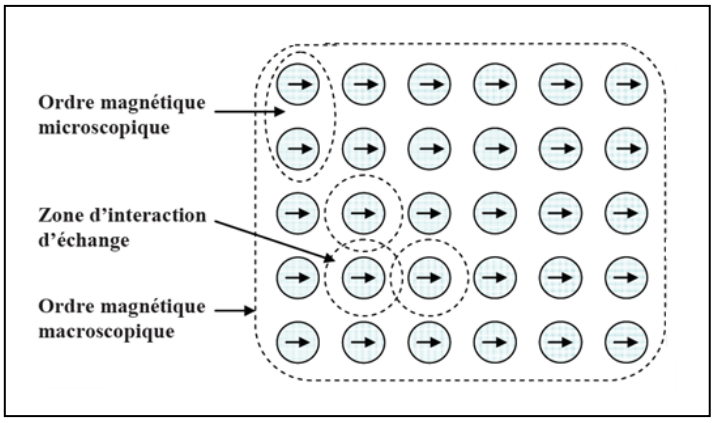


Figure I.2 : *Effet de l'interaction d'échange à courte portée sur l'ordre magnétique macroscopique dans les matériaux ferromagnétiques.*

I.3.1.1. Cycle d'hystérésis

La courbe d'hystérésis est la courbe donnant la valeur de l'aimantation M suivant la direction du champ appliqué en fonction de la valeur de ce champ [8]. Un matériau ferromagnétique se décompose en domaines magnétiques. Pour minimiser son énergie interne, ces domaines sont aimantés dans des directions différentes séparées par des parois. L'application d'un champ magnétique externe provoque le déplacement et la déformation de ces parois de domaines, ce qui cause des irréversibilités responsables de la forme des cycles d'hystérésis [9], dont le tracé permet d'évaluer les grandeurs caractéristiques d'un matériau ferromagnétique :

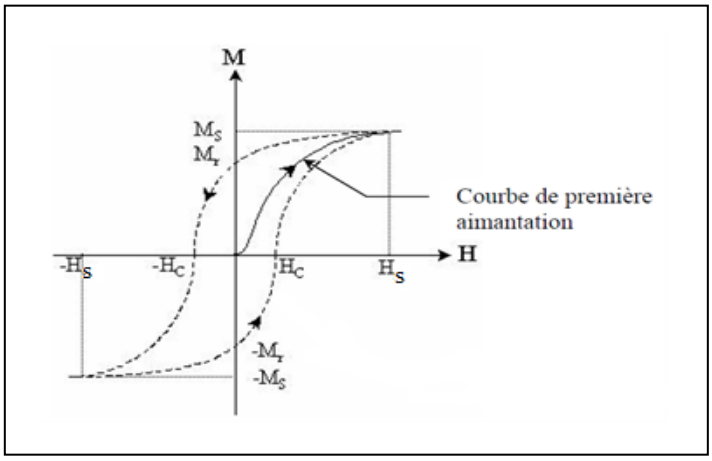


Figure I.3 : *Cycle d'hystérésis d'un matériau ferromagnétique.*

- L'aimantation rémanente « M_r » : est l'aimantation d'un matériau ferromagnétique à champ nul après avoir été soumis à un champ externe auparavant.

- L'aimantation à saturation « M_s » : correspond à l'aimantation où tous les moments magnétiques sont alignés.

- le champ de saturation « H_s » : c'est le champ nécessaire pour saturer l'échantillon.

Le champ coercitif « H_c » : est défini comme étant le champ qu'il faut appliquer pour réduire l'aimantation de la rémanence à zéro [10]. D'autre part, il représente le champ seuil minimal qu'on applique pour inverser le sens de l'aimantation d'un matériau ferromagnétique.

I. 3.1.2. Champ coercitif

Le champ coercitif est le champ qu'il faut appliquer aux particules aimantées dans une direction donnée pour annuler leur aimantation [11,12]. Sa valeur dépend principalement de l'énergie de l'anisotropie magnétocristalline, de l'anisotropie de forme et de la magnétostriction.

A partir de la valeur du champ coercitif, les matériaux magnétiques peuvent être classés en deux groupes : matériaux magnétiques doux et matériaux magnétiques durs.

Les matériaux magnétiques doux peuvent être facilement aimantés [10] et présentent un champ coercitif inférieur à 1000A/m environ [13]. Ils sont utilisés comme inducteurs dans les moteurs ou les transformateurs, et également comme têtes de lecture-écriture dans les dispositifs d'enregistrement magnétique [13,14]. Ils peuvent être constitués d'alliages métalliques (le fer et ses alliages) ou d'oxydes ferrimagnétiques (Mn-Zn, Mn-Mg, Mn-Ni-Zn…).

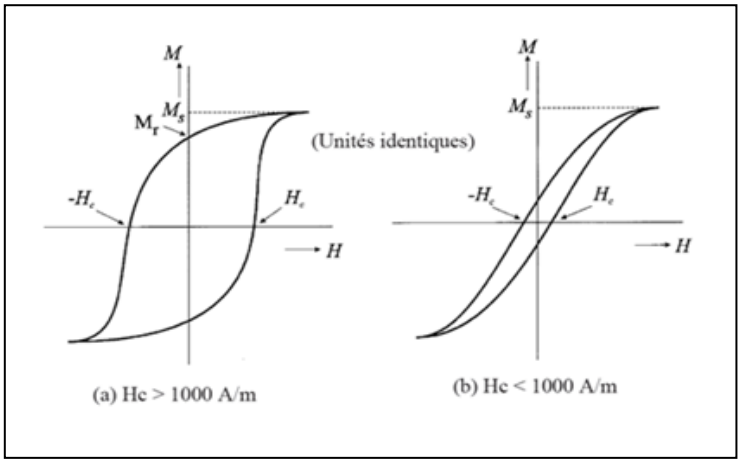


Figure I.4 : *Représentation schématique des cycles d'hystérésis de matériaux magnétiques (a) durs et (b) doux.*

Les matériaux magnétiques durs sont difficiles à aimanter et désaimanter [15] : ils nécessitent un très fort champ magnétique extérieur pour arriver jusqu'à saturation. Ces matériaux ont un cycle d'hystérésis large et présentent un champ coercitif supérieur à 1000A/m. Ils trouvent des applications dans les média de stockage de l'enregistrement magnétique (γ-Fe_2O_3 dopé par du cobalt) et magnéto-optique (alliage Fe-Co ; ferrites de Bi dopé Ga ; cobaltites de fer et ferrites hexagonaux…)

I.3.1.3. Anisotropie magnétique

L'anisotropie magnétique d'un matériau traduit le fait que son énergie libre dépend de la forme du matériau et de l'orientation de son aimantation par rapport à ses axes cristallographiques. L'orientation pour laquelle cette énergie libre est minimale (maximale) correspond à un axe de facile (difficile) aimantation [16]. Cette anisotropie peut avoir plusieurs origines. Les anisotropies de forme, magnéto-cristalline et magnéto-strictive, en sont les principales.

I.3.1.4. Anisotropie de forme et champ démagnétisant

L'anisotropie de forme traduit l'influence de la forme d'un matériau ferromagnétique sur la direction de l'aimantation [1,2]

Dans un échantillon magnétique, chaque moment magnétique subit une interaction dipolaire. Cette interaction est négligeable à courte distance comparée à l'interaction d'échange, mais devient prépondérante à longue distance. Il en résulte la création d'un champ dit démagnétisant qui s'oppose à l'aimantation qui le crée. L'énergie associée à ces interactions dipolaires est :

$$\boldsymbol{E_d = -2\pi \vec{H}_d \cdot \vec{M}} \qquad \textbf{(I.1)}$$

Le champ démagnétisant $\vec{H}_{\mathrm{d}}$ est calculé à partir de l'aimantation et de la forme de l'échantillon décrite par le tenseur $\bar{N}_d$:

$$\boldsymbol{\vec{H}_d = -\bar{N}_d \cdot \vec{M}} \qquad \textbf{(I.2)}$$

Dans le cas d'une couche mince où l'épaisseur de la couche est très inférieure aux dimensions latérales, le champ démagnétisant favorise la situation où l'aimantation est dans le plan de la couche [17]. L'équation I.1 se réduit dans le cas des films minces à

$$\boldsymbol{E_d = -2\pi M_s^2 \cos^2 \theta} \qquad \textbf{(I.3)}$$

θ étant l'angle entre la normale au plan et la direction de l'aimantation.

I.3.1.5. Anisotropie magnétocristalline

L'anisotropie magnéto-cristalline exprime le rapport existant entre le réseau cristallin et l'aimantation dans un solide ferromagnétique [18].

Elle trouve son origine dans le couplage spin-orbite. Pour faire prendre à l'aimantation une direction différente de la direction privilégiée, il faut donc fournir une certaine énergie, appelée énergie magnétocristalline.

On distingue deux types d'anisotropie magnétocristalline: les anisotropies magnétocristalline *cubique* et *uniaxe.*

L'anisotropie uniaxe se distingue par la propriété de ne posséder qu'une direction facile unique. Le cobalt de structure hexagonale présente un axe facile suivant l'orientation [0001] et un axe difficile suivant la direction $[10\bar{1}0]$.

L'énergie d'anisotropie magnétocristalline peut s'écrire :

$$\boldsymbol{E = K_1 sin^2\theta + K_2 sin^4\theta} \qquad \textbf{(I.4)}$$

Pour Co à température ambiante : K_1 = 4,1 x 10^5 Jm^{-3} et K_2= 1,0 x 10^5 Jm^{-3}.

Avec θ l'angle que fait l'aimantation $\overrightarrow{M}$ avec l'axe d'anisotropie, K_1 et K_2 sont les constantes d'anisotropie [19].

I.3.1.6. Anisotropie magnétoélastique

Lorsqu'un matériau est soumis à un champ magnétique, son interaction avec les moments magnétiques provoque une déformation du matériau. Il s'agit d'une déformation élastique en réponse à une contrainte. Les dimensions d'un échantillon magnétique macroscopique évoluent en fonction de la direction de l'aimantation. Ce phénomène est appelé magnétostriction et a été découvert par Joule en 1842 [20]. La déformation du réseau cristallin sous l'action d'une contrainte extérieure induit une modification des propriétés magnétiques [10].
Dans le cas de films minces, il existe souvent une différence entre le paramètre de maille du film et celui du substrat, ce qui peut induire des contraintes élastiques à l'interface. Celles-ci dépendent non seulement de la différence de paramètre de maille mais aussi de l'épaisseur de la couche déposée.
L'anisotropie magnétoélastique associée à cet effet s'exprime par :

$$\boldsymbol{E_{me} = \frac{3}{2}\lambda_s \sigma sin^2\theta} \qquad \textbf{(I.5)}$$

σ la contrainte, λ_s la constante de magnétostriction à saturation qui peut être soit positive ou négative [8].

I.3.1.7. Domaines magnétiques et parois entre domaines

Les matériaux ferromagnétiques possèdent une aimantation spontanée au-dessous de Tc. Pourtant, ces matériaux se présentent généralement dans un état désaimanté, d'aimantation globale nulle. P. Weiss, en 1907, a introduit la notion de domaines magnétiques pour expliquer

cette incompatibilité apparente entre l'existence d'un arrangement ordonné des moments magnétiques et une aimantation nulle. Il a supposé que ces matériaux se subdivisaient en volumes élémentaires appelés domaines de Weiss. Chaque domaine possède une aimantation spontanée, mais d'un domaine à l'autre, l'aimantation n'a pas la même direction, de sorte qu'au niveau macroscopique, l'aimantation est nulle en l'absence de champ magnétique [21].

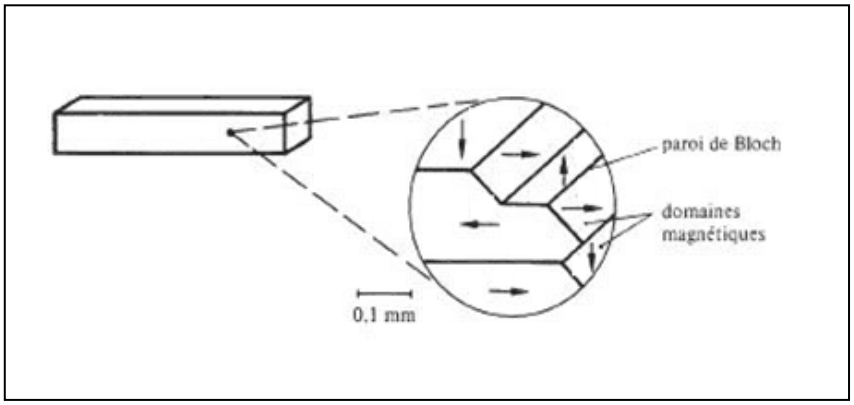


Figure I.5 : *Division d'un corps ferromagnétique en domaines magnétiques.*

L'interface, ou la région entre deux domaines adjacents, est appelée *paroi* de domaine à l'intérieur de laquelle l'aimantation locale est saturée. Deux types de parois existent: paroi de Néel et paroi de Bloch. Pour les couches très minces, où l'épaisseur de la couche est très petite devant l'épaisseur de la paroi, les parois de Néel sont plus favorisées. Ce type de paroi est caractérisé par des pôles de spin apparaissant dans le corps ferromagnétique. L'aimantation tourne alors parallèlement au plan de la paroi. Dans le cas contraire, c'est-à-dire pour des couches épaisses, les parois de Bloch sont préférées. Ici les pôles apparaissent dans la surface de la couche et l'aimantation tourne parallèlement au plan de la paroi [8, 22].

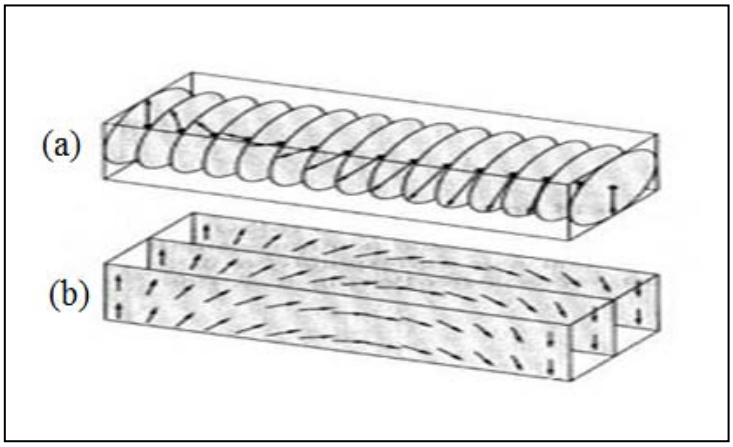


Figure I.6 : *Parois de domaines: a- Paroi de Bloch, b-Paroi de Néel.*

I.3.1.8.Température de Curie

La température de Curie est la température au-dessus de laquelle l'aimantation macroscopique d'un matériau ferromagnétique devient nulle [18,23]. Au delà de cette température, l'énergie thermique des électrons devient supérieure à la somme des énergies d'échange et dipolaire. La distribution des moments magnétiques atomiques devient aléatoire, et donc le matériau ferromagnétique se comporte alors comme un matériau paramagnétique. La température de Curie du cobalt est de 1388K.

I.3.1.9. Mécanismes de renversement de l'aimantation

Le processus de retournement d'aimantation est lié aux mouvements des parois du matériau ferromagnétique soumis à l'action d'un champ magnétique extérieur croissant. Son principe est la base de l'hystérésis magnétique.

Le modèle le plus simple est le renversement cohérent ou uniforme qui a été développé par Stoner-Wohlfarth et Louis Néel [24,25]. Dans ce modèle, l'aimantation varie de manière identique en tous les points de l'échantillon. Un autre modèle de renversement existe c'est le renversement incohérent ou non-uniforme où les moments magnétiques ne tournent pas de manière uniforme telles les rotations incohérentes en mode flambage *« buckling » et* rotations incohérentes en mode enroulement *« curling »*.

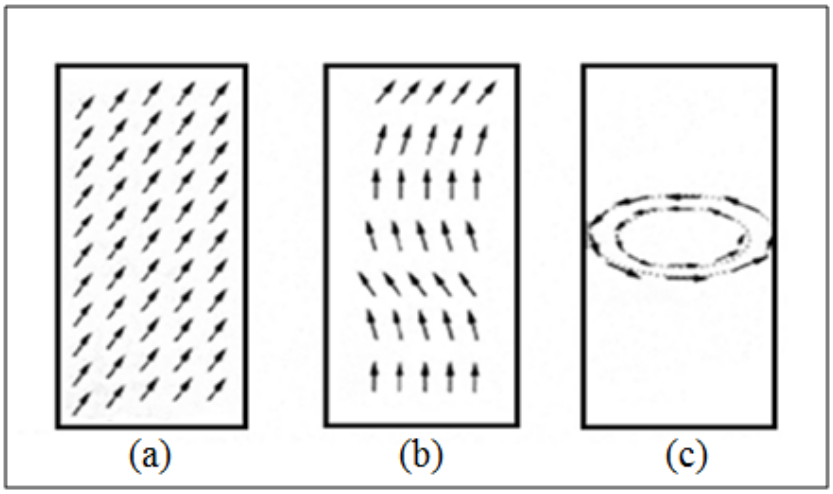


Figure I.7 : *Modes de renversement possible dont les flèches schématisent les spins à l'intérieur de la structure : a) Rotation cohérente, b) Buckling, c) Curling.*

I.3.2. Diamagnétisme

Les matériaux diamagnétiques sont constitués d'atomes sans moment magnétique permanent. L'application d'un champ magnétique extérieur induit une aimantation faible dans le sens opposé a ce champ. Le diamagnétisme provient de la déformation des orbitales électroniques des atomes sous l'action d'un champ magnétique extérieur.

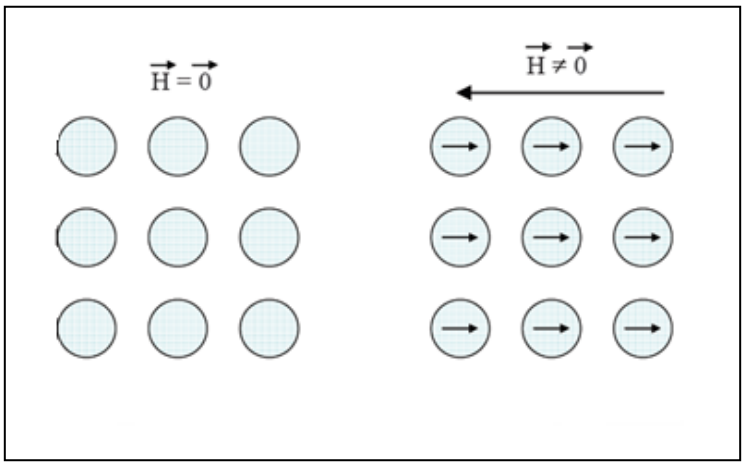


Figure I.8 : *Schéma explicatif du diamagnétisme à l'échelle microscopique.*

I.3.3. Paramagnétisme

Les matériaux paramagnétiques sont caractérisés par des atomes porteurs des moments magnétiques orientés indépendamment les uns par rapport aux autres. En absence de champ magnétique, les moments magnétiques sont orientés aléatoirement. Cette distribution aléatoire des moments donne une aimantation totale nulle. Lorsque le matériau est plongé dans un champ magnétique, l'aimantation résultante tend à s'orienter dans le même sens que celui-ci.

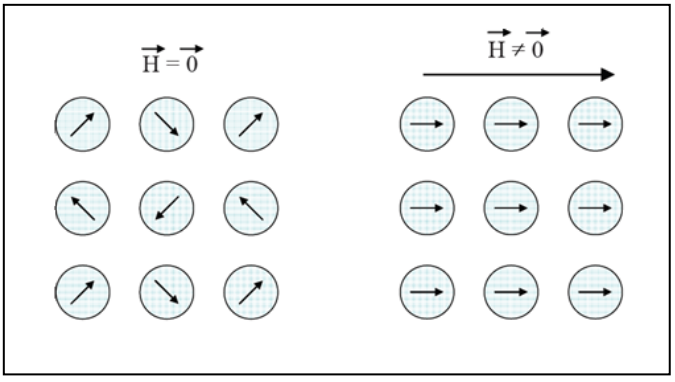


Figure I.9 : *Schéma explicatif du paramagnétisme.*

I.3.4. Antiferromagnétisme

Dans un corps antiferromagnétique, les moments magnétiques ont le même module et sont orientés antiparallèlement. La compensation de ces moments induit un moment macroscopique nul. Les matériaux antiferromagnétiques, du fait de l'absence d'une aimantation spontanée, présentent peu d'intérêt dans la plupart des applications.

I.3.5. Ferrimagnétisme

Dans un corps ferrimagnétique, les moments magnétiques sont alignés antiparallèlement, mais les modules des moments ne sont pas égaux de sorte qu'il en résulte une aimantation spontanée plus faible que celle observée dans le cas des matériaux ferromagnétiques. Les matériaux ferrimagnétiques possèdent en général une température de Curie plus basse que celle des matériaux ferromagnétiques.

I.4. Matériaux magnétiques de stockage d'information : l'alliage Co_xPd_{1-x}

L'alliage Co_xPd_{1-x} est un alliage binaire composé de deux métaux de transition : un élément ferromagnétique le cobalt (3d) et un élément, non magnétique, le palladium (4d).

Le cobalt pur présente deux formes allotropiques différentes qui sont en équilibre pour une température d'environ 695K [26] : une phase cubique faces centrées (cfc), stable à haute température, et une phase hexagonale compacte (hcp), stable à basse température. Le parametre de maille cfc est $a = b = c = 3{,}55$ Å [27] et $a = b = 2{,}51$ Å et $c = 4{,}08$ Å pour la maille hexagonale [28]. Sa température de fusion est de 1 768K [29] et son énergie de surface est de 2,55 $J.m^{-2}$ [30].

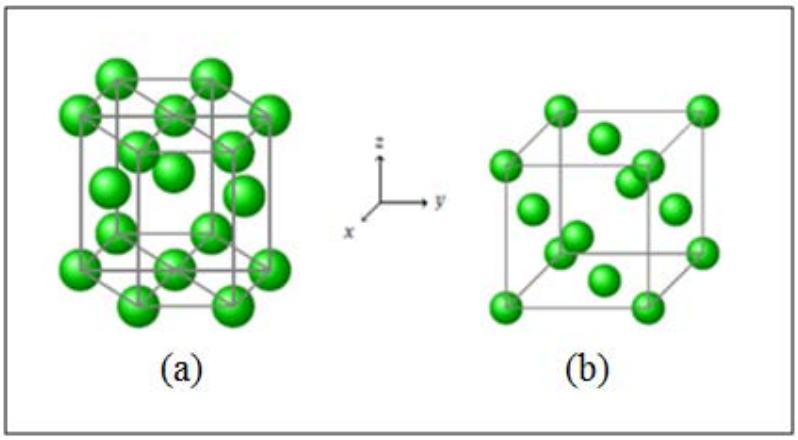


Figure I.10 : *Structure cristallographique de Co : hcp(a) et cfc(b).*

Le palladium pur a une structure cristalline cfc de paramètre de maille $a = b = c = 3{,}90$ Å [31]. Le palladium a une énergie de surface de 2,1 $J.m^{-2}$ [32] et sa température de fusion est de 1825 K [32].

I.5. Diagramme de phase de CoPd

Le diagramme de phase du système cobalt- palladium présente une série continue de solutions solides, de structure cubique à faces centrées (cfc), chimiquement désordonnées sur toute la gamme de composition. Les atomes de cobalt et de palladium occupent des positions aléatoires, c'est-à-dire que la probabilité d'occupation d'un atome de cobalt ou de palladium sur un nœud du réseau dépend seulement de la concentration des éléments. Comme on le voit sur la figure I.12 , l'alliage CoPd forme des phases chimiquement ordonnées : L12 pour $Co_{25}Pd_{75}$ et $Co_{75}Pd_{25}$ et L10 pour la composition $Co_{50}Pd_{50}$. Pour cette composition, la phase chimiquement ordonnée L10 peut être vue comme un empilement successif de monocouches de cobalt et de palladium suivant l'axe cristallographique c (voir figure I.12 (b)) ; il en résulte une légère contraction des distances suivant cette direction, ce qui a pour conséquence de rendre la maille tétragonale et non plus cubique. Les paramètres de mailles de l'alliage $Co_{50}Pd_{50}$ de structure L10 sont a = b = 3,7950 Å et c = 3,6891 Å [33], alors que sous sa forme désordonnée, les paramètres de maille sont a = b = c = 3,72 Å [31]. Les structures ordonnées chimiquement L12 possèdent la symétrie cubique (voir figure I.12 a et c), c'est à dire que les trois axes cristallographiques sont équivalents. La phase L12 peut être vue comme une alternance de plans mixtes de composition $Co_{50}Pd_{50}$ et de plans purs en cobalt ou en palladium suivant que l'on considère la composition $Co_{75}Pd_{25}$ ou $Co_{25}Pd_{75}$ respectivement. La phase L10 possède des propriétés magnétiques très importantes.

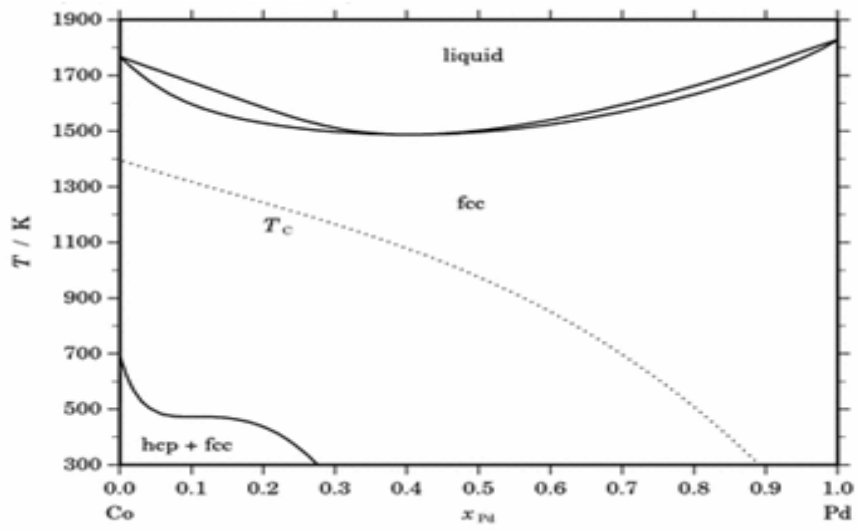


Figure I.11 : *Diagramme de phase du système CoPd.*

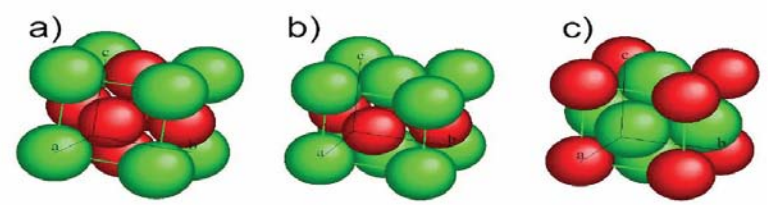


Figure I.12 : *Structures cristallines des alliages ordonnés : (a) $Co_{25}Pd_{75}$ L12, (b) $Co_{50}Pd_{50}$ L10, (c) $Co_{75}Pd_{25}$ L12. Les atomes de Co sont représentés en vert, ceux de Pd en rouge.*

I.6. Applications technologiques

L'une des applications majeures des couches minces ferromagnétiques est l'enregistrement magnétique des informations. Aujourd'hui, les principaux supports de stockage d'information sont des matériaux magnétiques (disques durs, cf. figure I.13). Le premier disque dur magnétique fut inventé par IBM en septembre 1956 : RAMAC (Random Access Method of Accounting and Control). Malgré sa taille imposante, il ne pouvait stocker que 5 Mo de données à cause de sa faible densité de stockage (300 bits.cm^{-2}). Le bit est la plus petite entité de stockage d'information.

Dans le cadre de media magnétique, un bit d'information est constitué par une zone où tous les moments magnétiques sont alignés. La direction de cette aimantation permet le stockage de l'information par codage binaire : "0" ou "1").

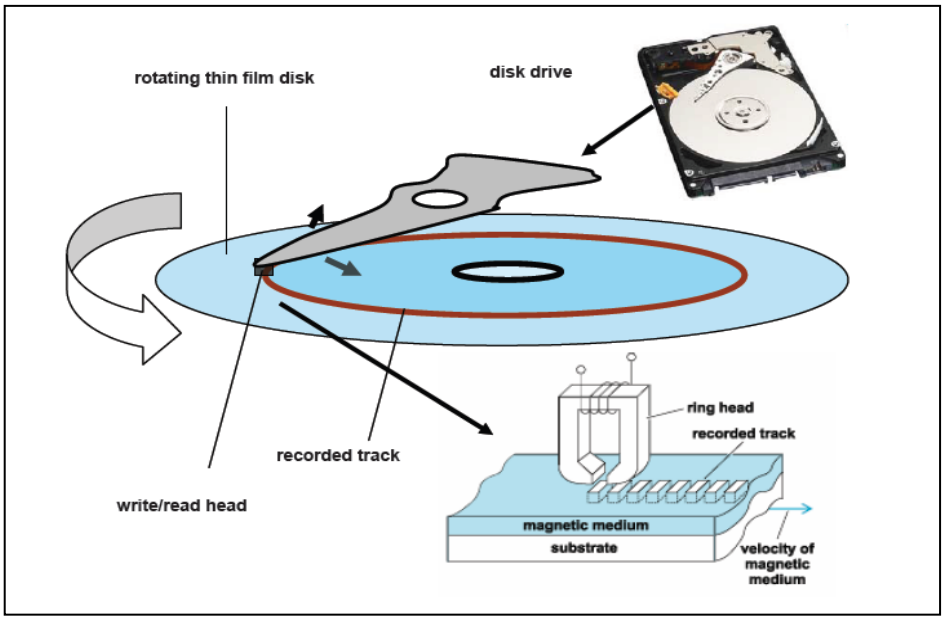


Figure I.13 : *Schéma explicatif du principe de l'enregistrement magnétique.*

Au cours de ces 20 dernières années, une extraordinaire accélération a été observée dans la progression des densités de stockage : 30% par an avant 1992, avec la diminution progressive de la taille de l'ensemble des composants, puis 60% par an, à partir de l'introduction par IBM des têtes de lecture magnétorésistives en 1992, et enfin, 100% par année, durant quelques années, à partir de l'introduction, également par IBM en 1999, de têtes de lecture à magnétorésistance géante. Le principal facteur limitant l'augmentation de la densité de stockage c'est le superparamagnétisme (l'aimantation fluctue et l'information risque d'être perdue).

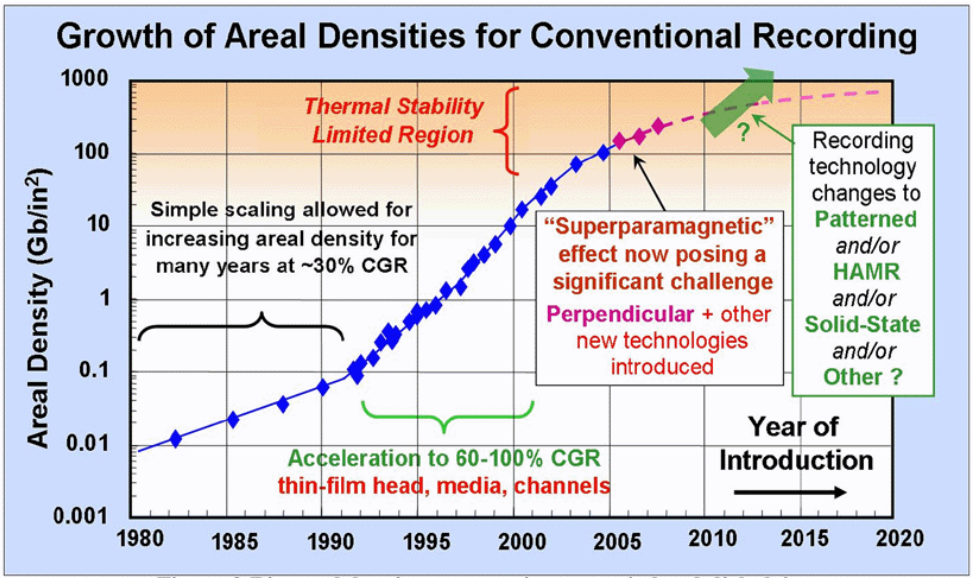


Figure I.14 : *Evolution de la densité d'informations des disques durs depuis1980.*

I.7. Mode d'enregistrement longitudinal

Le procédé d'enregistrement, encore récemment dominant, est l'enregistrement longitudinal illustré par le schéma de la Figure I.15. La dénomination « longitudinale » provient du fait que le matériau est aimanté dans le plan de la couche. Actuellement, la technologie "LMR" est à ses limites, et ceci est dû aux fluctuations thermiques; autrement dit, il y a une limite superparamagnétique.

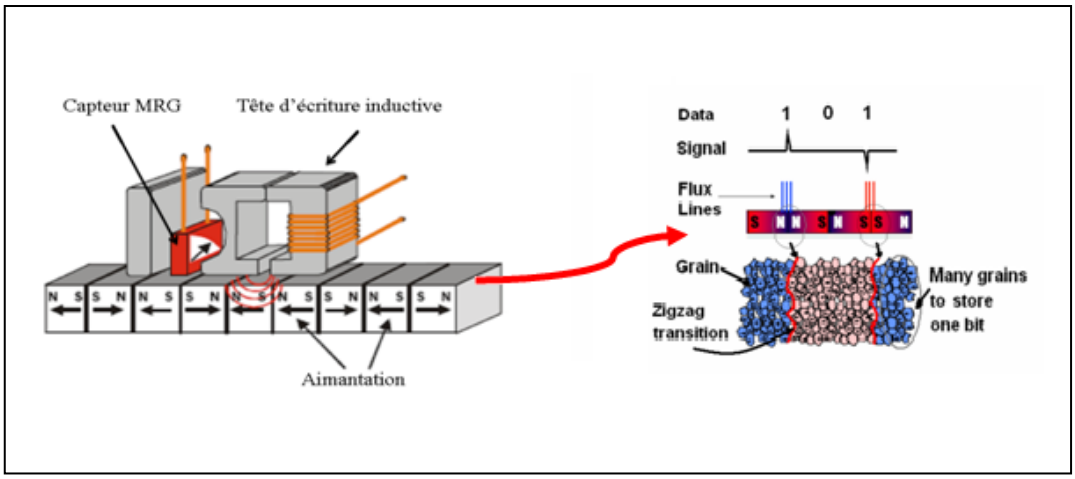


Figure I.15 : *Enregistrement magnétique longitudinal.*

I.8. Le superparamagnétisme

Le superparamagnétisme est un problème majeur dans le stockage de données magnétiques.

En effet, afin d'augmenter la quantité de données stockées, la taille des bits magnétiques doit diminuer. Mais en dessous d'une taille critique, l'énergie d'anisotropie magnétocristalline n'est plus assez grande pour empêcher l'effet superparamagnétique d'apparaître à température ambiante. Le temps de relaxation devient comparable au temps caractéristique associé au stockage de données, qui est de l'ordre de 10 ans [34]. Un moyen de lutter contre le superparamagnétisme est d'augmenter l'anisotropie magnétocristalline et par conséquent la température de blocage.

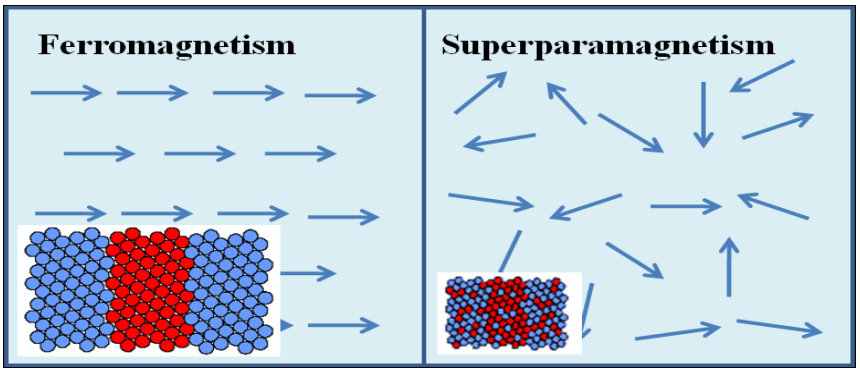


Figure I.16: *Schéma explicatif du ferromagnétisme et superparamagnétisme.*

I.9. Solutions pour l'avenir

L'augmentation de la densité de stockage nécessite la diminution de la taille des bits d'information. Cependant, Charap et al. [35] ont prédit, à l'aide de simulations de Monte-Carlo, que le procédé d'enregistrement longitudinal ne permettrait pas de dépasser une densité de 36-40 Gigabits/in² (soit 230-260 Gigabits/cm²). Plusieurs solutions sont envisagées pour résoudre ce problème, Nous décrivons brièvement ci-dessous les principes des média à enregistrement perpendiculaire, de l'enregistrement thermiquement assisté et les média discrets.

I.9.a. Les média à enregistrement perpendiculaire

Dans ce cas, l'aimantation est perpendiculaire à la surface du film magnétique et les moments sont plus stables que dans la configuration longitudinale où les pôles nord–nord ou sud-sud sont en contact. Le principe est proposé, pour la première fois, par le Professeur Shun-Ichi Iwasaki en 1977, mais l'idée est mentionnée bien auparavant à l'université de Berkeley (Californie) en 1940. Depuis 2006, la majorité des disques durs commerciaux repose sur cette nouvelle technologie. Cette nouvelle configuration implique l'utilisation d'une nouvelle géométrie pour la tête d'écriture (Figure I. 17) permet de concentrer les lignes de champ sous le sabot étroit (« P » sur le schéma) et de les collecter par le vaste sabot additionnel (« pôle auxiliaire») après propagation dans une sous-couche magnétique douce. L'intense champ magnétique créé au niveau de la zone d'écriture est plus fort, et autorise l'usage de matériaux à plus forte anisotropie.

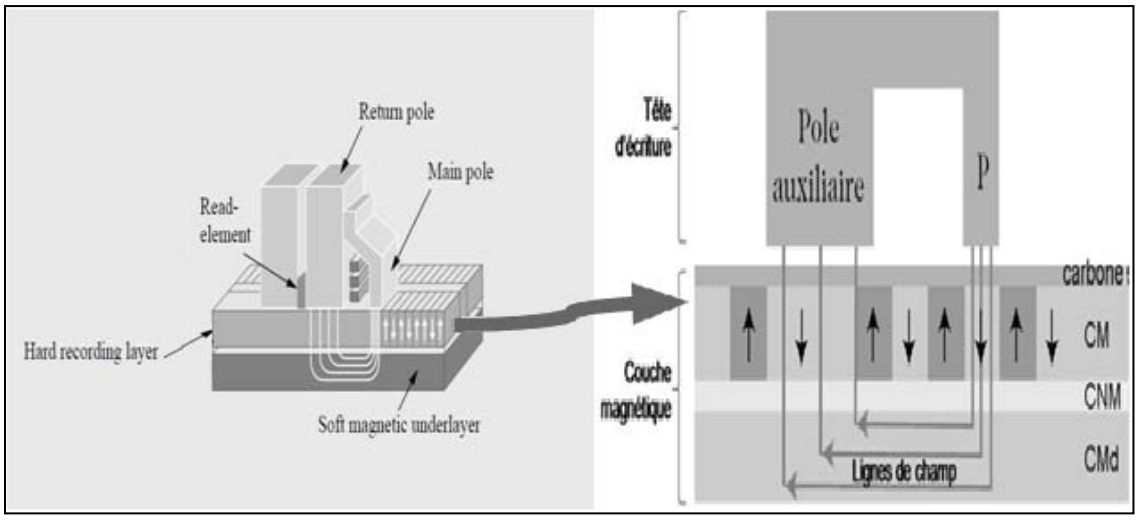


Figure I.17 : *Géométrie des média à enregistrement perpendiculaire : tête d'écriture adaptée et description de la couche magnétique composée d'une couche magnétique dure (CM), d'une couche non magnétique (CNM) et enfin d'une couche magnétique douce (CMd).*

I.9.b. L'enregistrement thermiquement assisté

L’augmentation de la densité de stockage necessite l’utilisation de matériaux de très forte anisotropie, mais la coercivité de ces matériaux est très élevée et donc l’utilisation des têtes d’écriture conventionnelles est insuffisante.

L’enregistrement thermiquement assisté vise à abaisser la valeur du champ H_c lors de la phase d’écriture, en chauffant localement le média magnétique. En effet, l'accroissement de la température facilite le franchissement de la barrière d'énergie E_B entre les deux états d’aimantation stable.

La technologie la plus proche d'un usage pratique repose sur l'utilisation conjointe d'un laser et d'une tête d'écriture conventionnelle [36,37]. Malgré la complexité supplémentaire apportée à la tête de lecture/écriture, l'enregistrement thermiquement assisté se développera davantage dans les toutes prochaines années.

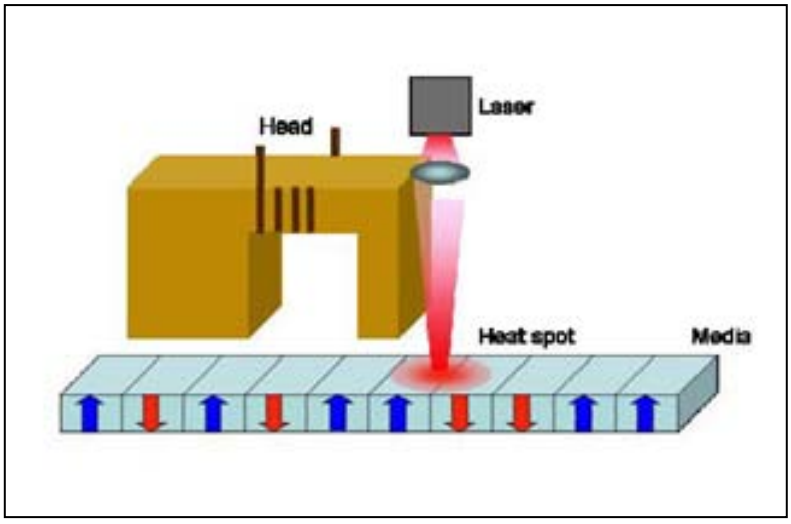


Figure I.18 : *Principe de l’enregistrement thermiquement assisté.*

I.9.c. Les média discrets

Les média discrets, tels que présentés dans la figure I. 19, sont une distribution périodique de plots magnétiques discrets préparés par lithographie ou auto-organisation. Chaque bit d'information est contenu dans un plot magnétique individuel, physiquement séparé des plots voisins. Par contre, dans les média actuels, le bit d'information est constitué d’une centaine de grains magnétiques afin de compenser, par un effet de moyenne, les fluctuations de leurs propriétés (taille, axe d'anisotropie, orientation…)

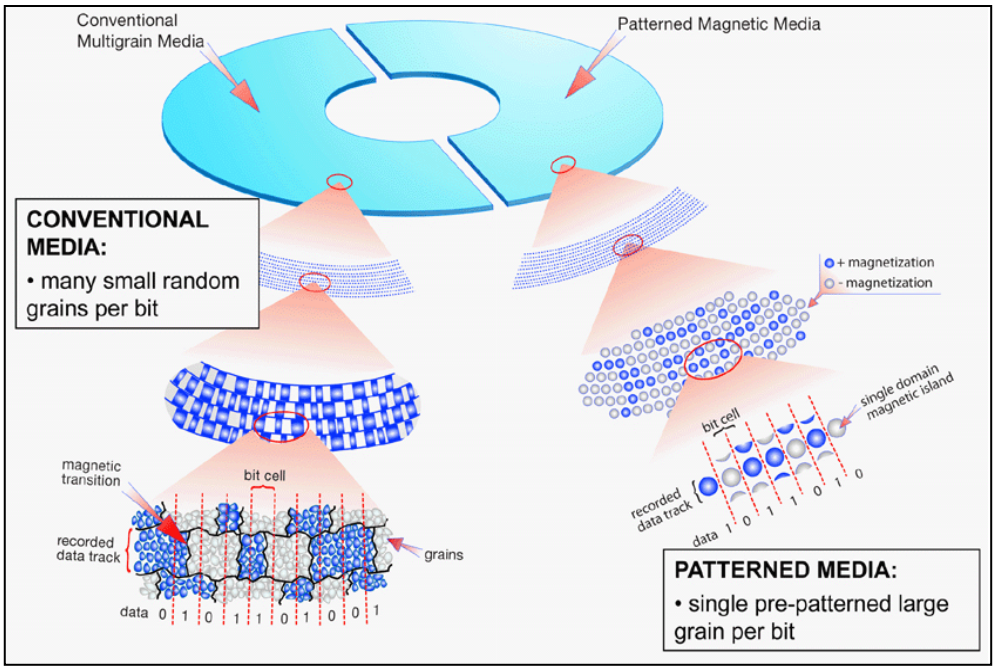


Figure I.19 : *Comparaison entre les média conventionnels (gauche) et les média discrets (Droite).*

Parmi les avantages des média discrets, l'élimination de transition de bit ainsi que la taille de chaque grain supportant le bit d'information qui peut être plus élevé qu'un média granulaire, à densité d'enregistrement comparable. Pour correspondre à des densités compétitives, les dimensions latérales des plots magnétiques devront être inférieures à 50 nm. Les problèmes liés au superparamagnétisme seraient ainsi repoussés, avec des matériaux identiques. Les performances pourraient être encore augmentées avec l'utilisation d'alliages présentant de plus fortes anisotropies.

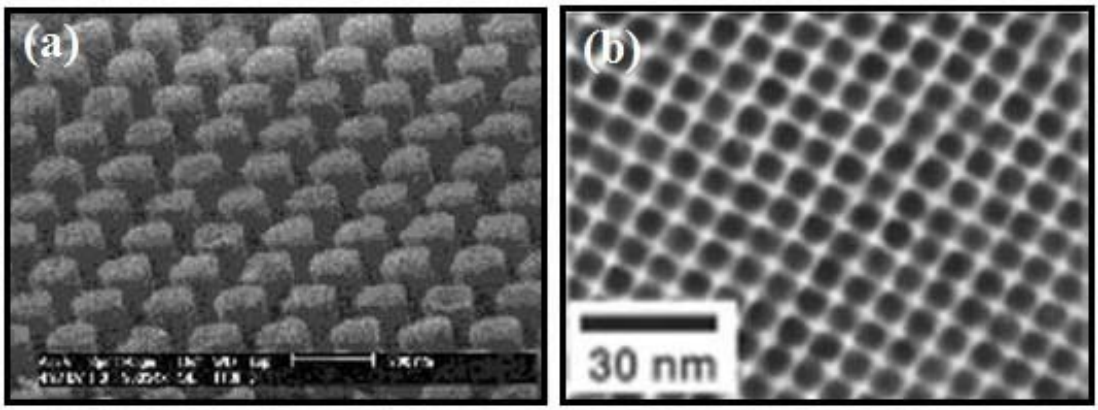


Figure I.20 : *Exemple de structure pour les media discrets :*
(a) lithographie de couches minces magnétiques et (b) auto-organisation de NPs.

Références bibliographiques

[1] M.L. Sands et R.P. Feynman, *Cours de physique de Feynman*, London, Addison-Wesley, 1970.

[2] M.L. Sands et R.P. Feynman, *Cours de physique de Feynman2*, London, Addison-Wesley, 1975.

[3] *Magnetism in condensed matter*, Oxford, Oxford University Press, 2001.

[4] *Physics of ferromagnetism*, Oxford, Clarendon Press, 1997.

[5] *Introduction to magnetism and magnetic materials*, London, Chapman and Hall, 1991.

[6] E. Du Tremolet de Lacheisserie, *Magnétisme*, Grenoble, Presses universitaires de Grenoble, 1999.

[7] Givord, Degauque, Lebouc, Tenaud, Le Gall, verdaguer, Fert, du Tremolet de Lacheisserie, Claeyssen, Gugat et Regnier, *Materiaux à propriétés spécifiques, les matériaux magnétiques.*

[8] A. Layadi, *introduction au magnétisme*, OPU, Alger, 2004.

[9] R. E. Smallman, R. J. Bishop, *Modern Physical Metallurgy and Materials Engineering*, Oxford, 1999.

[10] Giorgio Bertotti, *Hysteresis in Magnetism*, Academic Press, 1998.

[11] Kittel, C. *Introduction à la physique de l'état solide* Dunod, Paris, 1958.

[12] Lahmani, M., Dupas, C. & Houdy, P. *Nanotechnologies et nanophysique*, Belin, Paris, 2006.

[13] A. P. Guimaraes, *Magnetism and magnetic resonance in solids*, John Wiley & Sons, 1998.

[14] K. H. J. Buschow, F. R. De Boer, *Physics of Magnetism and Magnetic materials*, New York, 2004.

[15] M, Ohring, *the Materials Science of Thin Films*, Academic Press, 1992.

[16] C. Kittel, *physique de l'état solide*, 5^{ieme} édition Dunod, 1983.

[17]R. Bozorth and ASM International, *Magnetic properties of metals and alloys*, Cleveland, 1959.

[18] Couderchon, *Alliages magnétiques doux. Techniques de l'ingénieur*, vol. M 350, 1998.

[19] A.H.Morrish, *the Physical Principles of Magnetism*, R.E.Krieger Publishing Company, Huntington, New York, 1980.

[20] B. D. Cullity, C. D. Graham, *Introduction to magnetic materials*, IEEE press, 2009.

[21] Hoa LE TRONG, *Thèse de Doctorat de l'Université de Toulouse III – Paul Sabatier*, 2009.

[22] H. T. Diep, *Physique de la matière condensée*, Dunod, Paris, 2003.

[23] Nozières, *Ferromagnétisme, Techniques de l'ingénieur*, vol. E 1730, 1989.

[24] A. P. Popa, *Thèse de Doctorat de l'Université de Grenoble*, 2004.

[25] E. Bonet, *Thèse de Doctorat de l'Université de Grenoble*, 1999.

[26] M. Erbudak, E. Wetli, M. Hochstrasser, D. Pescia, et D. D. Vvedensky, Physical Review Letters **79** (1997) 1893–1896.

[27] R. W. Wyckoff. *Crystal structures*, Wiley, 2nd edition, 1964.

[28] B. W. Lee, R. Alsenz, A. Ignatiev, et M. A. Van Hove, Physical Review B **17**(1978) 1510–1520.

[29] J. R. Davis, *Nickel, cobalt, and their alloys*, ASM International, 2000.

[30] W. Tyson et W. Miller, Surface Science **62** (1977) 267–276.

[31] K.Tobari, M. Ohtake, K. Nagano, M. Futamoto, Thin Solid Films **519** (2011) 8384–8387.

[32] Przemyslaw J. Godowski and Stefan M. Zuber, Journal of Materials Chemistry **9** (1999) 1835–1837.

[33] P.M. Oppeneer, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **188** (1998) 275-285.

[34] Romain Fleurier, *Thèse de Doctorat de l'Université d'Orléans*, 2007.

[35] S. H. Charap, Pu-Ling Lu, and Yanjun He, IEEE Transactions on Magnetics **33** (1997) 978-983.

[36] Ruigrok, J. J. M., R. Coehoorn, S. R. Cumpson et H. W. Kesteren, Journal of Applied Physics **87** (2000) 5398-5403.

[37] Alex, M.; Tselikov, A.; McDaniel, T.; Deeman, N.; Valet, T.; Chen, D., IEEE Transactions on Magnetics **37** (2001) 1244-1249.

Chapitre II

Techniques expérimentales

Chapitre II : Techniques expérimentales

II.1. Introduction

II.2. Techniques d'élaboration des couches minces

II.2.1. Evaporation sous vide

II.2.1.1. Evaporation par effet joule

II.2.1.2. Evaporation par bombardement d'électrons

II.2.1.3. Evaporation par induction

II.2.1.4. Evaporation par arc électrique

II.2.2. Pulvérisation cathodique

II.2.3. Les divers systèmes de pulvérisation

II.2.4. Epitaxie par jet moléculaire (MBE)

II.2.5. Ablation laser (PLD)

II.2.6. Electrodéposition

II.2.7. Dépôt chimique en phase vapeur (CVD)

II.2.8. La méthode Sol-Gel

II.2.9. Dépôt par Spray Pyrolyse

II.3.Appareillage utilisé

Description de l'évaporateur

II.4. Techniques de caractérisations

II.4.1. Profilomètre mécanique

II.4.2. Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)

II.4.3. Microscope à Force Atomique (AFM)

II.4.4. Diffraction des rayons X

II.4.5. Spectrométrie de fluorescence X (XRF)

II.4.5.1. Les spectromètres à dispersion en énergie (EDS)

II.4.5.2. Les spectromètres à dispersion en longueur d'onde (WDS)

II.5. Conclusion

Références bibliographiques

II.1. Introduction

Une couche mince d'un matériau donné, est, par définition, un empilement d'atomes déposés sur une surface appelée substrat, et dont l'une des dimensions, à savoir l'épaisseur, est fortement réduite de telle sorte qu'elle s'exprime en nanomètres. Leurs propriétés physiques sont étroitement liées aux paramètres de dépôt [1,2].

Ce second chapitre s'articule en deux parties. Dans la première partie nous allons donner un aperçu sur les techniques de dépôt des couches minces, en précisant la méthode utilisée pour élaborer nos échantillons. La seconde partie traite des divers dispositifs de caractérisation utilisés durant ce travail.

II.2. Techniques d'élaboration des couches minces

L'élaboration d'une couche mince est une étape très importante, car les propriétés physiques du matériau résultant dépendent de la technique du dépôt. Il est donc important de choisir la méthode d'élaboration la plus appropriée à l'application recherchée et de contrôler au maximum les conditions d'élaboration.

On distingue deux grandes catégories de méthodes d'élaboration de couches minces : les méthodes physiques et les méthodes chimiques. Les méthodes physiques (utilisant du matériel lourd et nécessitant un environnement sous vide) sont, en général, utilisées en recherche, alors que les méthodes chimiques sont plutôt utilisées industriellement, à cause de leur meilleur rendement. 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 des techniques utilisées actuellement : l'évaporation sous vide, la pulvérisation, l'épitaxie par jets moléculaires, et l'ablation laser. Parmi les méthodes chimiques, nous citons la CVD (Chemical vapor deposition), l'électrodéposition, le sol gel et spray pyrolyse.

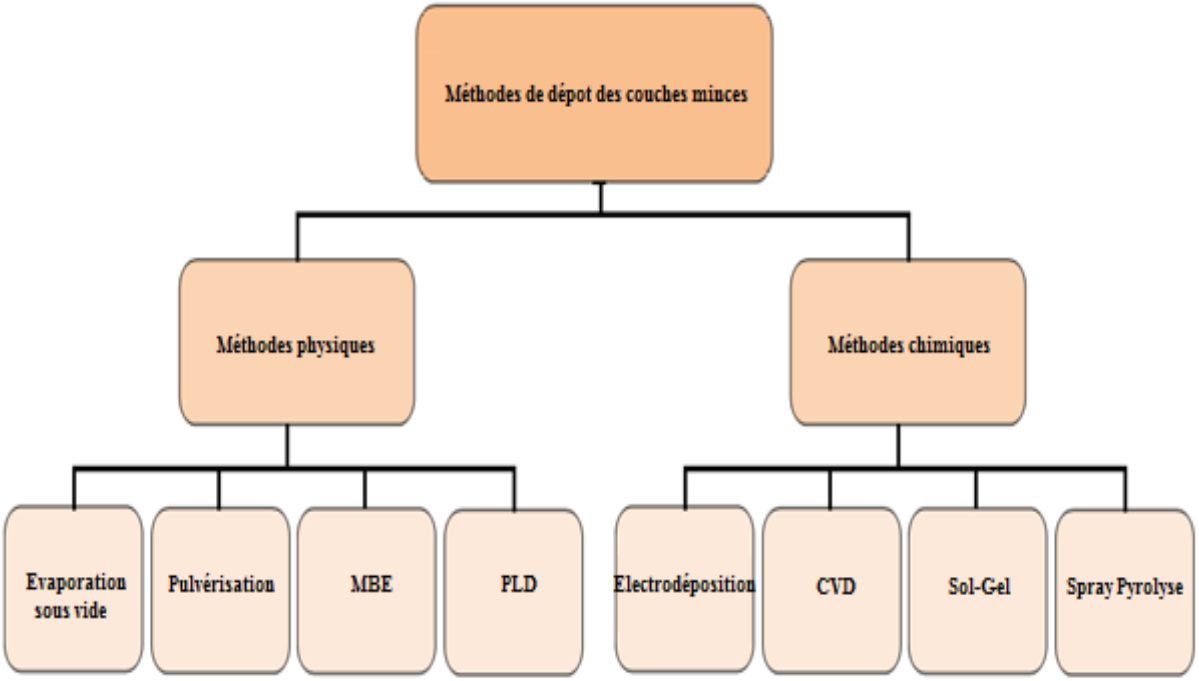


Figure II.1 : *Les méthodes de dépôt des couches minces.*

II.2.1. Evaporation sous vide

Cette technique consiste à chauffer sous vide le matériau que l'on veut déposer. L'énergie vibratoire des atomes constituant le matériau dépasse l'énergie de liaison et provoque l'évaporation, la phase vapeur se condense sur le substrat. Ceci conduit à la formation d'une couche mince. Pour éviter tous les risques de contamination, cette technique nécessite un vide poussé [3,4]. Le chauffage dans cette technique s'effectue par plusieurs méthodes :

II.2.1.1. Evaporation par effet joule

C'est la technique que nous avons utilisée pour élaborer les échantillons étudiés dans ce travail de thèse. Cette technique utilise un courant électrique intense qui chauffera, par effet joule, un creuset ou filament généralement fabriqué à base de métaux réfractaires (tungstène, tantale, molybdène …) dans une chambre sous vide de l'ordre de 10^{-6}à 10^{-7} Torr.

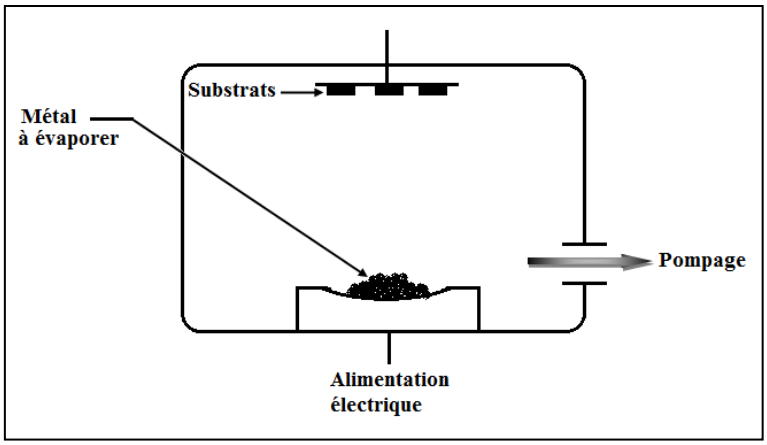


Figure II.2 : *Schéma d'un bâti d'évaporation par effet joule.*

II.2.1.2. Evaporation par bombardement d'électrons

Cette technique consiste à bombarder le matériau à évaporer par un faisceau d'électrons accélérés par un champ électrique et focalisés par voie électromagnétique vers la cible à évaporer, qui est placée dans un creuset en cuivre refroidi par eau. Elle est devenue la technique la plus utilisé parmi les techniques sous vide [5-7].

II.2.1.3. Evaporation par induction

Dans ce cas, la substance à évaporer est placée dans un creuset en matériau diélectrique. Ce creuset est entouré d'une bobine alimentée en courant alternatif haute fréquence, qui induit des courants électriques dans le matériau provoquant ainsi son échauffement.

II.2.1.4. Evaporation par arc électrique

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

II.2.2. Pulvérisation cathodique

La pulvérisation cathodique [8] consiste à déposer, sur un substrat, des atomes arrachés à une source solide par une décharge luminescente (ou plasma).

Le bâti est composé d'une enceinte à vide (10^{-4} à 10^{-6} Pa) [9], dans laquelle la cible, constituée du matériau à pulvériser, est fixée sur la cathode. Les substrats à recouvrir sont placés sur l'anode.

L'expérience consiste à ioniser l'argon, gaz chimiquement inerte, entre l'anode et la cathode, en appliquant une décharge électrique. Cette ionisation provoque l'apparition d'un nuage luminescent appelé plasma, localisé entre les deux électrodes. Ce plasma est composé d'atomes neutres, d'ions positifs Ar+ et d'électrons. Les ions Ar+ sont accélérés par le champ électrique en direction de la cible. Celle-ci est ainsi bombardée par des ions relativement lourds qui arrachent les atomes dont elle est constituée. La vapeur métallique qui découle de

cette pulvérisation est ensuite condensée sur le substrat, formant une couche mince du même matériau que celui de la cible.
Plusieurs dérivés de cette technique existent pour contourner certains problèmes.

II.2.3. Les divers systèmes de pulvérisation

Il existe plusieurs systèmes de pulvérisations. Le plus simple et le plus ancien est le procédé diode en tension continue. Il n'est plus beaucoup utilisé car la vitesse de dépôt est faible, les tensions utilisées sont importantes (entre 3 et 5 kV) et seuls les matériaux conducteurs peuvent être déposés. En effet, au cours de la pulvérisation de matériaux isolants, les charges positives s'accumulent sur la cathode et la tension effective chute rapidement entre les 2 électrodes, provoquant l'arrêt de la pulvérisation.

Ainsi, le procédé de pulvérisation radiofréquence est apparu. Ce procédé est utilisé pour pallier aux problèmes de polarisation des cibles isolantes au champ électrique. Pour dépolariser la cible on applique une tension radiofréquence (13 à 27 MHz) [6,10].
Afin d'augmenter les vitesses de dépôts, la plupart des bâtis de pulvérisation sont équipés d'une cathode dite magnétron. Il s'agit d'un aimant permanent placé dans la cathode qui permet d'appliquer un champ magnétique parallèle à la surface de la cathode, et donc de la cible. Le système magnétron permet de confiner un plasma très dense près de la cible, ce qui a pour effet d'augmenter le taux de pulvérisation. Les tensions utilisées sont également plus faibles.
Il existe aussi un autre procédé de pulvérisation dit triode, mise au point pour la première fois par Ivanov et al [7]. Des électrons auxiliaires peuvent être produits par thermo-émission par une troisième électrode. Ces électrons permettent d'entretenir le plasma à une pression de gaz rare plus faible, aux alentours de 10^{-4} mbar [11].

II.2.4. Epitaxie par jet moléculaire (MBE)

La technique MBE (Molecular Beam Epitaxy) est le procédé le plus fiable pour le dépôt des couches minces, parmi les autres méthodes physiques [5]. Le principe de cette technique consiste a évaporer le matériau que l'on veut déposer en le chauffant par effet Joule (fil résistif), par rayonnement (cellule Knudsen) ou par bombardement électronique (canon à électrons). La croissance des couches minces cristallines se fait dans une enceinte avec un environnement ultravide (UHV) aux alentours de 10^{-11} Torr [7,12], ce qui implique que le flux d'atomes évaporés est directionnel : les atomes se déplacent en ligne droite sans aucun choc avant de se déposer sur le substrat. C'est pour cette raison qu'on parle de jet moléculaire ou atomique. Cette technique permet de contrôler in-situ, et avec une grande précision,

l'épaisseur, la composition et la morphologie de la couche. La technologie par croissance épitaxiale offre de grands avantages pour la fabrication des matériaux destinés aux applications de la micro et optoélectronique [13], et est couramment utilisée pour la synthèse de couches minces magnétiques.

II.2.5. Ablation laser (PLD)

L'ablation laser (Pulsed Laser Deposition, PLD) est une technique de dépôt, qui consiste à focaliser un faisceau laser intense sur la surface d'une cible, placée dans une enceinte sous ultra vide, afin d'entraîner l'éjection de matière sous forme de plasma. Cette matière se dépose ensuite sur un substrat approprié situé en vis-à-vis de la cible pour former un revêtement [3,14,15]. Les avantages de la PLD sont multiples. C'est un procédé de laboratoire qui permet le dépôt d'une multitude de composés de haute pureté allant des supraconducteurs à haute température aux matériaux magnétiques durs [16]. La pureté des dépôts ne dépend, dans ce cas, que de la pureté de la cible utilisée. Le principal avantage de cette technique est le dépôt à température ambiante, permettant ainsi le revêtement sur tout type de substrats allant des semi-conducteurs aux matériaux polymères [16].

II.2.6. Electrodéposition

L'électrodéposition est un processus d'oxydo-réduction, permettant de déposer un métal sur une surface à partir d'une solution contenant les ions du métal, par le passage d'un courant électrique. L'électrode sur laquelle se produit une réduction, et donc un dépôt métallique, est appelée électrode de travail (cathode). Le transfert électrique est assuré par une oxydation sur la contre électrode (anode). Une électrode de référence peut être ajoutée au montage dans le but de contrôler le potentiel appliqué entre l'électrode de référence et l'électrode de travail.

Cette méthode de croissance de métaux par électrodépôt, découverte par Faraday en 1833, est une technique actuellement utilisée dans de nombreux procédés de revêtement de surface. Ses applications s'étendent de la déposition d'une couche de protection contre la corrosion sur de grandes surfaces, à la déposition de couches minces pour l'industrie de la microélectronique.

Cette technique est très peut couteuse, ne necessite pas un vide poussé, et la croissance se fait à des températures proches de la température ambiante. Les paramètres influençant le dépôt sont nombreux et permettent des dépôts ayant diverses propriétés et diverses microstructures.

II.2.7. Dépôt chimique en phase vapeur (CVD)

Contrairement à la PVD, le procédé de dépôt chimique en phase vapeur (Chemical Vapor

Deposition, CVD) n'utilise pas une source de vapeur solide, mais un précurseur gazeux. La première utilisation industrielle (dépôts de tungstène pour la réalisation de lampe à incandescence) date de 1893 [17]. Le métal est déposé sur un substrat par l'intermédiaire d'une réaction chimique qui s'effectue en phase gazeuse. Cette méthode d'élaboration nécessite de travailler à de fortes températures comprises entre 600 et 1400°C. L'épaisseur des dépôts peut aller du micromètre à plus d'un centimètre avec des vitesses de dépôt pouvant varier de quelques micromètres à plusieurs dizaines de micromètres par heure (typiquement, 6 μm/h) [18]. Les matériaux déposés sont denses, proches de la densité théorique du diamant, ils sont très adhérents sur les substrats, et peuvent recouvrir des pièces de formes complexes avec une bonne homogénéité en épaisseur. La structure granulaire et l'orientation cristallographique de croissance peuvent être contrôlées. Il existe plusieurs types de CVD, comme la CVD assistée par laser, la CVD thermique et la CVD assistée par plasma (PCVD) [6].

II.2.8. La méthode Sol-Gel

Le principe de base du procédé sol-gel (correspondant à l'abréviation de *solution-gélification*) est le suivant : une solution à base de précurseurs en phase liquide, se transforme en un solide par un ensemble de réactions chimiques de type polymérisation à la température ambiante. La solution de départ est constituée en général par un précurseur, un solvant (en général un alcool), parfois un catalyseur (acide ou basique) et de l'eau. Chaque composé est dosé de façon très précise, car les propriétés du gel en dépendent. La nature du matériau souhaité impose le précurseur. Le choix du solvant et du catalyseur est alors dicté par les propriétés chimiques du précurseur. Ce dernier est le composé central de la solution.

La méthode sol-gel permet l'élaboration d'une grande variété d'oxydes sous différentes configurations (films minces, fibres, poudres). Cette grande diversité, tant de matériaux que de mise en forme, a rendu ce procédé très attractif dans des domaines technologiques, comme l'optique, l'électronique et les biomatériaux. Elle présente, en outre, l'avantage d'utiliser une chimie douce et de pouvoir conduire à des matériaux très purs et stœchiométriques.

Le dépôt des couches minces par la méthode sol-gel peut être réalisé par les méthodes de dip-coating (trempage-retrait), spin-coating (enduction-centrifuge) ou de dépôt micro-gouttes [19].

II.2.9. Dépôt par spray pyrolyse

Le dépôt de couches minces par la technique spray pyrolyse, se traduit par la pulvérisation d'une solution d'un sel de métal sur un substrat chauffé, où il se produit une réaction

chimique qui permet d'obtenir un film mince après évaporation des produits volatils de la réaction. La température du substrat permet l'activation de la réaction chimique en surface. L'avantage de cette technique est sa simplicité : elle ne nécessite pas de groupes de pompage comme la quasi totalité des méthodes des dépôts de couches minces. Même des dépôts multicouches peuvent être facilement préparés en utilisant cette technique. Le spray pyrolyse a été employé depuis plusieurs décennies dans l'industrie du verre [20] et dans la production de pile solaire [21].

II.3. Appareillage utilisé

II.3.1. Description de l'évaporateur

Dans ce travail nous avons élaboré, sous vide, des couches minces de l'alliage CoPd par la méthode d'évaporation par effet Joule. L'évaporateur utilisé est constitué de trois parties : la chambre de travail, le groupe de pompage et le système d'alimentation.

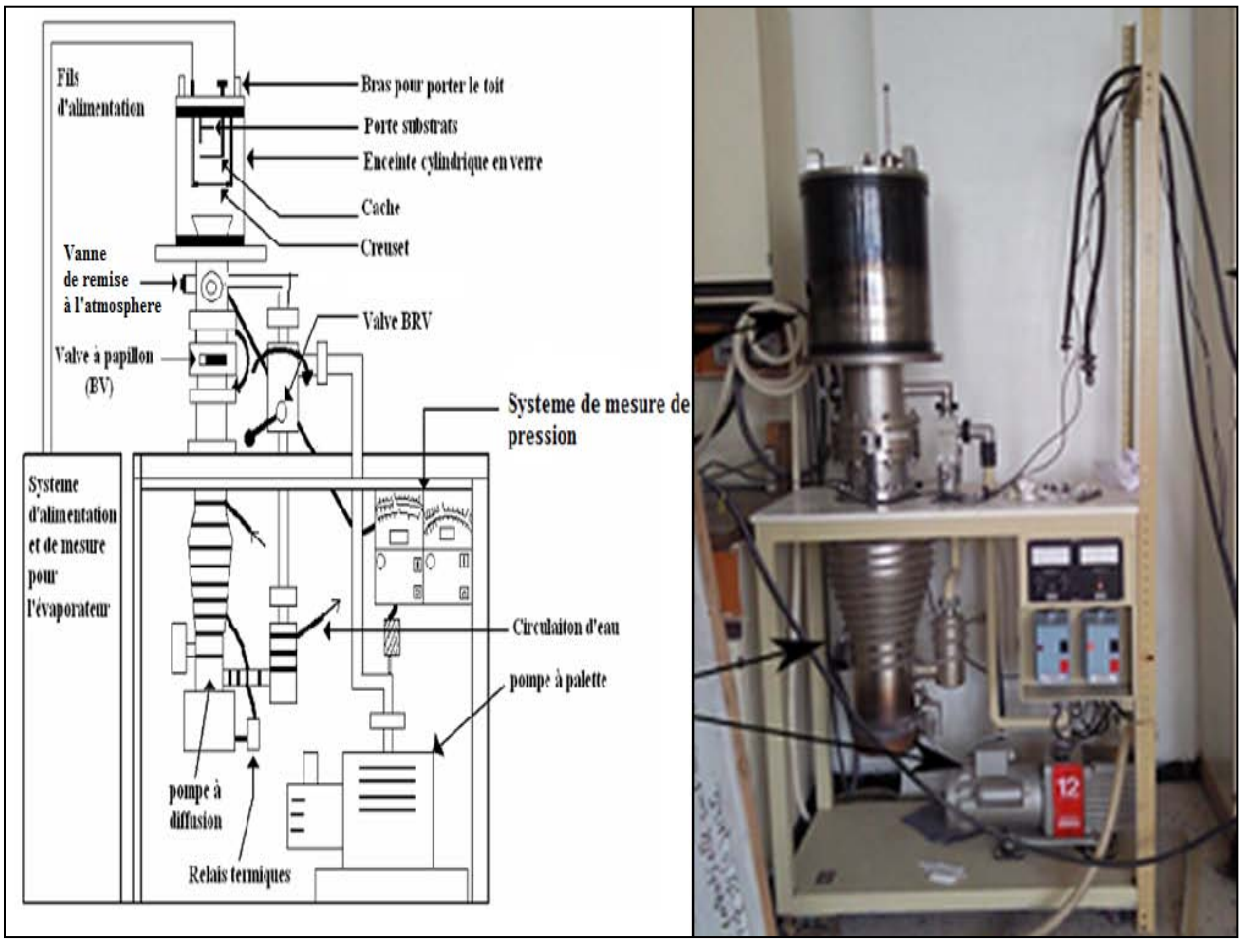


Figure II.3 : *Bâti d'évaporation.*

La chambre de travail de notre évaporateur est un cylindre ou cloche démontable, en verre, et qui repose sur une platine munie d'un joint de caoutchouc circulaire et graissé (par de la graisse à vide). Dans cette chambre on trouve le creuset**,** l**'**élément qui porte le matériau à évaporer. Bien entendu, on doit veiller à ce que le matériau du creuset ne doit pas avoir une température de fusion plus basse que celle du matériau à évaporer ; il doit aussi avoir une bonne conductivité électrique. Les creusets les plus courants sont à base de tungstène (W), de molybdène (Mo), d'aluminium (Al), d'alumine (Al_2O_3) **[**22**]**. Les matériaux à recouvrir (silicium et GaAs) sont placés sur un plateau métallique, appelé le porte-substrat**.** Une autre tôle métallique placée au-dessous du porte-substrat, nommé cache**,** est fixée au bras mobile qui permet sa manipulation de l'extérieur. Le cache est utilisé pour masquer le substrat au cours du dégazage (figure II.4).

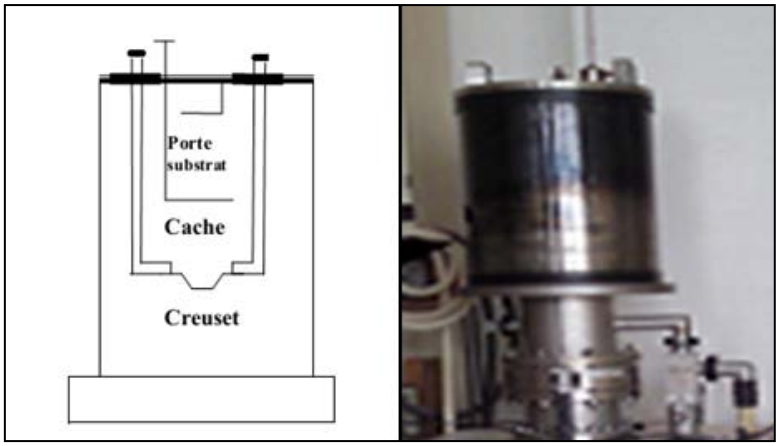


Figure II.4 : *Chambre de travail.*

L'évaporation du matériau nécessite un vide poussé. Ce vide est assuré par un système de pompage qui comporte deux pompes, montées en série, pour pomper l'air de la cloche vers l'extérieur. L'une assure un vide primaire entre 10^{-2} et 10^{-3} mbar, et l'autre un vide secondaire entre 10^{-3}et 10^{-7}mbar. Dans notre évaporateur, la pompe primaire est une pompe à palettes. Le vide secondaire est assuré par une pompe à diffusion d'huile, où une huile est chauffée en bas de la pompe ce qui entraîne son évaporation. Cette huile se condense sur les parois refroidies par l'eau, les molécules de gaz piégées et portées par l'huile sont pompées vers l'extérieur par la pompe primaire. Les vides primaire et secondaire sont respectivement contrôlés par une jauge Pirani et une jauge Penning.

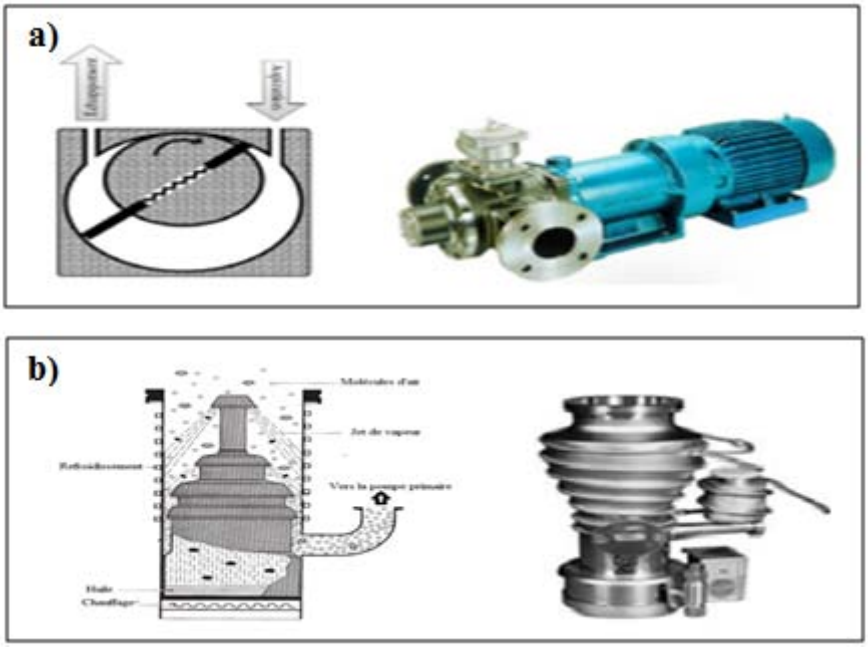


Figure II.5 : *Principe de la pompe a palette(a) et pompe a diffusion d'huile(b).*

Le système d'alimentation dans notre évaporateur assure le chauffage du creuset par effet Joule, les connexions électriques se faisant en raccordant leurs extrémités à des serre-files massifs en cuivre.

II.4. Techniques de caractérisations

Il existe de nombreuses techniques permettant de faire une caractérisation structurale et magnétique de couches minces. Parmi ces méthodes, nous allons faire une brève description de celles que nous avons utilisées.

II.4.1. Profilomètre mécanique

La profilometrie est une méthode de mesure d'épaisseur, simple et rapide à mettre en oeuvre. Le principe de fonctionnement de l'appareil est le suivant : un stylet à pointe diamantée très sensible balaie la surface de l'échantillon; les irrégularités de la surface du dépôt analysé se traduisent immédiatement par une variation dans la position verticale de ce stylet, qui est alors transformée en tension électrique grâce à un transformateur différentiel; un convertisseur analogique-numérique, permettant de stocker les résultats dans la mémoire de l'appareil, assure alors le lien avec le logiciel. On obtient alors sur l'écran de contrôle la variation

verticale de la position du stylet en fonction de la distance qu'il a parcourue sur l'échantillon [23].

En pratique, les mesures des épaisseurs des dépôts ont été effectuées sur le principe de la « différence de marche ». Les substrats sont fixés sur le porte-substrat au moyen de vis munis de rondelles. Les rondelles recouvrant les substrats jouent le rôle de masque, il est alors possible après dépôt de mesurer l'épaisseur par différence d'altitude entre le substrat vierge et le dépôt.

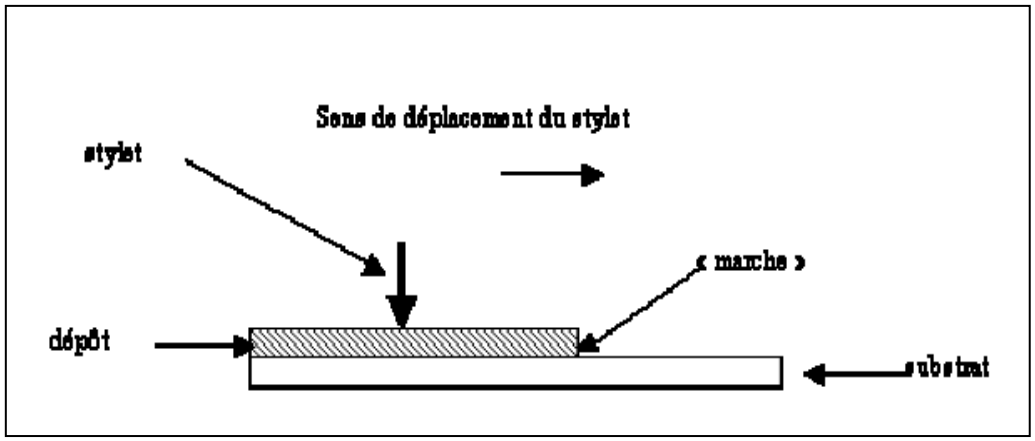


Figure II.6 : *Principe de mesure d'une épaisseur.*

II.4.2. Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)

Le principe de la mesure consiste à faire vibrer verticalement, à une fréquence f et avec une amplitude constante, un échantillon magnétique placé au centre d'un bobinage de mesure.

Le flux induit dans les bobines de détection par un échantillon de moment m, soumis à une vibration mécanique (mouvement sinusoïdal) s'écrit :

$$\varphi_Z = \frac{B}{I} m \qquad (II.1)$$

B étant le champ magnétique crée par un courant I au centre de la bobine.

La variation de flux magnétique induit une tension dans les bobines :

$$V = -\frac{d\varphi_Z}{dt} = -\frac{dB(I)}{dz}\frac{dz}{dt} m \qquad (II.2)$$

La mesure consiste à détecter cette différence de potentiel induite qui est directement proportionnelle au moment magnétique du matériau.

Cette technique est assez facile à mettre en oeuvre et permet une caractérisation avancée des propriétés magnétiques d'un matériau. En effet, en plus de la mesure de cycles d'hystérésis, il est possible d'effectuer des mesures angulaires donnant ainsi des informations sur

l'anisotropie de l'échantillon. Un autre atout de cette technique concerne l'aspect quantitatif : on a accès à la valeur du moment magnétique (moyennant une connaissance précise du nombre d'atomes magnétiques présents dans le matériau).

La sensibilité des VSM est souvent comprise entre 10^{-8} et 10^{-10} Am². Le facteur limitant la sensibilité est principalement le bruit transmis du système vibrant aux bobines de mesure [24, 25].

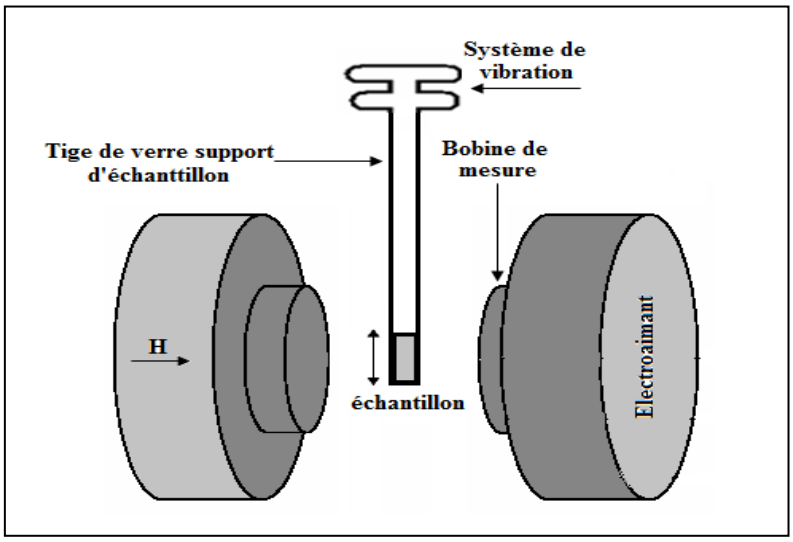


Figure II.7 : *Schéma de principe d'un magnétomètre à échantillon vibrant (VSM).*

Différentes configurations de mesure sont possibles dans un VSM (Figure II.8)

- Mesure avec un champ magnétique parallèle au substrat, utilisé dans le cas où l'axe de facile aimantation se situe dans le plan. Dans cette configuration, il est possible de mettre en évidence une anisotropie magnétique dans le plan, si elle existe, par l'application d'un champ magnétique externe dans différentes directions (Figure II.8 (a)).
- Mesure avec un champ magnétique perpendiculaire au substrat, utilisé lorsque l'aimantation est perpendiculaire au substrat ou dans un plan perpendiculaire au substrat (Figure II.8 (b)) [26].

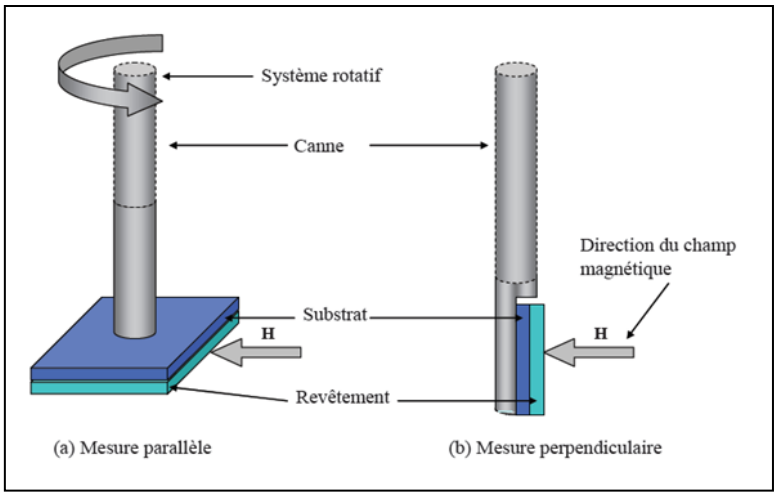


Figure II.8 : *Configurations de mesures magnétiques dans le VSM.*

II.4.3. Microscope à Force Atomique (AFM)

La microscopie à force atomique (AFM) est fondée sur la mesure des forces d'interaction entre une pointe idéalement atomique, fixée à l'extrémité d'un levier (cantilever) et les atomes de surface de l'échantillon (forces de répulsion ionique, forces de van der Waals, forces électrostatiques, forces de friction, forces magnétiques...). Les déplacements se font grâce à une céramique piézoélectrique, et la déflexion du cantilever est suivie à l'aide d'un faisceau laser réfléchi par le cantilever et détecté par une photodiode.

Il existe plusieurs modes :

• le mode contact : en mode contact, les principales forces entre la pointe et la surface sont des forces répulsives, à très courte portée et c'est dans ce mode qu'est obtenue la résolution atomique. Deux modes d'imagerie sont possibles : le mode hauteur (la force soit la déflexion du cantilever est maintenue constante par une boucle d'asservissement agissant sur la hauteur du matériau piézoélectrique, on enregistre les déplacements en z) et le mode force (la hauteur est constante et l'on enregistre la déflexion du cantilever). Le mode contact est le mode permettant d'obtenir la meilleure résolution topographique, mais il peut endommager la pointe et l'échantillon.

• le mode tapping : le cantilever oscille à la surface de l'échantillon à une fréquence proche de sa fréquence de résonance. L'image hauteur représente la topographie de la surface (l'amplitude des oscillations est maintenue constante en agissant sur la hauteur du matériau piézoélectrique), et l'image amplitude représente la variation de la racine carrée de l'amplitude.

Il existe différentes variantes de la microscopie à force atomique, comme : la microscopie à force magnétique, la microscopie à force électrostatique, la microscopie « résiscope » ou AFM à pointe conductrice [24].

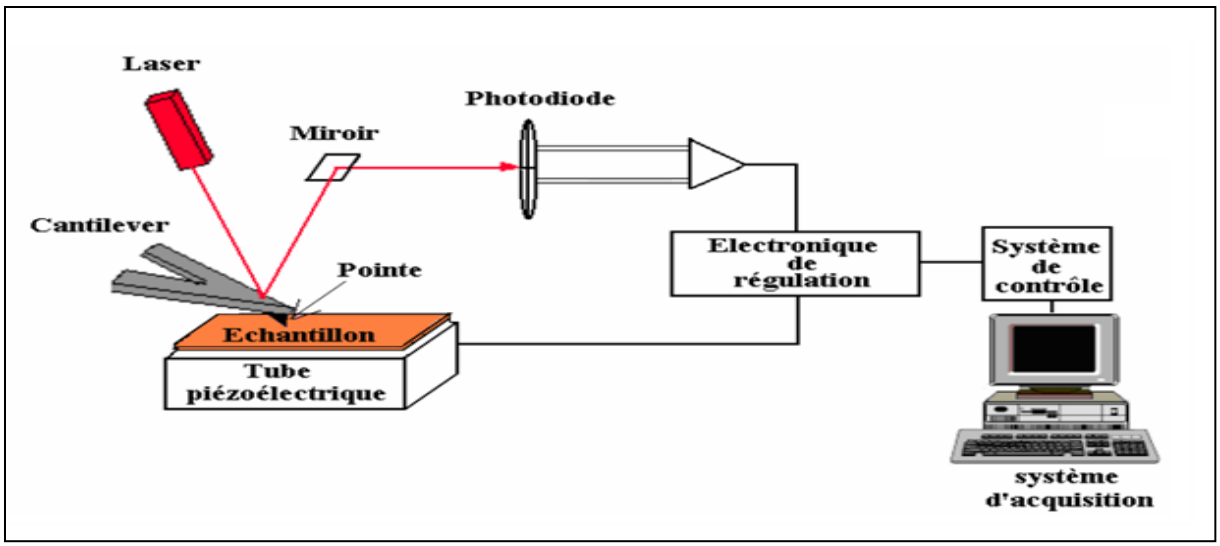


Figure II.9 : *Représentation schématique d'un microscope à force atomique(AFM).*

II.4.4. Diffraction des rayons X

La diffraction des rayons X est une méthode usuelle de caractérisation des matériaux. Elle renseigne sur la structure cristalline et la nature des composés analysés. Elle apporte également des informations sur chacune des phases qui composent un matériau polyphasé, ainsi que leurs proportions respectives.

Le principe de cette méthode d'analyse est basé sur la capacité des atomes d'un matériau cristallin à diffuser un faisceau incident de rayons X. Celui-ci est produit par une source qui émet un rayonnement X de longueur d'onde connue, et de l'ordre de grandeur des distances interatomiques (Å). Les interférences sont alors alternativement constructives ou destructives, donnant naissance à un diffractogramme. Celui-ci représente l'intensité du faisceau diffracté en fonction de deux fois l'angle d'incidence.

Selon les directions de l'espace, le flux de photons est plus ou moins important, et ces variations sont à l'origine des différences d'intensités des pics.

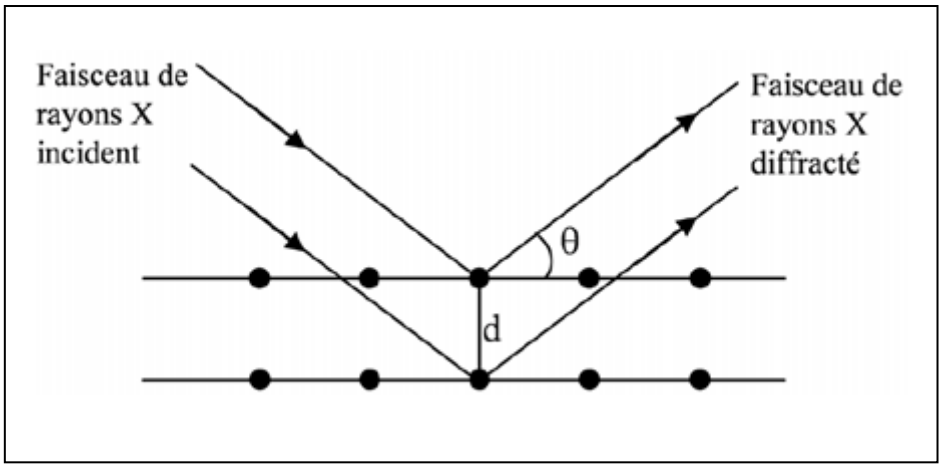


Figure II.10 : *Diffraction des rayons X par un réseau cristallin.*

Les matériaux cristallins sont composés d'atomes arrangés périodiquement dans toutes les directions de l'espace. Ils forment ainsi un réseau caractérisé par des familles de plans cristallographiques, identifiés par les indices de Miller (h, k, l). Les distances interplanaires (d) sont équivalentes pour chaque plan de la même famille. La Figure II.10 schématise le principe physique à la base de la diffraction des rayons X par un réseau cristallin. Le rayon incident monochromatique de longueur d'onde λ frappe l'échantillon selon un angle θ. Les rayons diffractés formeront une interférence constructive si la différence de chemin optique entre deux plans est un multiple de λ. Pour un certain λ, cette condition est liée à d et à θ selon la loi de Bragg [27]: $n\lambda = 2d \sin\theta$ ***(II.3)***

n représente l'ordre de la diffraction,

Le phénomène de diffraction a lieu uniquement lorsque la loi de Bragg est satisfaite, et l'angle de diffraction est alors égal à θ.

Dans le cas des films minces, deux types d'analyses sont généralement appliqués.

Dans un premier temps, on peut opérer à incidence rasante, où θ est fixe pendant toute la durée de l'analyse, et généralement de l'ordre de 2°. Cela permet de limiter la profondeur de pénétration du faisceau incident et de minimiser la contribution du substrat dans la diffraction.

Dans un second temps, on peut également opérer en configuration θ-2θ, où l'angle d'incidence varie proportionnellement avec l'angle du détecteur. Cela permet de sonder la totalité des familles de plans qui composent l'échantillon [28].

II.4.4 .1. Détermination de la taille des cristallites

Dans l'analyse de diffraction, la largeur des pics apporte des informations sur la structure du matériau étudié. On peut ainsi déterminer la taille des cristallites et les microdistorsions

présentes dans le matériau. En général, la taille des cristallites est déterminée en mesurant la largeur à mi-hauteur du pic de Bragg et en utilisant la formule de Scherrer [29], en première approximation donnée ci dessous. Cette formule montre que l'élargissement (caractérisé par la largeur intégrale) est inversement proportionnel à la dimension apparente des domaines de diffraction cohérente (L) :

$$\boldsymbol{L = \frac{K\lambda}{\Delta(2\theta)\cos\theta}} \qquad \textbf{\textit{(II.4)}}$$

L: la taille des grains,

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

λ: la longueur d'onde,

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

θ: position du pic.

La distorsion (la microcontrainte) peut aussi être évaluée selon la relation de Stokes-Wilson [30]:

$$\boldsymbol{\varepsilon = \frac{\Delta d}{d} = \frac{\beta}{4\tan\theta}} \qquad \textbf{\textit{(II.5)}}$$

ε : distorsion,

β : Largeur integrale.

II.5.5. Spectrométrie de fluorescence X

La spectrométrie de fluorescence X est une technique d'analyse chimique permettant de déterminer la composition élémentaire d'un échantillon. Le principe consiste à irradier l'échantillon par un faisceau de rayons X. Sous l'effet de ces rayons X, les atomes constituant l'échantillon passent de leur état fondamental à un état excité (les photons X émis ont la capacité d'arracher des électrons situés sur les couches proches du noyau des atomes). Les atomes ionisés tendent alors à revenir à l'état d'équilibre (un électron d'une couche plus externe va venir combler la lacune laissée par l'électron qui a été éjecté) en libérant de l'énergie sous forme de photons X caractéristiques des atomes qui constituent l'échantillon. L'analyse de ce rayonnement X secondaire permet à la fois de connaitre la nature des éléments chimiques présents dans un échantillon ainsi que leur concentration massique [31].

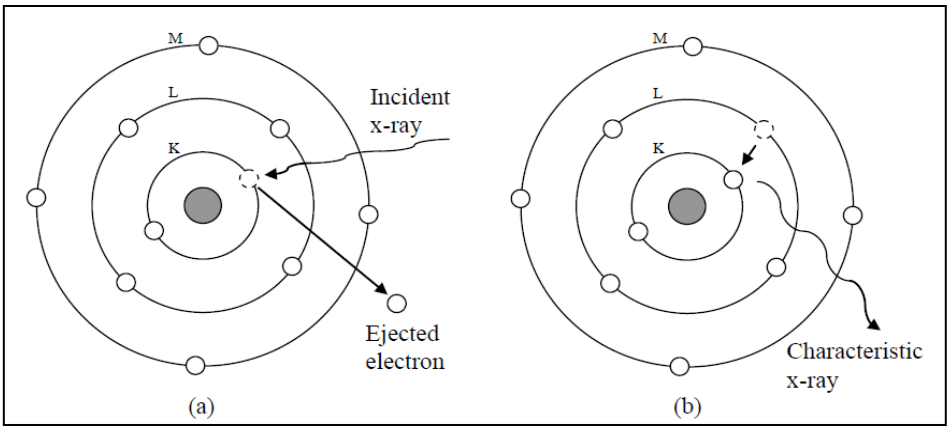


Figure II.11 : *Excitation et désexcitation d'un atome : (a) Excitation au niveau K, (b) Désexcitation radiative.*

Pour l'analyse du rayonnement de fluorescence X émis par l'échantillon, il existe deux grands types d'appareillage : les spectromètres à dispersion en longueur d'onde (WD-XRF, *Wavelength Dispersive X-ray Fluorescence Spectrometry*) et les spectromètres à dispersion en énergie (ED-XRF, *Energy Dispersive X-ray Fluorescence Spectrometry).*

II.4.5.1. Les spectromètres à dispersion en énergie (EDS)

L'analyse par fluorescence X à dispersion d'énergie (ED-XRF), consiste à utiliser directement un détecteur semi-conducteur (classiquement des détecteurs Si(Li) Silicium dopé au lithium) ou un détecteur au silicium à diffusion (Silicon Drift detector, SDD) connecté à un amplificateur. Ce type de détecteur est basé sur la création des paires électrons-trous et convertit les photons X en charge électrique, et l'amplificateur transforme le signal en impulsion électrique. L'amplitude du signal recueilli après amplification est donc proportionnelle à l'énergie du photon incident. Les éléments et leurs concentrations sont identifiés en comptant les signaux à différents intervalles d'énergie. Un analyseur multi-canal permet l'arrangement du nombre de photons détectés en fonction de leurs énergies, et la construction de l'ensemble du spectre de fluorescence X de l'échantillon [32].

II.4.5.2. Les spectromètres à dispersion en longueur d'onde (WDS)

Dans cette seconde catégorie de spectromètres, connus pour leur très bonne résolution spectrale, le rayonnement de fluorescence X émis par les atomes constituant l'échantillon est collimaté par un système de fontes appelées fontes de Soller ou collimateur en un faisceau de rayons parallèles (pour concentrer le rayonnement) vers un crystal analyseur. Celui-ci

diffracte ces rayonnements selon des angles lié à la longueur d'onde de chaque raie par la loi de Bragg : $2d \sin \theta = n \lambda$ ***(II.6)***

d : distance inter-réticulaire du cristal analyseur

λ : longueur d'onde du rayonnement X incident

θ : angle d'incidence du rayonnement X

n : ordre de réflexion (entier positif)

Le principe de cette méthode consiste ainsi à orienter le cristal analyseur dans une direction θ et le détecteur dans la direction 2θ. Pour chaque orientation (θ, 2θ) on ne peut détecter qu'une seule longueur d'onde λ. Par conséquent, pour analyser un échantillon renfermant plusieurs éléments chimiques, on est amené à faire un balayage pas à pas pour observer toutes les raies caractéristiques [33].

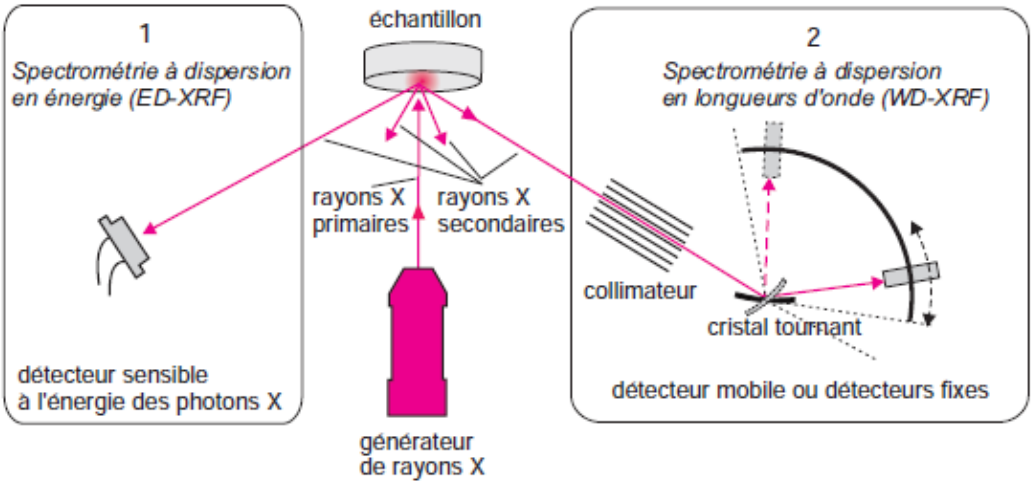


Figure II.12 : *Principe de la spectroscopie de fluorescence X.*

L'échantillon, soumis à l'excitation d'une source primaire de rayons X émet un rayonnement de fluorescence qui peut conduire à deux types de spectres réunis ici sur la figure : 1) *Spectre en énergie (ED−XRF*) obtenu directement au moyen d'une diode dont le signal diffère selon l'énergie de chaque photon incident ; 2) *Spectre en longueur d'onde* (*WD−XRF*) obtenu par rotation d'un cristal faisant office de réseau montage goniométrique comportant un (ou plusieurs) détecteur mobile.

II.5. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons donné, dans un premier temps, un aperçu sur les méthodes d'élaboration physiques et chimiques des couches minces, et nous avons décrit l'appareillage de l'évaporation sous vide utilisé pour l'élaboration de nos échantillons. Par la suite, nous avons présenté les techniques de caractérisation utilisées pour déterminer les propriétés structurales, morphologiques et magnétiques de nos couches minces.

Références bibliographiques

[1] Q. B. Ma, Z. Z. Ye, H. P. He, L.P. Zhu, J.Y. Huang, Y. Z. Zhang and B. H. Zhao, Scripta Materialia **58** (2008) 21-24.

[2] C.E. Benouis, A. Sanchez Juarez, M. S. Aida, S. Hamzaoui and M. Benhaliliba, Science et Technologie A-N°23, juin (2005) 11-16.

[3] H.H. Gatzen, *Micro and Nano Fabrication,* Springer, 2015.

[4] A. Richardt, I. Richardt, *Les évaporations sous vide*, Edition INFINE Paris, 2000.

[5] Kasturi L. CHOPRA, *Thin Film Phenomena*, M.G.H.Company, New York, 1975**.**

[6] Milton Ohring, *the Materials Science of Thin Films*, Academic Press, 1992.

[7] A. Marty et S. Andrieu, *Croissance et structure des couches minces*, Journal de physique IV Colloque C7, supplément au Journal de Physique III, Volume 6, novembre 1996.

[8] J. L Vossen et W. Kern, *Thin Film Processes II*, Academic Press.

[9] B. Dieny, *Couches minces et multicouches magnétiques*. Presses Universitaires de Grenoble, 1999. 41, 50, 52.

[10] K. Wasa, M. Kitabatake, H. Adachi, *Thin film materials technology sputtering of compound materials*, William Andrew, Inc, 2004.

[11] G.O. Hernandez, *Thèse de Doctorat de l'Université de Toulouse,* 2013.

[12] L. B. Freund, S. Suresh, Thin *film materials stress, defect formation surface evolution,* Defense University Research Initiative in Nanotechnology, 2003.

[13] F. Qian, V. Craciun, R.K. Singh, S.D. Dutta and P.P. Pronko, Journal of Applied Physics **86** (1999) 2280-2281.

[14] C.B. Collins, F. Davanloo, D.R. Jander, T.J. Lee, H. Park and J.H. You, Journal of Applied Physics **69** (1991) 7862-7870.

[15] Y. Lifshitz, Diamond and Related Materials **5** (1996) 388-400.

[16] D.B. Chrisey and G.K. Hubler, *Pulsed laser deposition of thin films*. John Wiley & Sons, Inc., 1994. 613 pages. ISBN 0-471-59218-8.

[17] *De Lodyguine Illuminant for incandescent lamps*, US patent 57002 (1893).

[18] A. Richardt et A.-M. Durand. *Les interactions ions énergétiques-solides*, Paris, 1997, 383 pages. ISBN 2-84046-047-5.

[19] Plinio Innocenzi, *the Sol to Gel Transition*, Springer, 2016.

[20] J.E.Hill and R.R. Chambrlin, US patent 3, 148, 84(1964).

[21] H. J. Mathieu, E. Bergmann, *Analyse et technologie des surfaces*, Lausanne, Suisse, 2003.

[22] G. K. White, *Experimental Techniques in low temperature physics*, Oxford, 1979.

[23] Matthieu Valetas, *Thèse de Doctorat de l'Université de* Limoges, 2003.

[24] Thomas FIX, *Thèse de Doctorat de l'Université Louis Pasteur, Strasbourg I*, 2006.

[25] Odile Bezencenet, *Thèse de Doctorat de l'Université Paris 6, Pierre et Marie Curie* ,2008.

[26] Rafik Nouar**,** *Thèse de Doctorat de l'Université de Technologie de Belfort-Montbéliard*, 2009.

[27] D.-A. Skoof, F.-J. Holler et T.-A. Nieman, *Principles of Instrumental Analyses*, 5 ed, T.L. Inc. (1998) 272-296.

[28] Morgan Allemand, *Mémoire de Maître ès sciences (M. Sc) de l'Université du Québec,* 2011.

[29] P. Beneben, F. Durut, *Nickelage électrolytique : mise en oeuvre*, Techniques de l'ingénieur, traité Matériaux métalliques, M 1611.

[30] R.E. Smallman, R. J. Bishop, *Modern Physical Metallurgy and Materials Engineering*, Elsevier Science Ltd, 1999.

[31] R. Jenkins, *Fluorescence spectrometry 2nd ed*., New York, Wiley-Interscience, (1999).

[32] C. Whiston, X-Ray Methods, *Analytical Chemistry by Open Learning*, Ed. F Elisabeth Prichard, Publisher: John Wiley & Sons, 426 p., (1987).

[33] Haïfa Ben Abdelouahed, *Thèse de Doctorat de l'Université de Tunis El Manar*.

Chapitre III

Propriétés structurales

Chapitre III : Propriétés structurales

III.1. Introduction

III.2. Conditions d'élaboration des échantillons

III.3. Mesure des épaisseurs et détermination des concentrations

III.4. La structure cristallographique

III.5. Analyse des spectres expérimentaux

III.5.1. Spectres DRX des échantillons CoPd /GaAs

III.5.2. Spectres DRX des échantillons CoPd /Si

III.6. Paramètres de maille

III.7. Taille des grains et microdéformations

III.8. Morphologie

III.9. Conclusion

Références bibliographiques

III.1. Introduction

Les propriétés des couches minces dépendent très fortement de leur structure cristalline (paramètre de maille, symétrie du réseau cristallin, planéité des couches…), c'est pourquoi une caractérisation structurale préalable est nécessaire à toute étude de leurs propriétés magnétiques.

Dans le chapitre précédent, nous avons décrit le dispositif de dépôt, ainsi que les différentes techniques de caractérisations utilisées dans le cadre de cette étude. Ce chapitre est consacré à l'élaboration et à la caractérisation structurale et morphologique de nos couches minces de l'alliage CoPd d'épaisseur 150 nm déposées sur des substrats de GaAs (100) et de Si(100). L'influence de la composition sur la taille des grains, le paramètre de maille, la rugosité et la contrainte est discutée.

III.2. Conditions d'élaboration des échantillons

Nos échantillons ont été réalisés par évaporation sous vide, par effet Joule, au Laboratoire d'Etudes des Surfaces et Interfaces des Matériaux Solides (LESIMS), du Département de Physique de la Faculté des Sciences de l'Université Ferhat ABBAS Sétif 1.

Afin d'éviter la contamination de nos couches minces, l'enceinte et tout ce quelle contient (le porte substrat, le cache, les tiges de connexion…) ont été nettoyés à l'eau, frottés par du papier verre puis par nettoyage chimique à l'éthanol. Les substrats de GaAs et de Si sont fournit nettoyés et prêts à l'emploi.

Le matériau à évaporer est un mélange d'une poudre de Cobalt et de Palladium, placé dans un creuset de tungstène enrobé d'alumine, à une distance de 8 cm environ du porte substrat, où sont fixés les substrats de GaAs et de Si.

Une fois le système mis en place et le groupe de pompage mis en service, on réalise un vide de l'ordre de 10^{-7} mbar avant le dépôt. Ensuite on fait augmenter le courant jusqu'a 250 A. Cette valeur de courant assure la température d'évaporation de Co et de Pd. La pression durant le dépôt est meilleure que $2x10^{-6}$ mbar.

III.3. Mesure des épaisseurs et détermination des concentrations

Les épaisseurs de nos échantillons ont été mesurées avec un profilomètre mécanique de marque Dektak 150 au Laboratoire de génie de l'environnement(LGE), à l'Université

Abderrahmane Mira de Bejaïa. La composition chimique des échantillons à été déterminée par la technique XRF (X-ray fluorescence) à l'unité de recherche des matériaux émergents (URME) de l'Université Ferhat ABBAS Sétif1, à l'aide d'un spectromètre à dispersion de longueur d'onde ZSX IV Rigaku. Ce spectromètre fonctionne à une température de 36.50°C et une pression de 2.9 Pa et est équipé d'un tube de rayon X, avec une tension d'accélération de 50 keV et un courant de 100 mA.

L'épaisseur mesurée de nos couches minces est de 150 nm, et les valeurs des concentrations obtenues sont présentées dans le **tableau III.1**.

	S1	S2	S3	S4	S5
Pd (%at.)	8	9	20	28	31
Co (%at.)	92	91	80	72	69

Tableau III.1 : *Concentrations des films CoPd/GaAs et CoPd/Si.*

III.4. La structure cristallographique

Les analyses par la diffraction des rayons X ont été effectuées à l'Université Abderrahmane Mira de Bejaïa, à l'aide d'un diffractomètre Siemens D500. Les rayons X ont été produits à partir d'une source de radiation Cu Kα, ayant une longueur d'onde de 1.5406 Å avec une tension d'accélération de 30 kV et un courant de 40 mA. Les diffractogrammes sont enregistrés en mode réflexion θ/2θ ; le détecteur donc tourne avec un angle 2θ tandis que le goniomètre qui porte l'échantillon tourne avec un angle θ. La structure cristalline est évaluée à l'aide du logiciel Match et par comparaison aux données des fiches ASTM (American Society for Testing Materials) qui permet l'identification des phases cristallines ainsi que l'orientation des pics de diffraction.

III.5. Analyse des spectres expérimentaux

III.5.1. Spectres DRX des échantillons CoPd/GaAs

Par comparaison aux données des fiches ASTM et par utilisation du logiciel Match, les échantillons de CoPd étudiés sont monocristallins et ont une structure cubique à faces centrées (c.f.c.).

La **figure III.1** illustre les spectres de diffraction des rayons X des échantillons CoPd déposés sur les substrats de GaAs .On observe un pic de CoPd situé à 2θ=71 .35°, identifié comme provenant du plan (220) [1]. Par ailleurs, on identifie le pic du système hexagonal compact (h.c.p.) de Co(422) [2-6] aux alentours de 2θ= 72.11°. Les pics de la phase cubique à faces centrées caractéristiques de Pd ne sont pas visibles sur les spectres, leur intensité étant très petite et ils sont donc noyés dans le bruit de fond, à cause de la très petite quantité du palladium dans nos alliages. D'autres pics, non visibles sur les spectres présentés, ont été observés aux angles (2θ=59.01, 2θ=63.67 et 2θ=64.38°). Ces pics ont été identifiés comme étant des pics appartenant à la phase CoAs. Les travaux de Sharma [7,8] et Tinouche [9] confirment l'apparition de la phase CoAs. Les pics d'indices (200) et (311) correspondant aux réflexions des plans réticulaires propres aux substrats de GaAs sont également présents.

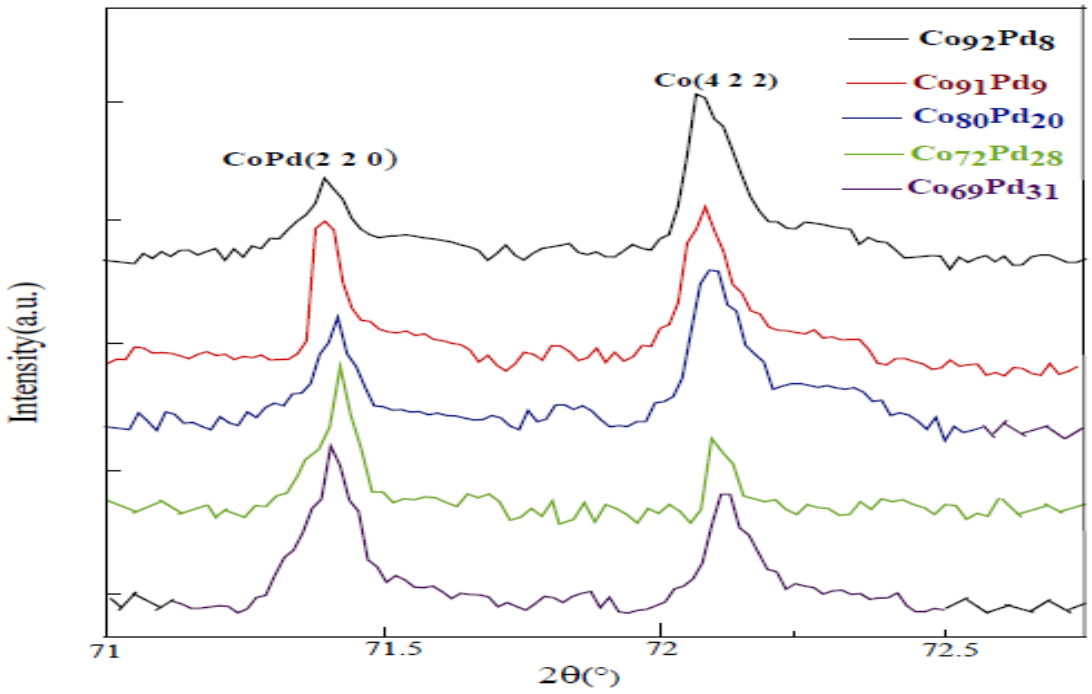


Figure III.1 : *Spectres DRX des échantillons CoPd/GaAs.*

On remarque qu'il réside une différence en intensité pour le pic de CoPd(220) correspondant à chaque échantillon. Le pic le plus intense est observé pour l'échantillon $Co_{91}Pd_9$/GaAs et le pic de moindre intensité correspond à l'échantillon $Co_{72}Pd_{28}$/GaAs. Aucune corrélation n'a pu être établie entre la variation de la composition en Pd et l'intensité du pic de CoPd (220).

III.5.2. Spectres DRX des échantillons CoPd/Si

Les échantillons de couches minces de CoPd déposé sur le substrat Si ont été caractérisés dans les mêmes conditions que ceux présentés précédemment. Les échantillons étudiés sont monocristallins et ont une structure hexagonale compacte (h.c.p.). Le cobalt a imposé sa structure cristallographique dans sa phase la plus stable.

Généralement dans la structure hexagonale compacte, on utilise quatre indices (hkil) (indices de Miller-Bravais), avec i=-(h+k).

Les spectres de diffraction des rayons X des films de CoPd/Si pour diverses compositions montrent un pic de cobalt situé à 2θ= 75.56°, identifié comme provenant du plan (41.5) de la structure h.c.p. [2]. Le pic aux alentours de 2θ=74.78°est identifié comme celui de la phase $Co_{0.9}Pd_{0.1}$ de structure h.c.p. avec les indices de Miller (11.0) [10].

D'autres pics non visibles sur les spectres présentés ont été observés aux angles (2θ=61.71, 2θ=66.65, 2θ=67.38°) correspondants aux phases d'interdiffusion Pd_9Si_2(243), Co_2Si (312) et Pd_4Si(006) respectivement, ainsi que des pics correspondant aux plans réticulaires (400) et (200) du substrat utilisé.

Sur les figures suivantes nous présentons quelques spécimens de spectres de DRX de la série CoPd/Si.

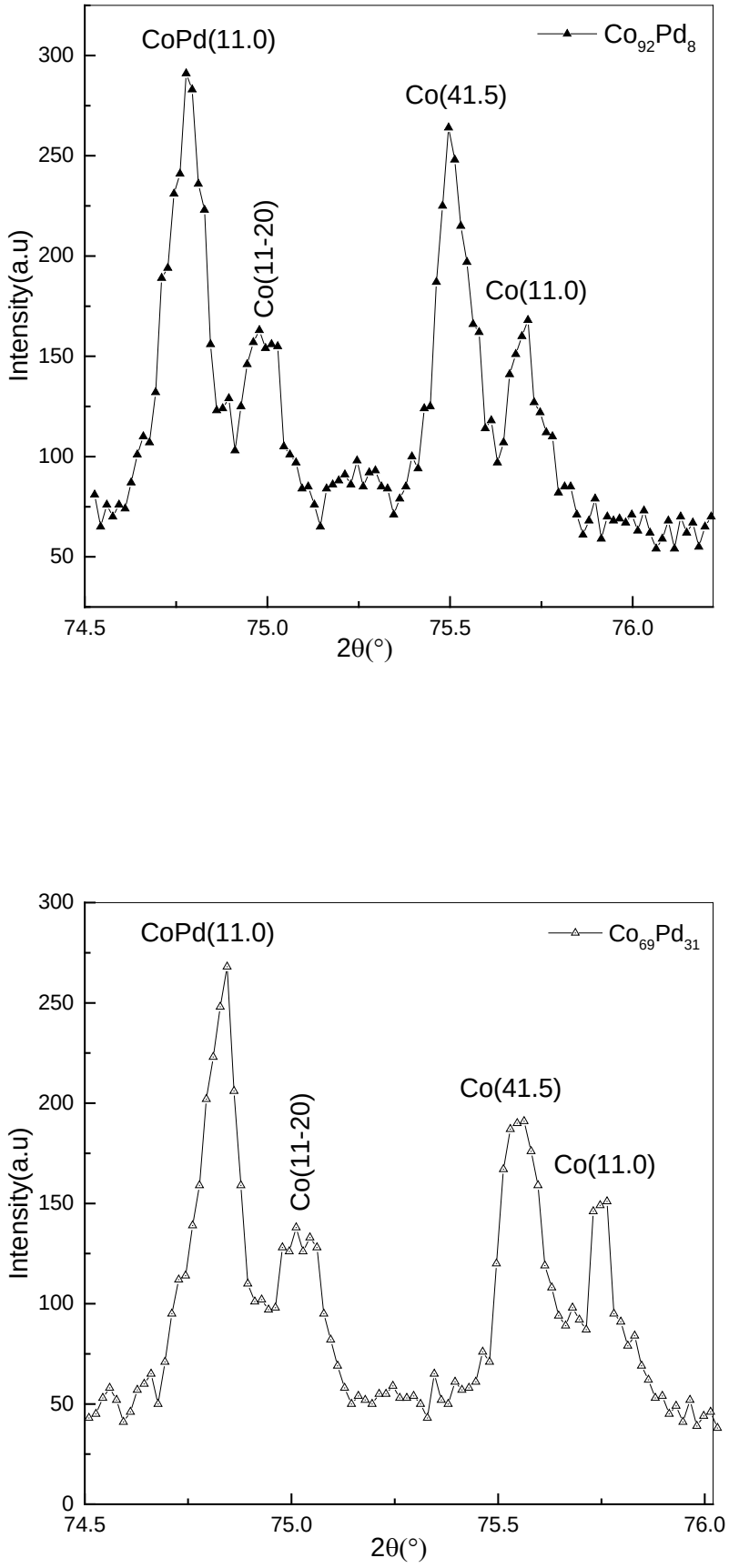


Figure III.2: *Spectres DRX des échantillons CoPd/Si.*

III.6. Paramètres de maille

Le dépouillement des spectres de diffraction X des échantillons CoPd/GaAs présentés précédemment nous permet de calculer les paramètres de maille de nos échantillons qui ont une structure cubique, à partir de la relation suivante :

$$\frac{a^2}{h^2+k^2+l^2} = \frac{\lambda^2}{4\,sin^2\theta} \qquad \textbf{(III.1)}$$

a: le paramètre de maille.

λ: longueur d'onde des rayons X et est égale à 1,5406 Å.

θ: l'angle de diffraction.

h, k, l : les indices de Miller.

Le **tableau III.2** montre les paramètres de maille des films CoPd/GaAs pour différentes compositions.

Comparé à la valeur du paramètre de maille de CoPd massif calculé à partir de la relation suivante :

$$a = d\sqrt{h^2 + k^2 + l^2} \qquad \text{(System cubique)} \quad \textbf{(III.2)}$$

Pour les réflexions (220)

$a_{bulk\ (220)} = d_{bulk(220)}\sqrt{8}$

$d_{bulk\ (220)} = 0.133$ nm [11]

$a_{bulk\ (220)} = 0.376$ nm.

Les valeurs trouvées pour nos échantillons présentent une déformation sous forme de compression.

	S1	S2	S3	S4	S5
Pd (%at.)	**8**	**9**	**20**	**28**	**31**
Co (%at.)	**92**	**91**	**80**	**72**	**69**
Paramètre de maille a (nm)	**0.371**	**0.370**	**0.370**	**0.370**	**0.375**

Tableau III.2 : *Paramètres de maille des films CoPd/GaAs.*

Les paramètres de maille des échantillons CoPd/Si, qui ont une structure h.c.p., sont calculés en utilisant la formule de Bragg :

$$2d\sin\theta = n\lambda \qquad (III.3)$$

θ : l'angle de diffraction.

d : la distance inter-réticulaire.

λ : la longueur d'onde des photons utilisés.

Pour les structures hexagonales, on utilise la forme quadratique de la formule de Bragg :

$$Q(hkl) = \frac{n^2}{[d(hkl)]^2} = \frac{4\sin^2\theta}{\lambda^2} \qquad (III.4)$$

Dans le système hexagonal : a = b ≠ c et $\alpha = \beta = \frac{\pi}{2}$, $\gamma = \frac{2\pi}{3}$

$$Q(hkl) = \frac{4}{3}\frac{h^2+k^2+hk}{a^2} + \frac{l^2}{c^2} \qquad (III.5)$$

Pour les réflexions (hk0) on ne peut déterminer que la valeur de a

$$a = \frac{\lambda\sqrt{h^2+k^2+hk}}{\sqrt{3}\sin\theta} \qquad (III.6)$$

	S1	S2	S3	S4	S5
Pd (%at.)	**8**	**9**	**20**	**28**	**31**
Co (%at.)	**92**	**91**	**80**	**72**	**69**
Paramètre de maille a (nm)	**0.254**	**0.254**	**/**	**0.254**	**0.254**

Tableau III.3 : *Paramètres de maille des films CoPd/Si.*

III.7. Taille des grains et microdéformations

Nous avons vu, au chapitre II, que nous pouvons calculer la taille des cristallites (*L*) en utilisant la formule de Scherrer [12,13]. Le stress mécanique présent dans les couches minces est estimé en utilisant l'équation de Stocks Wilson [14,15].

Les valeurs obtenues pour les échantillons CoPd/GaAs sont présentées dans le **tableau III.4**.

	S1	S2	S3	S4	S5
Pd (%at.)	**8**	**9**	**20**	**28**	**31**
Co (%at.)	**92**	**91**	**80**	**72**	**69**
L (nm)	**4.8**	**17.1**	**10.7**	**11.4**	**21.6**
ε (%)	**4.88**	**2.22**	**3.80**	**2.78**	**1.70**

Tableau III.4 : *Taille des grains selon l'orientation (220) et stress des films CoPd/GaAs.*

On observe que la taille des grains varie entre une valeur minimale (L=4.8 nm), correspondant à l'échantillon $Co_{92}Pd_8$/GaAs, et une valeur maximale (L=21.6nm) correspondant au film $Co_{69}Pd_{31}$/GaAs. Pour la déformation, la plus grande déformation (ε=4.88%) est observée pour l'échantillon $Co_{92}Pd_8$/GaAs, contrairement à la couche $Co_{69}Pd_{31}$/GaAs qui subit le minimum de stress mécanique (ε=1.70%).

Tous les échantillons élaborés sont sous stress mécanique, probablement dû au désaccord de maille (lattice mismatch) entre le film de l'alliage CoPd et le substrat de GaAs qui est égal à -33%. Même conclusion pour les couches minces de CoPd déposées sur des substrats de MgO (111) par pulvérisation dont le désaccord de maille entre le film et le substrat est égal à (-10%) [16].

Les résultats correspondants aux couches minces de CoPd déposées sur le substrat de Si ont été regroupés dans le **tableau III.5.**

	S1	S2	S3	S4	S5
Pd (%at.)	**8**	**9**	**20**	**28**	**31**
Co (%at.)	**92**	**91**	**80**	**72**	**69**
L (nm)	**99.2**	**107.7**	**/**	**81.6**	**100.6**
ε (%)	**4.11**	**0.37**	**/**	**0.38**	**0.43**

Tableau III.5 : *Taille des grains selon l'orientation (11.0) et stress des films CoPd/Si.*

Pour les échantillons CoPd/Si la taille des cristallites varie entre une valeur minimale L= 81.6 nm correspondant à la couche Co_{72} Pd_{28} /Si et une valeur maximale de L= 107.7nm pour l'échantillon Co_{91} Pd_9 /Si.

La déformation mécanique varie entre une valeur minimale (ε=0.37%) pour l'échantillon Co_{91} Pd_9 /Si et une valeur maximale (ε=4.11) pour l'échantillon Co_{92} Pd_8 /Si.

La **figure III.3** montre l'évolution de la taille des cristallites en fonction de la concentration de Pd des couches minces de CoPd déposées sur des substrats de GaAs et de Si. On observe que l'évolution de la taille des cristallites et de la microdéformation des échantillons CoPd/GaAs et CoPd/Si est similaire. On remarque une augmentation de la taille des cristallites suivie par une diminution puis une autre augmentation.

L'effet du substrat observé dans notre cas sur la taille grains et les déformations dans les couches minces est un effet quantitatif.

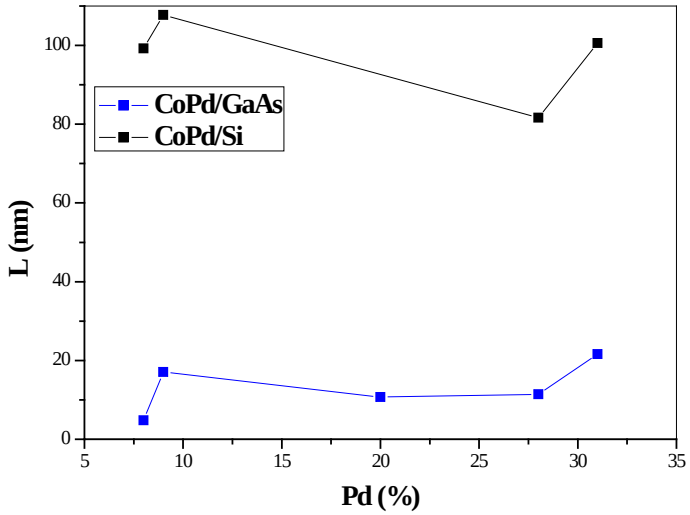


Figure III.3 : *Évolution de la taille des grains en fonction de la concentration de Pd.*

L'effet de la taille des grains des échantillons CoPd/GaAs sur le stress est très intéressant. Il est illustré sur la **Figure III.4.** Ce dernier diminue avec l'augmentation de la taille des cristallites. En effet, lorsque la taille des grains augmente, les films sont moins stressés et la différence entre la valeur du paramètre de maille mesuré et celle du corps massif (bulk) diminue, et par conséquent, le stress diminue.

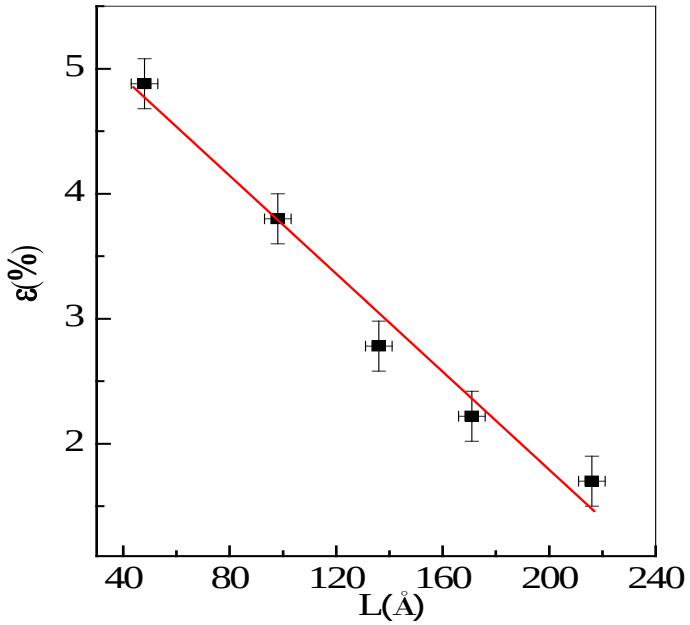


Figure III.4 : *Évolution du stress en fonction de la taille des grains des échantillons CoPd/GaAs.*

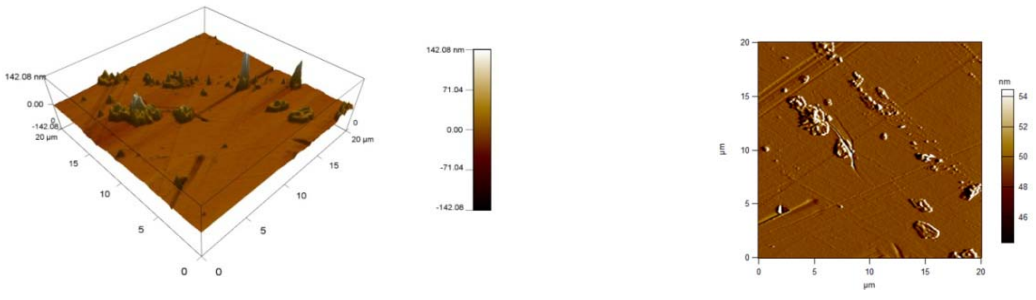
III.8. Morphologie

En général, la rugosité de surface est une propriété inévitable dans la plupart des solides et joue un rôle très important dans la physique des couches minces. La rugosité « *rms* » (root mean square, en anglais) modifie les caractéristiques ferromagnétiques des couches minces et perturbe les processus de retournement de l'aimantation [17,18].

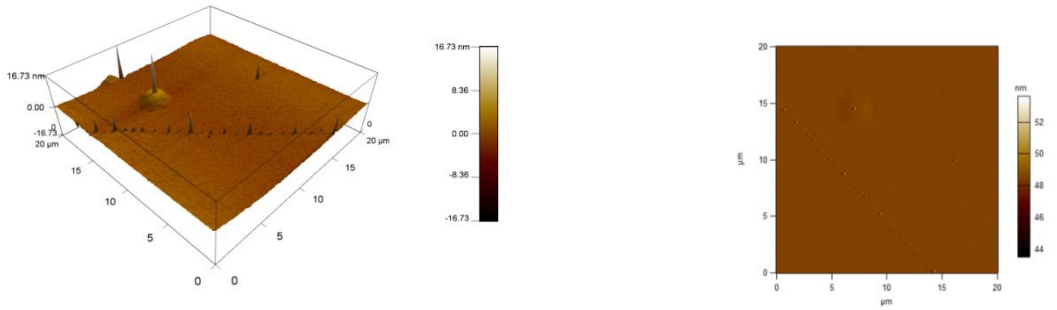
Du point de vue industriel, il est important de limiter et contrôler la rugosité de surface des alliages ferromagnétiques dans la mesure où ils servent de supports magnétiques de l'information: (bandes magnétiques, magnétographie). En effet, pour limiter les pertes magnétiques par hystérésis, il est nécessaire de réduire au maximum la rugosité. Ainsi dans le domaine de l'information, il est préférable d'avoir des couches planes plutôt que des couches texturées et rugueuses.

Dans ce travail de thèse, l'état de surface des couches minces de CoPd a été observé par un microscope à force atomique au *Laboratoire de Chimie, Ingénierie des Matériaux et Nanostructures* (LCIMN) de l'Université Ferhat ABBAS Sétif1. Le microscope utilisé pour l'acquisition des images AFM en mode non contact, est de type. (Sylium research AFM MFP 3D) opérant à l'air.

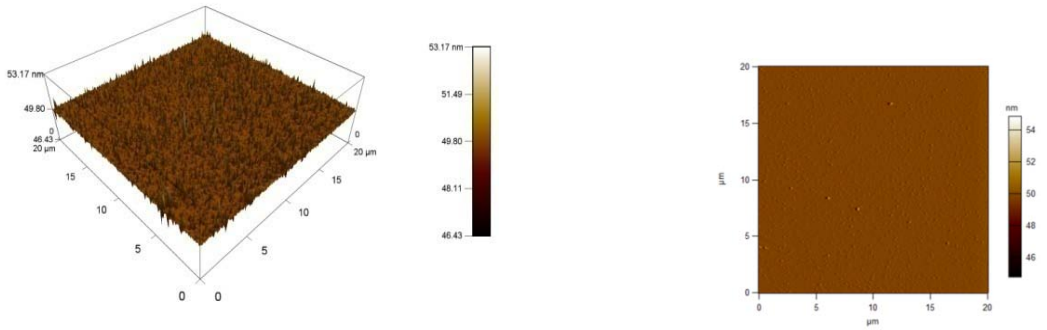
La **figure III.5** présente des images AFM en 2D et 3D sur une zone de 20 µm x 20 µm des couches minces de CoPd de différentes compositions déposées sur des substrats de GaAs. Sur ces images on observe que les films sont lisses. La surface de la couche contenant 8% de Pd n'est pas homogène alors que la surface de la couche contenant 31% de Pd est plus dense et homogène. Cette rugosité de surface va jouer un rôle fondamental sur les caractéristiques magnétiques de nos échantillons (chapitre IV).



$Co_{92}Pd_8/GaAs$



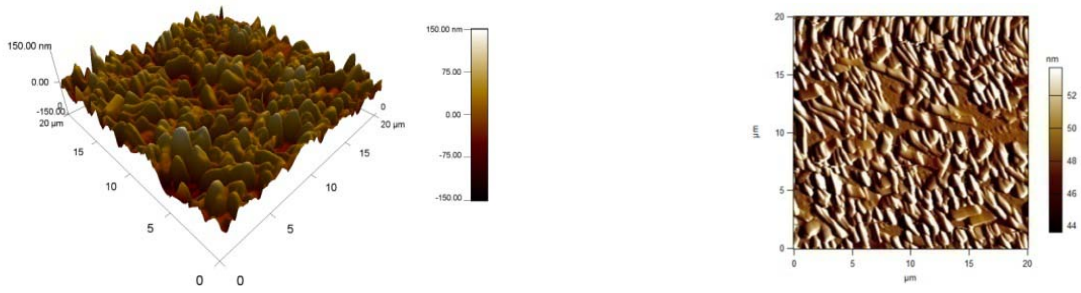
$Co_{91}Pd_9/GaAs$



$Co_{80}Pd_{20}/GaAs$

Figure III.5 : *Images AFM 2D et 3D des couches minces CoPd/GaAs de différentes compositions.*

La **figure III.6** présente des images AFM en 2D et 3D sur une zone de 20µm X 20µm des couches minces de CoPd/Si de différentes compositions.



$Co_{92}Pd_8/Si$

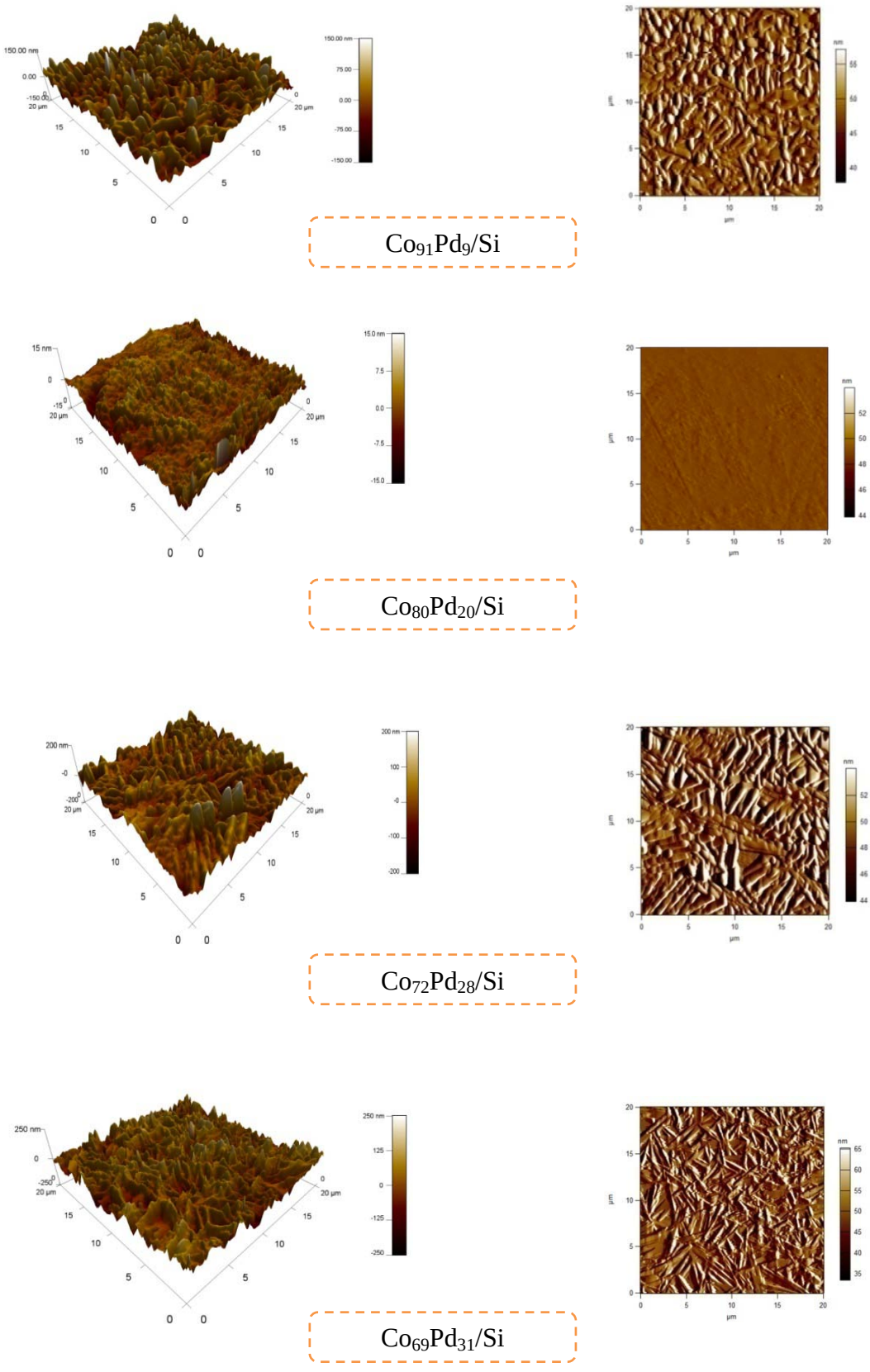


Figure III.6 : *Images AFM 2D et 3D des couches minces CoPd/Si de différentes compositions.*

La rugosité de surfaces des différents échantillons a été calculée à partir des images AFM. Les valeurs obtenues sont présentées sur le **tableau III.6.**

	S1	S2	S3	S4	S5
Pd (%at.)	8	9	20	28	31
Co (%at.)	92	91	80	72	69
rms (nm)	8.4	1	1.5	1.1	0.7

Tableau III.6 : *Rugosité de surface des films CoPd/GaAs.*

Les mesures de la rugosité des échantillons CoPd/GaAs montrent que la couche $Co_{92}Pd_8$ /GaAs est plus rugueuse que celle possédant la plus grande quantité de palladium ($Co_{69}Pd_{31}$ /GaAs).

III.9. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les conditions expérimentales utilisées durant l'élaboration des films minces de CoPd/GaAs et CoPd/Si. La composition des films à été déterminés par la technique XRF. Pour la caractérisation structurale nous avons utilisé la technique de diffraction des rayons X. La taille des grains et le stress ont été estimés par la formule de Scherrer et la formule de Stocks-Wilson respectivement. Nous avons trouvé que la taille des grains varie entre 4.8 et 21.6 nm pour les échantillons CoPd/GaAs et varie entre 81.6 et 107.7 nm pour les échantillons CoPd/Si. Le stress varie entre 1.70 et 4.88% pour les échantillons CoPd/GaAs et varie entre 0.37 et 4.11% pour les échantillons CoPd/Si. La microscopie à force atomique révèle des images de surface lisse pour la plupart des échantillons CoPd/GaAs, la rugosité de surface variant entre 0.7 et 4.8 nm. Ces valeurs ont une grande influence sur les propriétés magnétiques.

Références bibliographiques

[1] JCPDF 03-065-6075, Calculated from NIST using POWD-12++, Matsuo, Y., J. Phys. Soc. Jpn., 32, 972, (1972).

[2] JCPDF 03-065-9722, Calculated from NIST using POWD-12++, Krainer, E., Robitsch, J., Z. Metallkd., 61, 350, (1970).

[3] V. G. Myagkov, L. E. Bykova, V. S. Zhigalov, I. A. Tambasov, G. N. Bondarenko, A. A. Matsinin, and N. Rybakova, Physics of the Solid State **57** (2015) 1014–1022.

[4] Osamu, Y., Mitsuru, O., Kouske, T., Tsutomu, N., Fumiyoshi, K., Masaaki, F, Thin Solid Films **519** (2011) 8359-8362.

[5] Filippo S. Boi, Jian Guo, Carbon, **95** (2015) 634-639.

[6] V. Abdelsayed, G. Glaspell, M. Nguyen, James M. Howe and M. Samy El-Shall, The Royal Society of Chemistry, 2008.

[7] A. Sharma, S. Tripathi, N. Lakshmi, P. Sachdev, T. Shripathi, Solid State Communications **149** (2009) 1033-1038.

[8] *ASM Handbook Alloy Phase Diagrams*, Volume **3**, 1992.

[9] M. Tinouche, A. Kharmouche, B. Aktaş, F. Yildiz, A. N. Koçbay, Journal of Superconductivity and novel magnetism **28** (2015) 921–925.

[10] N. Nozawa, S. Saito, S. Hinata and M. Takahashi, Journal of Physics D: Applied Physics **46** (2013) 172001(6pp).

[11] K. Tobari, M. Ohtake, K. Nagano, M. Futamoto, Japanese Journal of Applied Physics **50** (2011) 073001(7pp) .

[12] Ricbard Brundle, Charles. Evans Jr.Sbaun Wihon, *Encyclopedia of Materials Characterization*, Butterworth-Heinmann, 1992.

[13] J.P. Eberhart, *Analyse structurale et chimiques des matériaux*, Bordas, Paris, 1998.

[14] O. Filies, Applied Surface Science **141** (1999) 357-365.

[15] G.K. Williamson, W.H. Hall, Acta metallurgica **1** (1953).

[16] M. Ohtake, S. Ouchi, F. Kirino, and M. Futamoto, IEEE Transactions on Magnetics **48** (2012) 3595-3598.

[17] H. Nathani, S. Gubbala, R.D.K. Misra, Materials Science and Engineering B **121** (2005) 126–136.

[18] P. Gollion, *Thèse de doctorat*, Lyon, 1993.

Chapitre IV

Propriétés magnétiques

Chapitre IV : Propriétés magnétiques

IV.1. Introduction

IV.2. Comportement magnétique des films CoPd

IV.3. Courbes expérimentales d'hystérésis

IV.3.1. Cycles d'hystérésis des échantillons CoPd/GaAs

IV.3.2. Cycles d'hystérésis des échantillons CoPd/Si

IV.4. Aimantation à saturation

IV.4.1. Evolution de l'aimantation à saturation en fonction de la concentration de Pd

IV.5. Aimantation rémanente et squareness

IV.5.1. Evolution de la squareness en fonction de la concentration de Pd

IV.6. Champ coercitif

IV.6.1. Evolution du champ coercitif en fonction de la concentration de Pd

IV.6.2. Effet de la taille des grains sur le champ coercitif

IV.6.3. Effet de la contrainte sur le champ coercitif

IV.6.4. Effet de la rugosité surfacique sur le champ coercitif

IV.7. Conclusion

Références bibliographiques

IV.1. Introduction

Dans ce chapitre nous présentons les résultats de mesures des propriétés magnétiques statiques, des films CoPd d'épaisseur 150 nm déposés sur des substrats de GaAs(100) et de Si(100) par l'évaporation sous vide, par effet Joule. Une première partie décrit les courbes d'hystérésis enregistrées sous un champ magnétique appliqué parallèlement à la surface du film magnétique. La deuxième partie étudie l'influence de la concentration de Palladium et les propriétés structurales (taille des grains, stress et rugosité) sur les propriétés magnétiques (aimantation à saturation, champ coercitif et squareness).

IV.2. Comportement magnétique des films CoPd

Les mesures magnétiques ont été obtenues grâce à un magnétomètre à échantillon vibrant, Vibrating Sample Magnetometer (VSM), en anglais. Les moments magnétiques sont mesurés selon la configuration parallèle (le champ magnétique appliqué est parallèle au plan de la couche mince). Les courbes d'aimantation expérimentales des films montrent des cycles d'hystérésis, ce qui confirme que tous les échantillons sont ferromagnétiques.

IV.3. Courbes expérimentales d'hystérésis

IV.3.1. Cycles d'hystérésis des échantillons CoPd/GaAs

Des exemples de cycles d'hystérésis des échantillons CoPd/GaAs sont présentés sur la **figure IV.1** ci-dessous. On remarque que la majorité des cycles prennent la forme carrée où l'aimantation à saturation et rémanente ont des valeurs très proches, donc l'axe de facile aimantation est dans le plan de la couche. Globalement, le champ coercitif des échantillons CoPd/GaAs varie entre 21 et 251 Oe. Une bonne squareness, S=0.98, est observée pour l'échantillon $Co_{72}Pd_{28}$/GaAs.

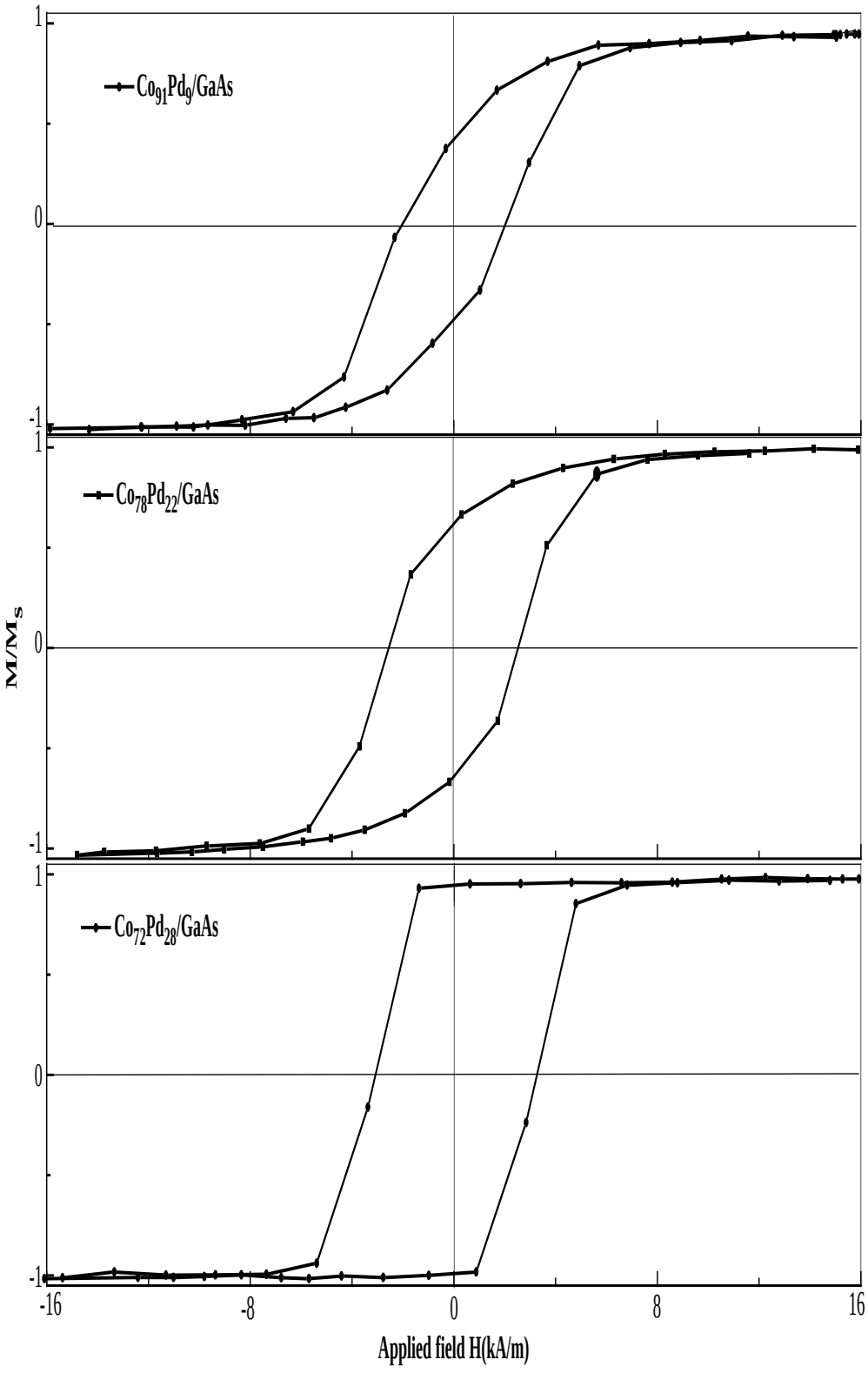


Figure IV.1 : *Cycles d'hystérésis des échantillons CoPd/GaAs.*

IV.3.2. Cycles d'hystérésis des échantillons CoPd/Si

On présente sur la **figure IV.2**, quelques cycles d'aimantation des couches minces de CoPd/Si, enregistrés dans la configuration longitudinale(le champ magnétique extérieure est aplliqué dans le plan des couches). On observe que tous les échantillons présentent une forme quasi carrée avec un axe d'aimantation facile dans le plan de la couche. Globalement, le champ coercitif des échantillons CoPd/Si varie entre 20 et 46 Oe. La meilleure squareness (0.65) est observée pour l'échantillon $Co_{80}Pd_{20}$ /Si.

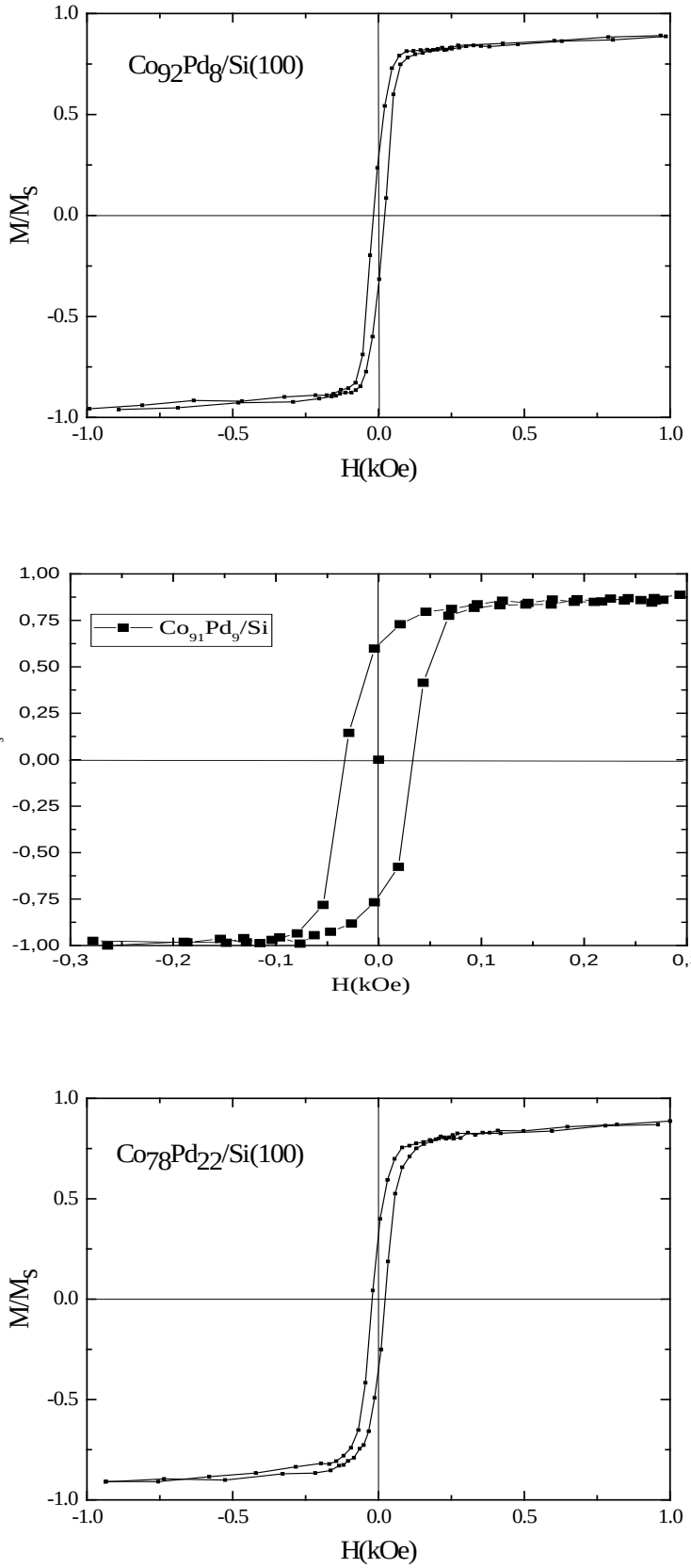


Figure IV.2 : *Cycles d'hystérésis des échantillons CoPd / Si.*

IV.4. Aimantation à saturation

L'aimantation à saturation (M_s) est une grandeur magnétique essentielle, caractéristique du matériau étudié. Dans le but d'étudier les propriétés magnétiques des couches minces de Co_xPd_{1-x}, il est primordial de la déterminer. Dans le cadre d'alliages magnétiques, elle dépend également de la composition de l'alliage, ce facteur étant d'autant plus important lorsqu'il s'agit d'un alliage composé d'un élément magnétique et d'un élément non magnétique comme le Co_xPd_{1-x}.

Un échantillon massif de cobalt possède une aimantation à saturation de 1422 emu/cm^3 [1]. En outre, $M_s = 0$ pour un échantillon de Pd pur.

Les mesures magnétiques effectuées à l'aide d'un VSM, donnent des valeurs du moment magnétique en emu (electromagnetic unity, en anglais). Pour obtenir les valeurs de l'aimantation des films nous avons divisé ce moment par le volume de l'échantillon, le volume étant le produit de l'épaisseur par la surface du film. L'épaisseur de nos couches minces est déterminée par profilometrie tandis que les surfaces ont été mesurées manuellement. Les résultats obtenus sont reportés sur les **tableaux IV.1 et IV.2.**

	S1	S2	S3	S4	S5
Pd (%at.)	8	9	22	28	31
Co (%at.)	92	91	78	72	69
M_s (emu/cm^3)	1152	978	704	584	192

Tableau IV.1 : *Valeurs de l'aimantation à saturation des échantillons CoPd/GaAs.*

	S1	S2	S3	S4	S5
Pd (%at.)	8	9	20	22	31
Co (%at.)	92	91	80	78	69
M_s (emu/cm^3)	821	809	502	250	198

Tableau IV.2 : *Valeurs de l'aimantation à saturation des échantillons CoPd/Si.*

Les couches de l'alliage CoPd déposées sur GaAs présentent des valeurs de M_s comprise entre 192 et 1152 emu/cm^3, et pour les échantillons CoPd/Si, les valeurs de M_s varient entre 198 et 821 emu/cm^3, bien inferieures à l'aimantation à saturation du cobalt massif qui est de l'ordre de 1422 emu/cm^3.

IV.4.1. Evolution de l'aimantation à saturation en fonction de la concentration de Pd

La **figure IV.3** représente la variation de l'aimantation à saturation en fonction de la concentration de Pd. On observe que l'aimantation à saturation diminue graduellement avec l'augmentation de la concentration de Pd ; cet effet est dû à l'hybridation des orbitales 3d de Co et 4f de Pd qui induit une polarisation des atomes de Pd [2-4] et les moments des atomes de Pd sont parallèles au moment de Co. Cette propriété a été également observée par d'autres auteurs [5-9]. D'autre part, une diminution plus rapide de l'aimantation à saturation a été observée pour des échantillons CoCr [4]. Cette évolution est une conséquence du fait que les moments des atomes de Cr sont antiparallèles aux moments des atomes de Co. Des résultats similaires ont été observés par d'autres auteurs [5, 6,10]. Des conclusions identiques ont été rapportées par Zhang et al. pour l'alliage CoPt [11] et où ils ont constaté que l'aimantation à saturation diminue avec l'augmentation de la concentration de Pt, conséquence de la substitution de quelque atomes de Co par des atomes de Pt. Rappelons que la diminution de l'aimantation à saturation est importante dans le stockage magnétique de l'information, afin de diminuer le bruit durant la lecture et l'écriture de l'information des bits informatiques.

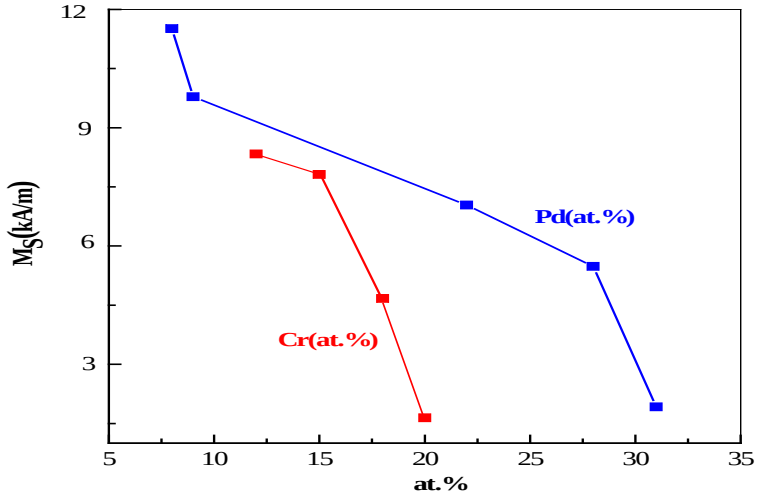


Figure IV.3 : *Évolution de l'Aimantation à saturation en fonction de la concentration de Pd et de Cr.*

IV.5. Aimantation rémanente et squareness

L'aimantation rémanente est une propriété intrinsèque du matériau. Elle est définie comme étant l'aimantation à champ nul. Pour les média de stockage d'information, l'aimantation rémanente (M_r) est une donnée fondamentale dont la valeur doit être élevée pour accroitre l'efficacité de lecture des champs émis par les bits [12]. Si cette aimantation était nulle cela signifierait que le matériau n'a aucune capacité de mémoire et ne peut donc servir pour l'enregistrement magnétique. Pour minimiser le bruit durant la lecture dans les média de stockage magnétique à haute densité les valeurs de l'aimantation rémanente et de l'aimantation à saturation doivent être sensiblement égales, c'est-à-dire les valeurs de la squareness sont ($S= M_r/M_s$) proche de 1 (cycles carré) [13].

Les **tableaux IV.3 et IV.4** montrent les valeurs de l'aimantation rémanente et de la « rectangularité » (squareness) des couches minces de CoPd/GaAs et CoPd/Si de différentes compositions. Ces mesures ont été effectuées par application d'un champ magnétique extérieur parallèle au plan de la couche magnétique.

Les valeurs de S sont comprises entre une valeur minimale S=0.41 pour la couche $Co_{91}Pd_9$/GaAs et une valeur maximale S=0.98 de l'échantillon $Co_{72}Pd_{28}$/GaAs, et varient entre une valeur minimale S=0.31 de l'échantillon $Co_{92}Pd_8$/Si et une valeur maximale S=0.65 pour la couche $Co_{80}Pd_{20}$/Si. Les valeurs de S indiquent que les moments magnétiques sont dans le plan de la couche.

Pd (%at.)	8	9	22	28	31
Co (%at.)	**92**	**91**	**78**	**72**	**69**
M_r (emu/cm^3)	**485**	**405**	**444**	**484**	**80**
S= M_r / M_s	**0.42**	**0.41**	**0.63**	**0.98**	**0.41**

Tableau IV.3: *Valeurs de la squareness et de l'aimantation rémanente des échantillons CoPd/GaAs.*

Pd (%at.)	8	9	20	22	31
Co (%at.)	**92**	**91**	**80**	**78**	**69**
M_r (emu/cm^3)	**253**	**504**	**327**	**88**	**76**
S= M_r / M_s	**0.31**	**0.62**	**0.65**	**0.35**	**0.38**

Tableau IV.4 : *Valeurs de la squareness et de l'aimantation rémanente des échantillons CoPd/Si.*

IV.5.1. Evolution de la squareness en fonction de la concentration de Pd

Le rapport de l'aimantation à saturation et de l'aimantation rémanente appelée « rectangularité » est lié intrinsèquement au matériau. Alors son évolution en fonction de la composition de la couche mince est indispensable pour comprendre mieux le comportement magnétique de la couche ferromagnétique.

IV.6. Champ coercitif

Le champ coercitif est le champ minimal qu'il faut appliquer pour changer le sens de l'aimantation. Il est fortement influencé par les propriétés microstructurales de la couche telles que la composition, la taille et la forme des grains et dépend des mécanismes d'aimantation et des mouvements des parois de domaines [14].

Le **tableau IV.5** donne les valeurs du champ coercitif extraites des cycles d'hystérésis des échantillons CoPd/GaAs de différentes compositions. Ces valeurs sont confinées entre 21 et 251 Oe. On observe que la plus petite valeur du champ coercitif (H_c) correspond à la couche $Co_{69}Pd_{31}$/GaAs et la plus grande valeur de H_c correspond à l'échantillon $Co_{92}Pd_8$/GaAs.

Pd (%at.)	8	9	22	28	31
Co (%at.)	**92**	**91**	**78**	**72**	**69**
H_C(Oe)	**251**	**25**	**32**	**40**	**21**

Tableau IV.5 : *Valeurs du champ coercitif des échantillons CoPd/GaAs.*

Le **tableau IV.6** donne les valeurs du champ coercitif extraites des cycles d'hystérésis des échantillons CoPd/Si de différentes compositions. Ces valeurs sont confinées entre 20 et 46 Oe. On observe que la plus petite valeur du champ coercitif H_c correspond à la couche $Co_{92}Pd_8$/Si et la plus grande valeur de H_c correspond à la couche $Co_{80}Pd_{20}$ /Si.

Pd (%at.)	8	9	20	22	31
Co (%at.)	**92**	**91**	**80**	**78**	**69**
H_C(Oe)	**20**	**33**	**46**	**22**	**21**

Tableau IV.6 : *Valeurs du champ coercitif des échantillons CoPd/Si.*

IV.6.1. Evolution du champ coercitif en fonction de la concentration de Pd

La **figure IV.4** montre l'évolution du champ coercitif H_c en fonction de la concentration de Pd des échantillons CoPd/GaAs et CoPd/Si. On observe que le champ coercitif diminue jusqu'à une valeur de 25 Oe pour la couche $Co_{91}Pd_9$/GaAs, puis il augmente avec l'augmentation de la concentration de Pd exception faite du film $Co_{69}Pd_{31}$/GaAs.

L'augmentation du champ coercitif peut être liée au nombre de joints de grains qui a augmenté du fait de la diminution de la taille des cristallites. Ces joints de grains à la surface des couches peuvent accrocher les parois, le champ nécessaire pour les décrocher n'en sera que plus important d'où l'augmentation du champ coercitif. La diminution du champ coercitif jusqu'a une valeur minimale pour l'échantillon $Co_{69}Pd_{31}$/GaAs peut être due à l'augmentation de la taille des cristallites jusqu'à une valeur maximale (L=21.6nm) pour cette échantillon.

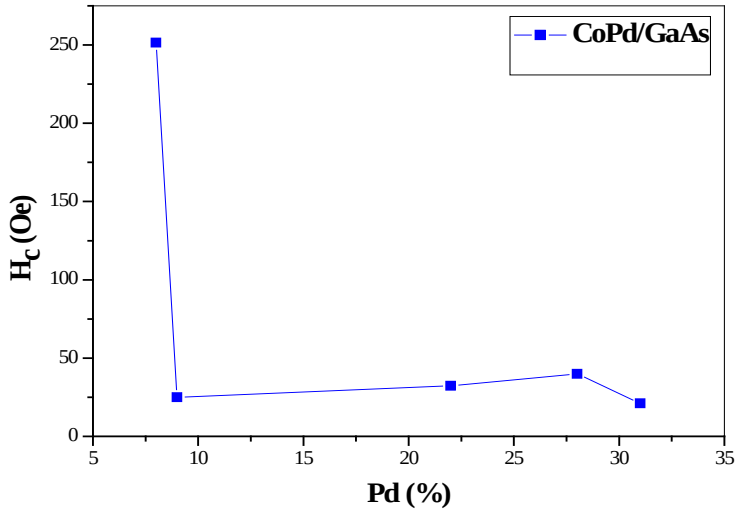


Figure IV.4 : *Évolution du champ coercitif en fonction de la concentration de Pd.*

IV.6.2. Effet de la taille des grains sur le champ coercitif

Les propriétés de la microstructure des films minces influent sur les paramètres magnétiques, tels que la taille des grains qui joue un rôle très important pour le champ coercitif [15-19]. Dans ce qui suit, nous allons présenter et discuter les résultats obtenues dans notre étude de l'effet de la taille des grains sur le champ coercitif.

La **figure IV.5** montre l'évolution du champ coercitif en fonction de la taille des grains des films CoPd/GaAs et CoPd/Si. On observe que le champ coercitif augmente avec la diminution

de la taille des grains des échantillons CoPd/GaAs. Cette augmentation est probablement due à l'augmentation du nombre de joints de grains. Ces joints de grains agissent comme des zones d'encrage pour les parois de domaines et gênent leur mobilité et affectent l'énergie d'échange, et provoquent donc l'augmentation du champ coercitif [20]. Cette augmentation de la coercivité avec la diminution de la taille des grains a été déjà observée par d'autres auteurs [21-24]. Par contre H_c diminue avec la diminution de la taille des grains des échantillons CoPd/Si. Cette diminution peut être due à la rotation des parois de Bloch. Ce résultat est en accord avec ceux d'autres auteurs [25-26].

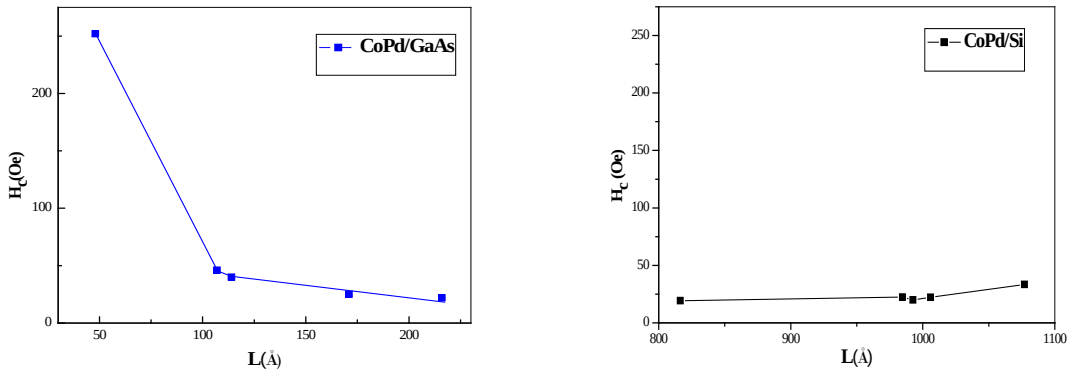


Figure IV.5 : *Évolution du champ coercitif en fonction de la taille des grains.*

IV.6.3. Effets de la contrainte sur le champ coercitif

Le **tableau IV.7** montre l'évolution du champ coercitif en fonction de la contrainte, des échantillons CoPd/GaAs (la contrainte calculée représente les microdéformations intrinsèques des cristallites). Aucune corrélation est claire ne peut être établie entre *Hc* et *ε*.

Pd (%at.)	8	9	20	28	31
Co (%at.)	92	91	80	72	69
ε (%)	4.88	2.22	3.80	2.78	1.70
H_C(Oe)	251	25	32	40	21

Figure IV.7 : *Évolution du champ coercitif (H_c) en fonction du stress(ε)des échantillons CoPd/GaAs.*

IV.6.4. Effets de la rugosité surfacique sur le champ coercitif

Les propriétés magnétiques des films minces, sont fortement corrélées à la topographie de surface. Les calculs théoriques faits par Patrick Bruno montrent que la rugosité de surface réduit l'anisotropie dipolaire. Dans les surfaces rugueuses, l'anisotropie dipolaire se décompose en deux termes ; un terme de volume correspondant à l'anisotropie démagnétisante d'un film parfait, et un autre terme de surface, proportionnel à l'amplitude de la rugosité [27].

$$\boldsymbol{E_{dip} = \left(VK_v^{dip} + 2SK_S^{dip}\right) sin^2\,\theta} \qquad \textbf{(IV.1)}$$

Avec θ l'angle entre l'aimantation et l'axe de facile aimantation, K_v^{dip} *et* K_S^{dip} les constantes d'anisotropie de volume et de surface, respectivement.

Notons que dans les systèmes d'enregistrement magnétique, trois types de bruit sont considérés: le bruit du milieu magnétique, le bruit de la tête et le bruit électronique. Le bruit du milieu magnétique est le facteur le plus important qui influe sur l'exécution du système d'enregistrement. Ce type de bruit, produit durant l'enregistrement d'un signal, est très influencé par les propriétés de surface du milieu magnétique telle que la rugosité, ce qui provoque le bruit dans le rendement électrique de la tête de lecture [28].

Le champ coercitif dépend du mouvement des parois (parois de Bloch et parois de Néel) qui est influencé par la rugosité de surface. Cette dernière augmente la coercivité due à la rotation des domaines de paroi de Néel et diminue la coercivité due à la rotation des parois de Bloch. Cette propriété a été confirmée par Zhao et al. [29], Li et al. [30,31] et Malyutin et al. [32].

Les valeurs de la rugosité et celle du champ coercitif des échantillons CoPd/GaAs sont rassemblées dans le **tableau IV.8**. On observe que la plus grande valeur du champ coercitif (H_c= 251 Oe) correspond à la couche la plus rugueuse (*rms* = 4.8 nm) alors que la plus petite valeur du champ coercitif (21 Oe) correspond à une couche moins rugueuse (*rms* = 0.7 nm).

L'évolution du champ coercitif en fonction de la rugosité de surface des films CoPd/GaAs est présentée sur la **figure IV.6**. On remarque que le champ coercitif augmente d'une manière quasi-linéaire avec la rms. On peut attribuer cette augmentation de la coercivité à une augmentation de la densité d'énergie des parois, due probablement à la présence d'irrégularités ou de défauts (comme les joints de grains qui apparaisse avec la morphologie granulaire) à la surface des films qui peuvent accrocher les parois ; le champ magnétique

nécessaire pour les décrocher est plus important d'où l'augmentation du champ coercitif [20]. Aussi, dans les surfaces rugueuses, la composante du facteur démagnétisant H_d contenue dans le plan du film est non nulle, et affecte donc le mouvement des domaines [29,33].

	S1	S2	S3	S4	S5
Pd (%at.)	8	9	20	28	31
Co (%at.)	92	91	80	72	69
H_c(Oe)	251	25	44	40	21
rms (nm)	8.4	1	1.5	1.1	0.7

Tableau IV.8 : *Valeurs du champ coercitif en fonction de la rugosité des échantillons CoPd/GaAs.*

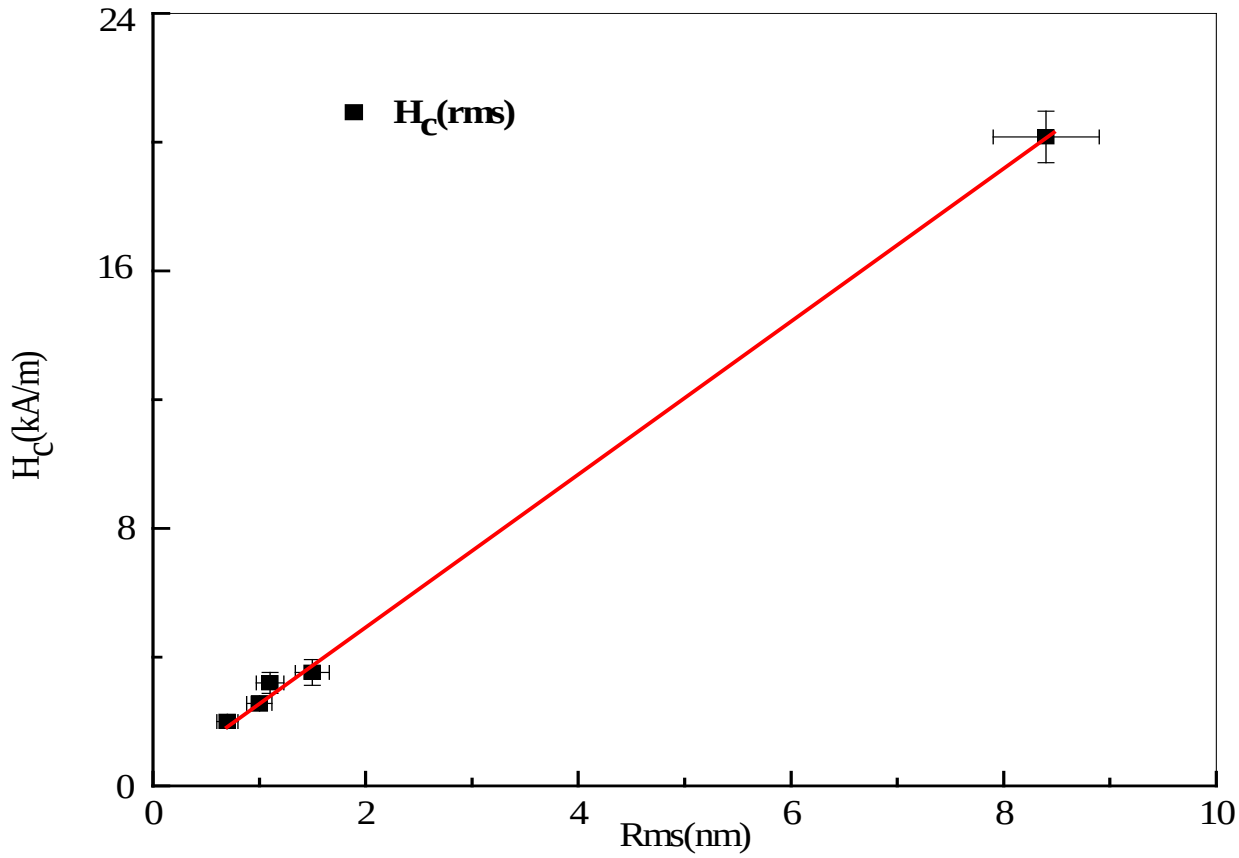


Figure IV.6 : *Évolution du champ coercitif en fonction de la rugosité de surface des échantillons CoPd/GaAs.*

IV.7. Conclusion

Le dépouillement des cycles d'hystérésis des films minces de l'alliage CoPd/GaAs et CoPd/Si mesurées par la magnétométrie à échantillon vibrant, avec la configuration parallèle, nous a permis de déterminer les valeurs de l'aimantation à saturation, l'aimantation rémanente, la squareness et le champ coercitif, et de mettre en évidence que l'axe de facile aimantation est dans le plan de la couche. Les évolutions de ces principaux paramètres magnétiques avec la concentration de Pd ont été représentées et décrites. On a remarqué que :

- l'aimantation à saturation diminue graduellement avec l'augmentation de la concentration de Pd pour les deux types de substrats.
- pour les films déposés sur GaAs la squareness augmente avec l'augmentation de la concentration de Pd.
- le champ coercitif diminue jusqu'à une valeur de 25 Oe pour la couche $Co_{91}Pd_9$/GaAs puis il augmente avec l'augmentation de la concentration de Pd, exception faite du film $Co_{69}Pd_{31}$/GaAs. On a constaté aussi que la taille des grains, la contrainte et la rugosité surfacique avaient une influence sur le champ coercitif donc une forte corrélation a été trouvée entre les propriétés magnétiques et les paramètres de dépôt.

Références bibliographiques

[1] *American Institute of Physics handbook*, 2nd ed, (Mc-Graw-Hill, New York, 1963).

[2] R. M. Bozorth, P. A. Wolff, D. D. Davis, V. B. Compton and J. H. Wernick, Physical Review **122** (1961)1157.

[3] O. Rader, E. Vescovo, J. Redinger, S. Blügel, C. Carbone, W. Eberhardt and W. Gudat, Physical Review letters **72** (1994) 2247-2251.

[4] J. Carrey, A. E. Berkowitz, W. F. Egelhoff Jr., D. J. Smith, Applied Physics Letters **83** (2003) 5259.

[5] N. Nozawa, S. Saito, S. Hinata and M. Takahashi, Journal of Physics D: Applied Physics **46** (2013) 172001(6pp).

[6] D. Weller, H. Brändle and C. Chappert, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **121** (1993) 461-470.

[7] S. Hashimoto, Y. Ochiai and koichi ASO, Japanese Journal of Applied Physics **28** (1989) 1596-1599 .

[8] F.M. Takata, P.T.A. Sumodjo, Electrochimica Acta **52** (2007) 6089–6096.

[9] S. Ghosh, C. Chaudhuri, B. Sanyal, A. Mookerjee, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **234** (2001) 100–113.

[10] A. Kharmouche, S.-M. Chérif, Y. Roussigné, G. Schmerber, Applied Surface Science. **255** (2009) 6173–6178.

[11] Y. F. Zhang, W. Qin, X. Y. Zhang, and Y. Wang, Physica Status Solidi (a) **201** (2004) 3137–3141.

[12] I. Djouada, *Thèse de doctorat*, Université Ferhat Abbas de Sétif, 2012.

[13] I. Kaitsu-05, R. Inamura, J. Toda, T. Morita, Fujitsu, Journal of science and technology **421** (2006) 122 -130.

[14] L. Louail, *Thèse de doctorat d'Etat*, 1998.

[15] Milton Ohring, *the Materials Science of Thin Films*, Academic Press, 1992.

[16] K.H.G Buschow, *Handbook of magnetic materials*,Volume 10, Elsevier Science BV,1997.

[17] K. Buschow, F. De Boer, *Physics of Magnetism and Magnetic Materials*, Kluwer Academic, 2004.

[18] K.H.G Buschow, *Handbook of magnetic materials*, Volume 2, Elsevier Science B V, 1980.

[19] D.A. Porter, *Phase transformations in metals and alloys*, Second edition, Chapman

Hall, 1984.

[20] Lény Nzoghe Mendome, *Thèse de doctorat*, Université de Reims Champagne-Ardenne (URCA), 2007.

[21] M. Mebarki, A. Layadi, L. Kerkache, N. Tiercelin, V.Preobrazhensky, and P. Pernod, Journal of Applied Physics **120** (2015) 97–104.

[22] M. Mebarki, A. Layadi, L. Kerkache, M.R. Khelladi, A. Azizi, N. Tiercelin, V.Preobrazhensky, and P. Pernod, Metallurgical and Materials Transactions **47** (2016) 3677-3683.

[23] R. K. Das, S. Rawal, D. Norton, and A. F. Hebard, Journal of Applied Physics **108** (2010) 123920 (4pp).

[24] R.D. Noce, N. Barelli, P.T.A. Sumodjo, D.R. Cornejo, A.V. Benedetti, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **306** (2006) 199–203.

[25] M.S. Viqueira, G.Pozo-López, S.E.Urreta, A.M.Condó, D.R.Cornejo, L.M. Fabietti, Journal of Magnetism and Magnetic Materials **394** (2015)185–194.

[26] N. Zotov, R. Hiergeist, A. Savan, A. Ludwig, Thin Solid Films, **518** (2010) 4977–4985.

[27] P. Bruno, *Thèse de Doctorat*, Paris, 1989.

[28] K. H. J. Buschow, *Hand book of magnetic materials*, Volume 11, Elsevier, Amsterdam, 1998.

[29] Y.-P. Zhao, R. M. Gamache, G.-C. Wang, T.-M. Lu, G. Palasantzas, J.ThM. De Hosson, Journal of Applied Physics, **89** (2001)1325.

[30] M. Li, G.-C. Wang, H.-G. Min, Journal of Applied Physics, **83** (1998) 5313.

[31] M. Li, Y.-P. Zhao, G.-C. Wang, H.-G. Min, Journal of Applied Physics, **83** (1998) 6287.

[32] V.I. Malyutin, V.E. Osukhovskii, Yu D. Vorobiev, A.G. Shishkov, V.V. Yudin, Physica Status Solidi, **65** (1981) 45.

[33] Q. Jiang, H.-N. Yang, G.-C.Wang, Surface Science, **373** (1997) 181.

Conclusion générale

Conclusion générale

Le but de ce travail de thèse est l'étude de l'effet de la concentration de Pd sur les propriétés structurales et magnétiques des couches minces de CoPd, d'épaisseur 150 nm, déposés par évaporation sous vide, par effet Joule sur des substrats de GaAs(100) et de Si(100), au sein du laboratoire d'étude des surfaces et interfaces de matériaux solides (L.E.S.I.M.S) de l'Université Ferhat Abbas Sétif1. Les compositions élémentaires des échantillons ont été déterminées par la technique XRF (X-ray fluorescence). Les concentrations atomiques de Pd sont comprises entre 8 et 31%.

L'étude par la diffraction des rayons X montre que les échantillons sont monocristallins avec une structure c.f.c. pour les échantillons CoPd/GaAs et h.c.p. pour les échantillons CoPd/Si. Les valeurs du paramètre de maille des échantillons CoPd/GaAs sont confinées entre 0.370 et 0.375 nm. Tous les échantillons sont sous stress de compression. La taille des grains des échantillons CoPd/GaAs varie entre 4.8 nm et 21.6 nm, et est confinée entre 81.6 et 107.7nm pour les échantillons CoPd/Si.

Les observations par la microscopie à force atomique(AFM) révèlent des images de surface lisse pour la plupart des échantillons. La rugosité surfacique des échantillons CoPd/GaAs varie entre 0.7 et 8.4 nm.

L'étude des cycles d'hystérésis obtenues par la magnétométrie à échantillon vibrant (VSM) montre que les films sont ferromagnétiques avec une anisotropie planaire (l'axe de facile aimantation est dans le plan de la couche). L'évolution des principaux paramètres magnétiques (l'aimantation à saturation, le champ coercitif, la squareness) en fonction de la concentration de Pd a été étudiée. Nous avons trouvé que l'aimantation à saturation diminue avec l'augmentation de la concentration de Pd et ces valeurs sont comprises entre 192 et 1152 emu/cm^3 pour les échantillons CoPd/GaAs et varient entre 198 et 821 emu/cm^3 pour les échantillons CoPd/Si, bien inferieures à l'aimantation à saturation du cobalt massif qui est de l'ordre de 1422 emu/cm^3. La squareness des échantillons CoPd/GaAs augmente avec l'augmentation de la concentration de Pd, exception faite du film contenant 31% de Pd. Pour la couche $Co_{72}Pd_{28}$ /GaAs la valeur de S est proche de 1. Le champ coercitif des échantillons CoPd/GaAs diminue jusqu'à une valeur de 25 Oe pour la couche $Co_{91}Pd_9$ /GaAs, puis il augmente avec l'augmentation de la concentration de Pd, exception faite du film $Co_{69}Pd_{31}$/GaAs.

Il a été constaté que la coercivité est influencée par la taille des grains, la contrainte et la rugosité surfacique.

Les études faites sur les corrélations entre les propriétés structurales et magnétiques des films minces de Co et d'alliages à base de Co sont loin d'être entièrement maitrisées. Pour comprendre parfaitement les mécanismes et évolutions de ces propriétés, afin de les optimiser aux diverses applications technologiques, de nombreuses questions restent néanmoins en suspens, et donc à défricher.

Annexes

Annexe A - Systèmes d'unités c.g.s. et S.I.

Nous avons choisi d'utiliser, tout au long de ce mémoire, le système d'unités c.g.s. pour l'expression des grandeurs magnétiques. Ceci permet en effet une simplification d'écriture des équations. De plus, ce système est le plus couramment utilisé dans la littérature. Nous présentons ci-dessous des tables de conversion du système c.g.s. vers le système d'unités international S.I. [1]

- Tables de conversion :

Grandeur physique	**Symbole**	**c.g.s.**	**S.I.**
Champ magnétique	H	1 Oersted	$10^3/4\pi$ A.m^{-1}
Induction	B	1 Gauss	10^{-4} Teslas
Aimantation Par unité de volume	M	1 emu.cm^{-3}	10^3 A.m^{-1}
Moment magnétique	μ	1emu	10^{-3} A.m^2
Susceptibilité	χ	1 emu.cm^{-3}.Oe^{-1}	4π (sans dim)
Constante d'anisotropie	K	1erg.cm^{-3}	10^{-1} J.m^{-3}
Constante d'échange	A	1erg.cm^{-1}	10^{-5} J.m^{-1}
Constante de magnétostriction	B	1erg.cm^{-3}	10^{-1} J.m^{-3}
longueur	l	1cm	10^{-2} m
Energie par unité de volume	E	1erg.cm^{-3}	10^{-1} J.m^{-3}

Constante	**Symbole**	**c.g.s.**	**S.I.**
Perméabilité du vide	μ_0	1 (sans dim)	$4\pi.10^{-7}$ T.m.A^{-1}
Magnéton de Bohr	μ_B	9.274015.10^{-21} erg.G^{-1}	9.274015.10^{-24} J.T^{-1}

- Equations fondamentales du magnétisme :

c.g.s.	**S.I.**
$B = 4\pi M + H$	$B = M + \mu_0 H$
$M = \chi H$	$M = \chi H = \mu_0 \bar{\chi} H$
$B = \mu H$	$B = \mu H = \mu_0 \bar{\mu} H$
$H_d = -N.M$	$H_d = -\frac{1}{\mu_0} N.M$
$E_m = \frac{1}{8\pi}(B.H)_{max}$	$E_m = \frac{1}{2}(B.H)_{max}$

Annexe B - Modèle de retournement de l'aimantation de Stoner et Wohlfarth

Parmi les nombreux mécanismes permettant de décrire le retournement de l'aimantation d'une particule magnétique, le plus simple est le modèle de renversement de l'aimantation par rotation cohérente, proposé par Stoner et Wohlfarth [2], car il permet une description analytique. L'hypothèse essentielle du modèle est que toute variation d'aimantation ne peut résulter que d'une rotation à l'unisson de tous les moments magnétiques. La conséquence en est que l'énergie d'échange du système reste constante lors du renversement d'aimantation. Les autres hypothèses sont :

– la température est supposée nulle;

– l'aimantation est uniforme. Le moment de la particule est décrit par un macrospin $M=VM_S$;

– l'anisotropie est uniaxiale. La particule peut être un ellipsoïde de révolution, dont le grand axe est suivant l'axe de facile aimantation. Les énergies d'anisotropie magnétocristalline et de forme ont alors toutes les deux une expression en $\sin^2 \theta$, soit

$$E_a = \Delta E \sin^2 \theta \qquad (1)$$

Ou Δ E est la barrière d'énergie pour le système lors du renversement d'aimantation et θ l'angle entre le moment et l'axe Oz de facile aimantation. θ est le seul degré de liberté du système (figure 1).

En présence d'un champ extérieur H, l'énergie magnétique du système s'écrit :

$$E_m = \Delta E \sin^2 \theta - \mu_0 H M_S V \cos(\emptyset - \theta) \qquad (2)$$

Où φ est l'angle que fait le champ appliqué $\vec{H}$ avec l'axe de facile aimantation.

En minimisant cette énergie, on détermine la valeur H_{ret} [3] pour laquelle l'aimantation va se retourner :

$$H_{ret} = \frac{2\Delta E}{\mu_0 M_S V} \left(\sin^{2/3}(\pi - \varphi) + \cos^{2/3}(\pi - \varphi)\right)^{-3/2} \qquad (3)$$

La variation de l'énergie magnétique de la particule en fonction de l'angle θ pour différentes valeurs du champ H appliquée est représentée à la figure 2.

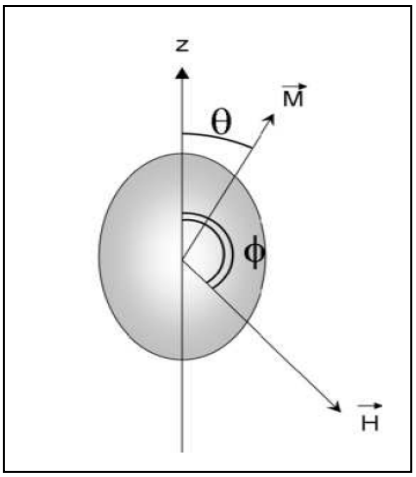


Figure B.1 : *Modèle de Stoner-Wohlfarth pour le retournement d'aimantation*

Dans le cas particulier ou φ = π le retournement se fait lorsque la barrière d'énergie disparaît. La position correspondant à θ = 0 devient un état métastable correspondant à un maximum d'énergie. Le retournement se produit pour :

$$H_{ret} = \frac{2\Delta E}{\mu_0 M_S V} \qquad (4)$$

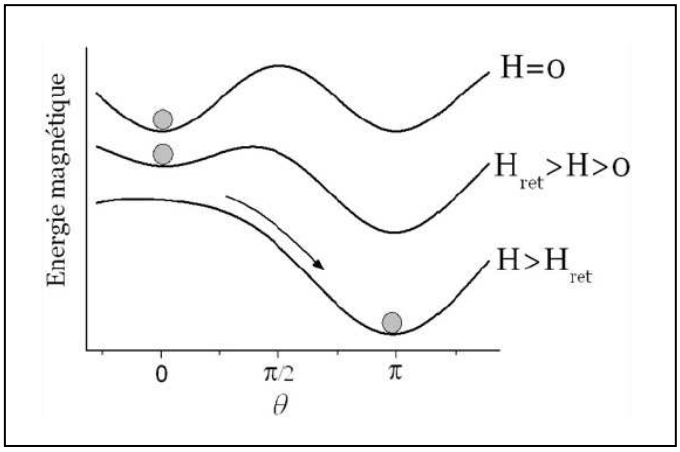


Figure B.2 : *Energie magnétique en fonction de l'angle θ pour différentes valeurs du champ appliqué* $\vec{H}$ *.*

Si l'anisotropie se limite à un terme uniaxial d'anisotropie magnétocristalline $K_1 \sin^2 \theta$ le champ de retournement s'identifie au champ d'anisotropie donné par la relation :

$$H_A = \frac{2K_1}{\mu_0 M_S} \qquad (5)$$

Le modèle permet de déterminer les cycles d'hystérésis pour différentes orientations du champ appliqué par rapport à l'axe de facile aimantation (figure 3).

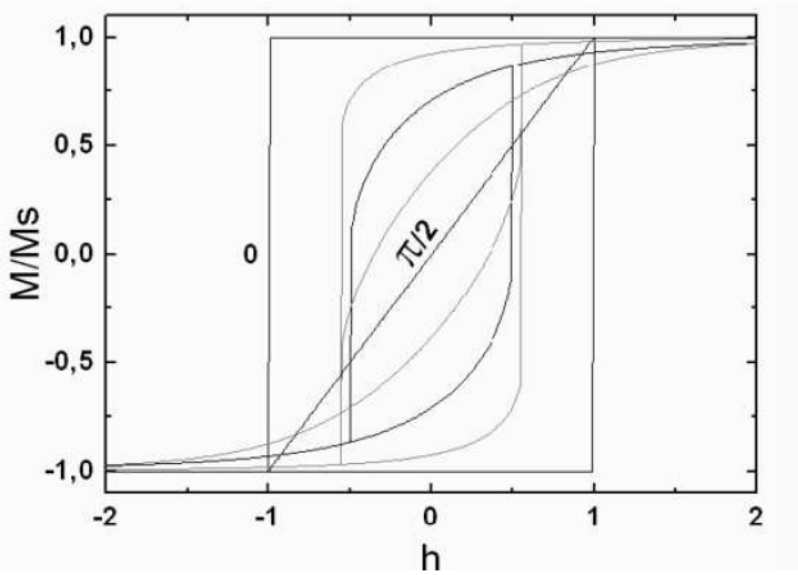


Figure B.3 : *Cycles d'hystérésis de la composante de l'aimantation dans la direction du champ appliqué. On a fait varier φ de 0 à π/2. h=H/H$_A$.*

Annexes C - Disques durs

Afin de comprendre les limites des disques durs actuels, et les possibilités des prochaines générations, le principe général de fonctionnement d'un disque dur sera rapidement détaillé à partir de la Figure 1.

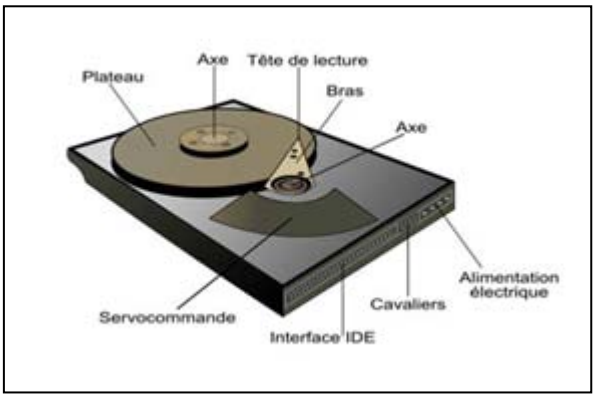


Figure C.1: *Intérieur d'un disque dur avec ses différents éléments.*

L'écriture de l'information sur ce support se fait à l'aide d'une tête constituée d'un circuit magnétique présentant un entrefer d'épaisseur e et d'un enroulement d'excitation. Cette tête d'écriture crée un champ de fuite, localisé sous l'entrefer, qui permet l'écriture en modifiant localement la direction de l'aimantation d'une zone du média magnétique délimitant un bit d'information.

Lors du processus de lecture, les informations enregistrées sont récupérées en parcourant la surface de la couche magnétique (du média) à l'aide d'une tête de lecture. Celle-ci détecte les transitions entre les régions d'aimantation opposées et une horloge permet de décompter le nombre d'intervalles d'aimantation identique entre deux transitions. Les pistes magnétiques sont constituées des matériaux ferromagnétiques dont l'orientation code l'information binaire.

L'aimantation à saturation du matériau constituant la tête d'écriture limite la valeur du champ magnétique qu'elle peut créer (2.4 T maximum pour les matériaux actuellement disponibles). Cette contrainte fixe une limite au champ coercitif acceptable pour le media magnétique, du moins à température ambiante.

Le procédé d'enregistrement encore récemment dominant, l'enregistrement longitudinal [4], est illustré par le schéma de la Figure 2. La piste magnétique est constituée d'une ligne (largeur de 100 à 200nm) de grains magnétiques. Chaque bit comprend un grand nombre de grains, contrainte imposée par la dispersion de leurs propriétés : le rapport signal sur bruit

deviendrait inacceptable si ce nombre était trop petit. La dénomination « longitudinale » provient du fait que le matériau est aimanté dans le plan de la couche.

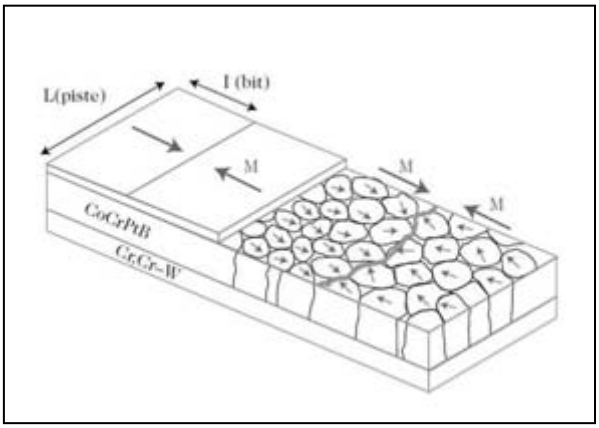


Figure C.2: *La couche magnétique est constituée de grains. Les rectangles représentent schématiquement des bits magnétiques.*

Références

[1] C. L. Chien, *Topics on magnetism*, (2002).

[2] E. C. Stoner et E. P. Wohlfarth, Phil. Trans. Roy. Soc. A, 240, 599 (1948). Réédité dans IEEE Transactions on Magnetics **27** (1991) 3475-3518.

[3] *Magnétisme-Tome I : Fondements*, Ed. EDP Sciences (2000).

[4] Lahmani M., DUPAS C., Houdy P. *Les nanosciences 1. Nanotechnologies et nanophysique*, Les édition Belin Paris 2006.

Résumé

Ce travail de thèse porte sur l'étude des propriétés structurales et magnétiques des couches minces de CoPd d'épaisseur 150 nm, évaporées sous vide sur des substrats de GaAs(100) et de Si(100). Les concentrations atomiques de Pd sont confinées entre 8 et 31%, valeurs déterminées par la techniques XRF. L'étude par DRX a montré que les films CoPd/GaAs sont monocristallins et ont une structure cubique à faces centrées (c.f.c.) et les films CoPd/Si ont une structure hexagonale compacte (h.c.p.). La taille des grains des échantillons CoPd/GaAs est confinée entre 4.8 et 21.6 nm et varie entre 81.6 et 107.7nm pour les échantillons CoPd/Si. Par ailleurs, la microscopie AFM révèle des images topographiques de surface lisse pour la plupart des échantillons; les valeurs de la rugosité sont comprises entre 0.7 et 8.4nm. Les mesures d'aimantation ont montré que les films sont ferromagnétiques, avec une anisotropie planaire. Le champ coercitif est compris entre 20 et 251 Oe. L'aimantation à saturation est comprise entre 192 et 1152emu/cm^3 et diminue avec l'augmentation de la concentration de Pd.

Mots clés : CoPd; couches minces; DRX; VSM ; champ coercitif.

ملخص

في هذا العمل قمنا بدراسة الخصائص البلورية والمغناطيسية لسلسلة من الرقائق CoPd بسمك 150nm صنعت بطريقة التبخير في الفراغ بفعل جول فوق نوعين من المساند GaAs(100) و Si(100). سمحت تقنية XRF بتحديد قيم التركيز الذري لـ Pd المحصورة في المجال 31%-8%. أثبتت الدراسة بواسطة DRX أن الرقائق المصنوعة فوق مساند GaAs ذات بنية CFC، أما الرقائق المصنوعة فوق مساند Si ذات بنية HCP، كما أثبتت أن أبعاد بلورات العينات CoPd/GaAs محصورة بين4,8 و 21,6 nm، أما أبعاد بلورات العينات CoPd/Si فتتراوح بين 81,6 و 107,7 nm. أثبت المجهر AFM أن معظم العينات لها سطح أملس تتراوح قيم خشونة السطح بين0.7 و4,8nm. أثبتت الخصائص المغناطيسية التي تمت بواسطة تقنية VSM أن العينات ذات مغناطيسية حديدية، تتراوح قيم الحقل القاهر بين 20 و251Oe. أما قيم مغناطيسية التشبع فهي محصورة بين 192 وemu / cm^3 1152 كما أنها تتناقص بتزايد تركيز Pd.

كلمات مفتاحية : CoPd؛ طبقات رقيقة؛ DRX؛ VSM؛ الحقل القاهر.

Abstract

In this thesis we study the structural and magnetic properties of evaporated CoPd thin films, with 150 nm in thickness, under vacuum onto GaAs (100) and Si (100) substrate. The atomic concentration of Pd ranged from 8 to 31%, values determined by XRF measurements. XRD measurements show that the CoPd /GaAs films are monocrystallyne with fcc structure and show that CoPd/Si has an hexagonal close packed structure (hcp). The crystallite size is ranged between 4.8 and 21.6 nm for CoPd/GaAs samples, and is confined between 81, 6 and 107.7 nm for CoPd/Si samples. Furthermore, atomic force microscopy observations reveal smooth surface of the most of the samples, whereas roughness values are ranged between 0.7 and 8.4 nm. VSM measurements infer that the films are ferromagnetic with a planar anisotropy. Coercive field values are confined between 20 and 251 Oe. Saturation magnetization value ranged between 192 and 1152emu/cm^3 and decreases with increasing Pd concentration.

Keywords: CoPd; thin films; XRD; coercive field.