REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE

MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

Université Ferhat Abbas - SETIF 1

THESE

Présentée à la Faculté des Sciences

Département de Physique

Pour l'Obtention du Diplôme de

DOCTORAT ES SCIENCES

Option: Physique du Solide

Par

Mr. HEMMOUS MESSAOUD

THEME

Etude des propriétés physiques des couches minces de Ni et des bicouches Ni/Cu préparées par évaporation sous vide.

Soutenue le: 12 / 02 / 2015

Devant le jury :

Président	Saadi Lamari	Professeur	Université de Sétif 1
Rapporteur	Abdelhamid Layadi	Professeur	Université de Sétif 1
Examinateur	Ahmed Boufelfel	Professeur	Université de Guelma
Examinateur	Mohamed-Fayçal Mosbah	Professeur	E. N. P. de Constantine

Remerciements

Mes remerciements vont tout premièrement à dieu tout puissant pour la volonté, la santé et la patience qu'il m'a donné pour terminer ce travail.

Je voudrais aussi remercier ma petite et ma grande famille (particulièrement ma femme) pour tout le soutien apporté pendant ces sept années et jusqu'ici.

Je tiens à exprimer ma gratitude à Mr. Abdelhamid Layadi professeur à l'Université de Sétif, pour sa disponibilité, son soutien, ses encouragements et aussi pour m'avoir suivi, encadré et permis de mener à bien mes travaux pendant ces sept années.

Je suis très reconnaissant envers Mr. Saadi Lamari, professeur à l'Université de Sétif pour l'honneur qu'il me fait en acceptant de présider le jury de cette thèse.

J'adresse mes vifs remerciements à Mr. Ahmed Boufelfel, professeur à l'Université de Guelma, pour avoir accepté de juger ce travail.

Je remercie Mr. Mohamed-Fayçal Mosbah, professeur à Ecole Nationale Polytechnique de Constantine, pour avoir accepté de juger ce travail.

Je tiens à remercier chaleureusement Mr. Abderrahim Guittoum, Maitre de recherche A, au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA), pour m'avoir intégré au sein de son équipe de recherche, et surtout pour m'avoir aidé et suivi de prés l'aboutissement du présent travail de thèse.

J'adresse mes remerciements chaleureux à Mr. A. Boukerika attaché de recherche au CRNA, pour son amitié sincère et pour les nombreux services qu'il m'a rendus.

Je tiens à adresser mes remerciements à Mr. M. Belamri, Maitre de recherche B et chef de division des techniques nucléaires (CRNA) pour les efforts qu'il a fourni au sein du CRNA pour nous assurer les expériences nécessaires.

J'adresse mes vifs remerciements à Mr. N. Souami (chargé de recherche), D. Sahel (Ingénieur) et Larbeh youcef (attaché de recherche) au CRNA pour l'aide qu'ils m'ont apporté lors de la caractérisation des échantillons par le MEB.

J'adresse également mes particuliers remerciements à Mr. L. Guerbous, Maitre de recherche A au CRNA, pour ses encouragements et ses conseils.

Je remercie Mr. M. Siad, Directeur de recherche au CRNA, pour les analyses de la RBS.

Une partie de ce travail a été accomplie au centre de recherche nucléaire de Birin (CRNB). Pour cela, je tiens à remercier Mr. Sari Ali, attaché de recherche à la division des techniques nucléaires au centre de recherche nucléaire de Birine pour les analyses de diffraction des rayons X (DRX).

Mes remerciements vont aussi à Mr. M. Boudissa (Professeur) et à Mr. N. Menni (Docteur) de l'université de Sétif pour l'aide qu'ils m'ont apporté lors de l'élaboration des échantillons au sein de leur laboratoire des couches minces.

Je remercie Melle. D. Lakhdari, Attaché de recherche au Centre de Recherche en Technologie des Semi-conducteurs pour l'Energétique (CRTSE), pour les analyses des quatre pointes.

Je remercie Mr. L. Kerkeche (professeur à l'Université de Sétif) et N. Tiercelin, A. Klimov, V. Preobrazhensky et P. Pernod (Université de Lille) pour les expériences de magnétisme (VSM et Kerr). Qu'ils trouvent ici l'expression de mes sincères remerciements.

Une partie de ce travail a aussi été accompli à l'Université Abderrahmane Mira de Bejaïa. Pour cela, je tien à remercier Mr. M. Mebarki, pour les analyses de DRX et MEB.

Je n'oublie pas mes collègues de travail avec qui j'ai partagé de bons moments, mes amis qui ont toujours été présents lorsque j'en ai eu besoin et tous ceux qui m'ont aidé de prés ou de loin pour achever cette thèse.

Enfin, je dédie ce modeste travail à la mémoire de nos précieux amis Bel Mehdi Amine et Chemcedine Nacereddine.

TABLE DES MATIERES

Introduction générale	**1**
Références bibliographiques	**4**
Chapitre I	
Généralités et études antérieures sur les couches minces de Nickel	
I. Introduction	**6**
II. Rappel sur le magnétisme	**6**
II. 1. Les différents types du magnétisme	7
II. 1. 1. Diamagnétisme	7
II. 1. 2. Paramagnétisme	8
II. 1. 3. Ferromagnétisme	9
II. 2. Cycle d'hystérésis	10
II. 3. Les Anisotropies magnétiques	11
II. 3. 1. Anisotropie de forme	12
II. 3. 2. Anisotropie magnéto-cristalline	12
II. 4. Domaines magnétiques et parois de Bloch	14
II. 5. Relation topographie-ferromagnétisme	15
II. 5. 1. Le modèle de Kittel	16
II. 5. 2. Le modèle de Néel	16
II. 5. 3. Le formalisme de A. Khapikov	16
II. 5. 4. Le modèle de Hoffmann	17
II. 6. Classification des matériaux ferromagnétiques	18
II. 6. 1. Matériaux durs	19
II. 6. 2. Matériaux doux	19
II. 6. 3. Matériaux supports de l'enregistrement	20
III. Propriétés physiques fondamentales du Ni massif	**20**
IV. Les différents travaux sur le Ni en couches minces	**21**
V. Conclusion	**23**
Références bibliographiques	**24**

Chapitre II

Méthodes d'élaboration et de caractérisation

I. Introduction **26**

II. Méthodes d'élaboration des couches minces **26**

II. 1. Techniques de dépôt en phase vapeur 26

II. 1. 1. Dépôts physiques en phase vapeur 27

II. 1. 1. 1. Dépôt par évaporation 27

II. 1. 1. 2. Dépôt par pulvérisation cathodique 27

II. 1. 2. Dépôts chimiques en phase vapeur 27

II. 2. Les procédés sol-gel 28

II. 3. Les procédés électrochimiques 28

III. Elaboration des échantillons **29**

III. 1. Technique et appareillage utilisé 29

III. 2. Nettoyage des substrats et élaboration des échantillons 31

III. 3. Mesure des épaisseurs par oscillateur à quartz 32

IV. Méthodes de caractérisation **33**

IV. 1. Méthodes de caractérisation structurales 33

IV.1. 1. Technique de rétrodiffusion de Rutherford (RBS) 33

IV. 1. 1. 1. Principe de la RBS 33

IV. 1. 1. 2. Mesure des épaisseurs des couches minces 34

IV. 1. 1. 3. Dispositif Expérimental 34

IV. 1. 1. 4. Réalisation et Simulation 35

IV. 1. 2. La diffraction des rayons X (DRX) 36

IV. 1. 2. 1. Principe de fonctionnement de DRX 36

IV. 1. 2. 2. Loi de Bragg 36

IV. 1. 2. 3. Dispositif expérimental 37

IV. 1. 3. Microscopie électronique à balayage 39

IV. 2. Méthodes de caractérisation électriques (Méthode des quatre pointes) 40

IV. 2. 1. Dispositif de mesure de la résistance carrée 40

IV. 2. 2. Principe de fonctionnement 41

IV. 3. Méthodes de caractérisation magnétiques 42

IV. 3. 1. Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) 42

IV. 3. 2. Magnétomètre à effet Kerr 44

V. Conclusion **45**

Références bibliographiques **46**

Chapitre III

Etude des propriétés structurales

I. Introduction **48**

II. Etude du système Ni/substrats **48**

II. 1. Conditions d'élaboration des échantillons 48

II. 2. Analyse physico-chimique par la RBS 49

II. 3. Analyse structurale par la diffraction des rayons X 52

II. 3. 1. Texture 52

II. 3. 2. Evolution du paramètre de maille 55

II. 3. 3. Evolution de la taille moyenne des grains 59

II. 4. Analyse microstructurale 62

III. Etude du système Ni/Cu/substrats **65**

III. 1. Conditions d'élaboration des échantillons 65

III. 2. Mesure des épaisseurs 66

III. 3. Analyse structurale par la diffraction des rayons X 69

III. 3. 1. Texture 69

III. 3. 2. Evolution du paramètre de maille 71

III. 3. 3. Evolution de la taille moyenne des grains 74

III. 4. Analyse microstructurale 75

IV. Etude comparative entre les deux systèmes **77**

IV. 1. Texture 77

IV. 2. Strain 78

IV. 3. Taille moyenne des grains 78

V. Conclusion **80**

Références bibliographiques **82**

Chapitre IV

Etude des propriétés électriques

I. Introduction **85**

II. Mesure de la résistance électrique **86**

III. Loi de Mattiessen **86**

IV. Etude du système Ni/substrats **88**

IV. 1. Etude de la résistance carrée 88

IV. 1. 1. Effet de l'épaisseur 88

IV. 1. 2. Effet de la taille moyenne des grains 92

IV. 1. 3. Discussion 93
IV. 2. Etude de la résistivité électrique 94
IV. 2. 1. Effet de l'épaisseur 94
IV. 2. 2. Effet de la taille moyenne des grains 98
IV. 2. 3. Discussion 99
IV. 3. Effet de la taille sur les propriétés électriques 101
IV. 3. 1. Diffusion des électrons à la surface 102
IV. 3. 2. Diffusion des électrons aux joints de grains 105
V. Etude du système Ni/Cu/substrats 107
VI. Conclusion 109
Références bibliographiques 110

Chapitre V

Etude des propriétés magnétiques

I. Introduction 112
II. Etude par magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) 112
II. 1. Etude du système Ni/substrats 112
II. 1. 1. Champ coercitif 113
II. 1. 1. 1. Effet de l'épaisseur 113
II. 1. 1. 2. Effet de la taille moyenne des grains 115
II. 1. 2. Le facteur squarness 116
II. 1. 2. 1. Effet de l'épaisseur 116
II. 1. 2. 2. Effet de la taille moyenne des grains 118
II. 1. 3. Champ de saturation 119
II. 1. 3. 1. Effet de l'épaisseur 119
II. 1. 3. 2. Effet de la taille moyenne des grains 120
II. 2. Etude du système Ni/Cu/substrats 121
II. 2. 1. Champ coercitif 123
II. 2. 1. 1. Effet de l'épaisseur 123
II. 2. 1. 2. Effet de la taille moyenne des grains 124
II. 2. 2. Le facteur squarness 125
II. 2. 2. 1. Effet de l'épaisseur 125
II. 2. 2. 2. Effet de la taille moyenne des grains 126
II. 2. 3. Champ de saturation 127
II. 2. 3. 1. Effet de l'épaisseur 127
II. 2. 3. 2. Effet de la taille moyenne des grains 128

II. 3. Discussion et comparaison 129
III. Etude des propriétés magnétiques par effet Kerr 131
III. 1. Etude du système Ni/substrats 131
III. 1. 1. Champ coercitif 133
III. 1. 1. 1. Effet de l'épaisseur 133
III. 1. 1. 2. Effet de la taille moyenne des grains 134
III. 1. 2. Le facteur squarness 135
III. 1. 2. 1. Effet de l'épaisseur 135
III. 1. 2. 2. Effet de la taille moyenne des grains 136
III. 1. 3. Champ de saturation 137
III. 1. 3. 1. Effet de l'épaisseur 137
III. 1. 3. 2. Effet de la taille moyenne des grains 138
III. 2. Etude du système Ni/Cu/substrats 139
III. 2. 1. Champ coercitif 141
III. 2. 1. 1. Effet de l'épaisseur 141
III. 2. 1. 2. Effet de la taille moyenne des grains 142
III. 2. 2. Le facteur squarness 143
III. 2. 2. 1. Effet de l'épaisseur 143
III. 2. 2. 2. Effet de la taille moyenne des grains 144
III. 2. 3. Champ de saturation 145
III. 2. 3. 1. Effet de l'épaisseur 145
III. 2. 3. 2. Effet de la taille moyenne des grains 146
III. 3. Discussion et comparaison 147
IV. Conclusion 149
Références bibliographiques 151
Conclusion générale **153**

Introduction générale

Introduction générale

Un intérêt particulier a été porté à l'étude des couches minces, vu les nombreuses applications de ces structures en technologie. Plusieurs matériaux et différentes méthodes ont été utilisés pour l'élaboration et la caractérisation des couches minces.

Les couches minces à base de matériaux ferromagnétiques constituent une classe assez importante dans le domaine du magnétisme, cela revient essentiellement à la miniaturisation des dimensions. Cette caractéristique a fait l'objet de plusieurs travaux de recherche pour la réalisation des dispositifs à enregistrement de haute densité et les capteurs magnétiques à haute sensibilité. Les propriétés physiques des couches minces dépendent fortement des conditions de dépôt, du substrat, de l'épaisseur, de la qualité et de l'orientation cristalline des couches réalisées. C'est pourquoi une étude très soignée de ces différents paramètres associés à la croissance des films minces était nécessaire pour pouvoir tenter une explication convaincante des propriétés magnétiques. D'un autre côté la grande sensibilité des effets magnétiques à de très faibles variations des propriétés structurales des échantillons est un atout très précieux pour mieux comprendre les processus de croissance des matériaux en couches minces. D'autre part, les films minces contenant des matériaux ferromagnétiques (Ni, Fe, Co…) constituent un bon modèle pour étudier les propriétés magnétiques à une dimension réduite [1] ; comme relevé pour la première fois par Néel, la réduction de la coordination des atomes ferromagnétiques peut produire une anisotropie de surface significative [2].

Ce travail fait suite aux travaux réalisés sous la direction de Mr le professeur A. Layadi au Département de Physique à l'Université Ferhat Abbas de Sétif sur les couches minces de Nickel. On cite comme exemples les travaux de B. Ghebouli et al. [3-5], de C. Nacereddine et al. [6-8] et de M. Hemmous et al. [9, 10]. Notons que le but de tous ces travaux est d'étudier l'effet de l'épaisseur, la vitesse de dépôt et du substrat sur les propriétés structurales, électriques et magnétiques des films de Ni. Dans ces travaux, différentes méthodes et conditions de préparation ont été utilisées. Plusieurs substrats et gammes d'épaisseurs ont été considérés. Par ailleurs, dans la littérature les couches minces de Ni présentent toujours un champ d'études intéressant dans le domaine de la recherche scientifique. Plusieurs travaux ont été reportés ces dernières années dans ce domaine. On cite quelques travaux sur les films de Ni [11-16], les bicouches de Ni/Cu/substrats [17-19], l'effet de l'épaisseur de la couche de Ni sur les propriétés physiques [20-23], l'effet de l'interface et

de l'interdiffusion entre les couches sur les propriétés magnétiques [24] et l'effet d'une monocouche de Fe, Mn et Cu juxtaposée à une couche mince de Ni [25-28]. Le Ni et le Cu cristallisent dans le même système qui est le cubique à faces centrées (cfc). Le paramètre de maille pour les deux structures ne diffère que de 2.5 % [29] ; ce qui amène à prévoir une croissance pseudo-morphique.

Ce travail de thèse se décompose en deux grandes parties en plus de l'introduction et de la conclusion générale. Une partie initiale bibliographique constituée de deux chapitres (I et II) et une deuxième partie expérimentale structurée en trois chapitres (III, IV et V).

Le premier chapitre est un rappel sur le magnétisme. Il présente le ferromagnétisme ainsi que quelques modèles micromagnétiques qui seront utilisés dans ce travail. Nous donnons une description générale du phénomène d'anisotropie magnétique et des cycles d'hystérésis. Nous exposons ensuite quelques exemples de travaux effectués sur les couches minces de Ni dans la littérature, ainsi que ceux effectués par notre groupe à l'Université de Sétif.

Le deuxième chapitre s'articule sur deux parties. La première présentera brièvement les différents procédés de fabrication des couches minces. On décrira la technique d'élaboration des films utilisés au cours de cette thèse, à savoir l'évaporation sous vide chauffée par effet Joule. La deuxième partie de ce chapitre se concentrera sur la description des différentes techniques de caractérisation (structurales, électriques et magnétiques), qui ont permis d'analyser la structure, la texture et les microstructures, ainsi que d'étudier l'évolution des paramètres électriques (résistance carrée et résistivité électrique) et magnétiques (champ coercitif, facteur squarness et champ de saturation) des films obtenus.

Le troisième chapitre décrira les conditions d'élaboration (dépôt) de chaque système ; système de Ni/substrats (couches minces simples) et système de Ni/Cu/substrats (bicouches Ni/Cu). Pour les substrats, nous avons utilisé le verre, Si (111), Cu, mica, Al_2O_3 et CuZn. Les épaisseurs utilisées varient de 4 à 163 nm. D'autre part, ce chapitre résume nos résultats sur les caractérisations structurales. Nous soulignons l'importance de la caractérisation structurale des matériaux à étudier. En effet, les propriétés physiques (électriques et magnétiques) dépendent très fortement de la structure cristalline, de la taille de sa dimension nanométrique (épaisseur des couches minces, taille des nanograins, etc.), ainsi que de l'état de la surface, etc. Pour les caractérisations structurales de nos échantillons, nous avons utilisé : la spectroscopie de rétrodiffusion de Rutherford (RBS), la diffraction des rayons X (DRX) et la microscopie électronique à balayage (MEB).

Dans le quatrième chapitre, nous nous intéressons à l'étude des propriétés électriques des deux systèmes (Ni/substrats et Ni/Cu/substrats). On focalisera sur le comportement de la résistance carrée ($R_{\square}$) et de la résistivité électrique (ρ) en fonction des différents paramètres expérimentaux (épaisseur, vitesse de dépôt, taille moyenne des grains …). Aussi, on étudiera l'influence de la sous-couche de Cu et l'effet du substrat sur le comportement de $R_{\square}$ et ρ. On fera une corrélation entre les propriétés électriques et les propriétés structurales (taille moyenne des grains). On finira ce chapitre par une analyse basée sur les deux modèles de Fuchs-Sondheimer et de Mayadas-Shatzkes qui permettent d'expliquer certains résultats expérimentaux.

Enfin, le dernier chapitre (V) présentera les propriétés magnétiques macroscopiques et locales des couches minces de Ni sur les différents substrats pour les deux systèmes. Dans ce chapitre, on utilisera le magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) et le magnétomètre à effet Kerr pour réaliser les caractérisations magnétiques. Par ailleurs, l'évolution des paramètres ferromagnétiques que sont le champ coercitif, facteur squarness et le champ de saturation est analysée en fonction de l'épaisseur et de la taille moyenne des grains de la couche de Ni. Le but est d'expliquer la corrélation entre la structure cristalline, la taille de la dimension nanométrique et les caractéristiques ferromagnétiques.

Une conclusion générale de ces travaux résumera l'ensemble des résultats et soulignera les perspectives de caractérisations complémentaires nécessaires et des stratégies de synthèses ou procédés envisagés pour améliorer les films de Ni de ce travail de thèse.

Références bibliographiques

[1] J. A. C. Bland et B. Heinrich. Ultrathin Magnetic structures I: *An Introduction to the Electronic, Magnetic and Structural Properties*. Springer, 2005.

[2] L. Neel, J. Phys. Radium 15 *(*1954*)* 225.

[3] B. Ghebouli, *mémoire de Magister*, UFA de Sétif (1996).

[4] B. Ghebouli, A. Layadi, L. Kerkache, Eur. Phys. J. AP 3, (1998) 35-39.

[5] A. Bourzami, B. Ghebouli, A. Kharmouche, A. Guittoum, A. Layadi, O. Lenoble, M. Piecuch. Ann. Chim. Sci. Mat, 30 (2005) 207-2015.

[6] C. Nacereddine, *mémoire de Magister*, UFA de Sétif (2004).

[7] C. Nacereddine, A. Layadi, A. Guittoum, S.-M. Cherif, T. Chauveau, D. Billet, J. Ben Youssef, A. Bourzami, M.-H. Bourahli. Mater. Sci. Eng. B 136 (2007) 197–202.

[8] S.-M. Chérif, A. Layadi, J. Ben Youssef, C. Nacereddine, Y. Roussigné. Physica B 387 (2007) 281–286.

[9] M. Hemmous, *mémoire de Magister*, UFA de Sétif (2007).

[10] M. Hemmous, A. Layadi, A. Guittoum, A. Bourzami, A. Benabbas. Microelectronics. J. 39 (2008) 1545 – 154 9.

[11] A. L. Dolgiy, S.V. Redko, I. Komissarov, V.P. Bondarenko, K.I. Yanushkevich, S.L. Prischepa. Thin Solid Films 543 (2013) 133–137.

[12] K. Makihara, S. Maruyama, Y. Zota, M. Hashimoto, J. Shi. Thin Solid Films 520 (2012) 6831– 6835.

[13] J. Kacher, I. M. Robertson, M. Nowell, J. Knapp, K. Hattar. Mater. Scie. Engin. A528 (2011) 1628–1635.

[14] Z. B. Guo, W.B. Mi, Q. Zhang, B. Zhang, R.O. Aboljadayel, X.X. Zhang. Sol. Sta. Com. 152 (2012) 220–224.

[15] W. M. Rubioa, G. H. Paulino, E. C. Nelli Silva. Mater. Design 41 (2012) 255–265.

[16] Z. Yang, H. Qiu, B. Hu, G. Zou. Vacuum 99 (2014) 192-195.

[17] A. Ashery, A.A.M. Farag, R. Mahani. Microelectron. Eng. 87 (2010) 2218–2224.

[18] R. Naik, M. Ahmad, G. L. Dunifer, C. Kota, A. Poli, K. Fang, U. Rao and J. S. Payson. J. Magn. Magn. Mater. 121 (1993) 60-64.

[19] H. J. Hug, B. Stiefel, A. Moser, I. Parashikov, A. Klicznik, D. Lipp, H.-J. Güntherodt, G. Bochi, D. I. Paul, R. C. O'Handley. J. Appl. Phys.79 (8) (1996) 5609 - 5614.

[20] J.-S. Lee, Y. J. Park, J. H. Song, K. H. Chae, J. Lee, C. N. Whang, K . Jeong, D. -H. Kim, S. -C. Shin. Phys. Rev. B 69 (2004) 172405.

[21] J. Lee, G. Lauhoff, M. Tselepi, S. Chope, P. Rosenbusch, J. A. C. Bland, H. A. Dürr, V. D. Laan, J. Ph. Schillé, J. A. D. Matthew. Phys. Rev. B 55 (1997) 15103.

[22] J. Lee, J. A. C. Bland, J. Ph. Schill, G. van der Laan. J. Magn. Magn. Mater. 177-181 (1998) 1253-1254.

[23] G. B. Cho, K. K. Cho, K. W. Kim. Mater. Lett. 60 (2006) 90 – 93.

[24] C. A. F. Vaz, G. Lauhoff, J. A. C. Bland, S. Langridge, D. G. Bucknall, J. Penfold, J. Clarke, S. K. Halder, B. K. Tanner. J. Magn. Magn. Mater. 313 (2007) 89–97.

[25] T. Nakagawa, H. Watanabe, T. Yokoyama. Surf. Sci. 599 (2005) 262–269.

[26] R. Thamankar, S. Bhagwat, F.O. Schumann. J. Magn. Magn. Mater. 281(2004) 206–213.

[27] C. A. F. Vaz, G. Lauho, J. A. C. Bland, B. D. Fulthorpe, T. P. A. Hase, B. K. Tanner, S. Langridge, J. Penfold. J. Magn. Magn. Mater. 226-230 (2001) 1618-1620.

[28] C. S. Tian, Z. Tian, J. Wu, G. S. Dong, X. F. Jin, Y. Z. Wu, Z. Q. Qiu. J. Magn. Magn. Mater. 286 (2005) 497–500.

[29] L. R. Sill, M. B. Brodsky, S. Bowen and H. C. Hamaker, J. Appl. Phys. 57 (1985) 3663-3665.

Chapitre I

Généralités et études antérieures sur les couches minces de Nickel

I. Introduction

Au cours de ces dernières années, une intense recherche a permis une avancée considérable dans le domaine des couches minces, multicouches et nanostructures à base de matériaux ferromagnétiques. En effet, la description des différents aspects magnétiques est très importante pour bien interpréter les résultats obtenus.

Ce chapitre est divisé en trois parties, la première sera dédiée à un rappel sur le magnétisme d'une façon générale. Ce rappel permet de décrire les principales familles des matériaux magnétiques (diamagnétique, paramagnétique et ferromagnétique) en fonction de leurs moments magnétiques et des interactions entre les moments magnétiques des atomes dans les substances. Ensuite, nous décrirons le phénomène d'hystérésis avec ses différentes caractéristiques (champ coercitif (Hc), aimantation rémanente (Mr), aimantation à saturation (Ms), facteur squareness S (Mr/Ms) et le champ de saturation (Hs)). Après, une définition et une classification des différentes énergies d'anisotropies magnétiques sont données. Ainsi quelques modèles présentant la dépendance directe entre le champ coercitif et les paramètres structurales et magnétiques seront exposés. Par la suite, nous exposerons la classification des matériaux magnétiques (doux, durs et matériaux supports de l'enregistrement) qui sont déterminés principalement par le champ coercitif. Dans la deuxième partie, nous nous intéresserons aux propriétés physiques fondamentales de Ni massif. Dans la dernière partie, une étude bibliographique a été effectuée et une synthèse des travaux expérimentaux a été présentée. Cette synthèse a pour objectif de présenter quelques généralités relatives aux couches minces et aux multicouches de Ni, nous nous intéresserons plus spécifiquement aux couches minces et aux multicouches de Ni déposées sur les substrats de verre, silicium (Si), cuivre (Cu), mica et alumine (Al_2O_3). Cette étude bibliographique générale sera complétée par des études plus spécifiques en préambule de chacun des chapitres de ce manuscrit. Enfin, nous terminons par une conclusion du chapitre.

II. Rappel sur le magnétisme

Le domaine des couches minces et des multicouches magnétiques est l'un des domaines les plus actifs. Le magnétisme reste toujours un secteur très important qui attire et excite la curiosité des scientifiques. D'autre part, les recherches fondamentales qui basées sur le magnétisme sont, encore actuellement, parmi les plus dynamiques. Malgré les grandes améliorations qui ont été réalisées dans la compréhension du magnétisme, mais il reste encore

bien des phénomènes non interprétés, et des applications basées sur des effets magnétiques à réaliser. Le magnétisme macroscopique de la matière est fortement lié aux moments magnétiques des atomes la constituant. Selon ces moments atomiques on peut déduire les différents types de matériaux magnétiques.

II. 1. Les différents types du magnétisme

Le moment magnétique atomique est donné par la somme des moments magnétiques électroniques dans le cas d'un atome à plusieurs électrons. L'origine du moment magnétique électronique possède deux contributions différentes ; la première est celle du moment magnétique orbital qui est due au mouvement de la charge électrique portée par l'électron autour du noyau et la seconde contribution est attribuée au moment magnétique de spin qui est d'origine quantique [1-4]. Notons que le magnétisme de la matière est déterminé par l'interaction entre ces moments magnétiques atomiques [5]. La susceptibilité magnétique χ_m est un paramètre important dans les matériaux magnétiques. Elle permet de classer les matériaux suivant leurs comportements magnétiques. Elle est donnée par la relation suivante :

$$\vec{M} = \chi_m . \vec{H} \qquad \text{(I. 1)}$$

où $\vec{H}$ le champ magnétique appliqué ;

$\vec{M}$ l'aimantation magnétique.

D'un point de vue magnétique, les matériaux sont classés en trois grandes catégories : (i) le diamagnétisme, (ii) le paramagnétisme et (iii) le ferromagnétisme [6, 7].

Dans ces trois catégories, les matériaux ferromagnétiques sont les plus utilisés dans les domaines technologiques de la lecture et l'enregistrement magnétique. Cependant, les matériaux diamagnétiques et paramagnétiques ont moins d'importance d'un point de vue applicatif en raison de la faible interaction avec les champs magnétiques extérieures appliqués.

II. 1. 1. Diamagnétisme

Les matériaux diamagnétiques ont la particularité de présenter à leurs états naturels, un moment magnétique atomique nul. L'application d'un champ magnétique extérieur sur un matériau diamagnétique provoque automatiquement un changement du mouvement des électrons de ce matériau sur les orbitales électroniques. Ce changement du mouvement électronique est suivi par une apparition d'une faible aimantation dans le sens opposé du champ magnétique extérieur c'est-à- dire $\chi_m < 0$ (Fig. I. 1). Il est important de noter que ce

phénomène de très faible intensité qui existe dans tous les matériaux, et qui cesse immédiatement lorsqu'on n'applique plus de champ magnétique extérieur [7-9]. Le cuivre (Cu) est un matériau diamagnétique qui possède une susceptibilité à température ambiante égale $-1.18.10^{-5}$ [10].

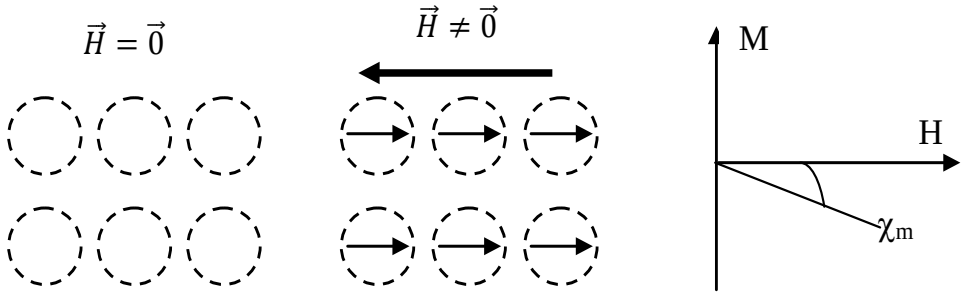


Fig. I. 1. *Schéma explicatif du diamagnétisme et la variation des grandeurs magnétiques (évolution de l'aimantation).*

II. 1. 2. Paramagnétisme

Le phénomène le plus attractif dans un matériau paramagnétique est le moment magnétique total nul, quoique ces atomes possèdent des moments magnétiques individuels non nuls (Fig. I. 2). Les moments magnétiques individuels des atomes s'ajoutent de manière à ce que la somme totale des moments soit nulle. Quand on applique un champ magnétique extérieur sur un matériau paramagnétique, les moments magnétiques des atomes s'ordonnent suivant la même direction du champ magnétique extérieur (c'est-à- dire $\chi_m > 0$). Les moments magnétiques élémentaires dans les matériaux paramagnétiques s'orientent indépendamment les uns des autres. [6, 7, 9, 11]

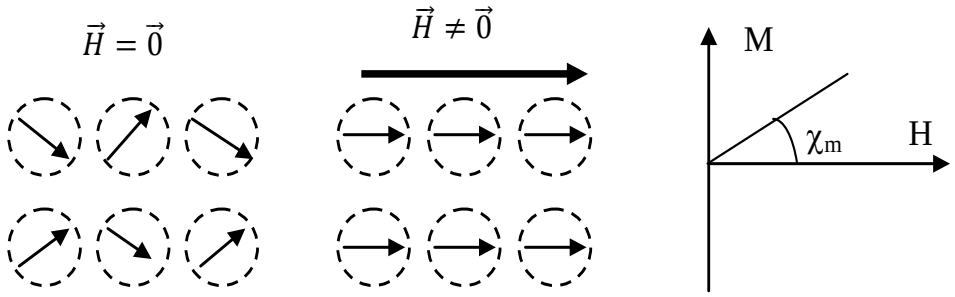


Fig. I. 2. *Schéma explicatif du paramagnétisme et la variation des grandeurs magnétiques (évolution de l'aimantation).*

II. 1. 3. Ferromagnétisme

Les matériaux ferromagnétiques présentent une aimantation rémanente en l'absence d'un champ magnétique extérieur. Dans un matériau ferromagnétique, l'aimantation totale d'un échantillon est non nulle. Cette caractéristique donne des propriétés importantes trouvant dans nombreux domaines de recherche et dans des applications industrielles à savoir la protection radar, le stockage des informations et le matériel de télécommunications. La compréhension des différents mécanismes de retournement de l'aimantation dans un matériau magnétique admet d'améliorer les capacités de stockage des supports d'enregistrement et les vitesses de lecture et d'écriture des données. L'optimisation de la dimension et de la forme des pièces magnétiques permet la miniaturisation des téléphones mobiles, l'amélioration de l'efficacité des radars et le rendement des transformateurs. Le matériau ferromagnétique, au-delà d'une certaine température appelée température de Curie (Tc) (la température pour laquelle l'aimantation macroscopique d'un matériau ferromagnétique devient nulle [12, 13]), il se comporte comme un matériau paramagnétique. Notons que la température de Curie pour le Ni est égale à 627 K [7]. Dans un matériau ferromagnétique, chaque moment magnétique atomique tend à s'aligner avec le moment magnétique atomique voisin. L'interaction entre les moments magnétiques provoque de proche en proche un ordre à longue distance (Fig. I. 3). L'interaction entre moments magnétiques voisins crée un phénomène d'interaction d'échange d'Heisenberg [8, 14]. Dans cette catégorie de matériau, seuls le Ni, Co et Fe conservent leurs propriétés ferromagnétiques à température ambiante lorsqu'ils sont purs. Ces matériaux présentent une couche de 3d partiellement remplie [15]. Nous pouvons élaborer plusieurs alliages ferromagnétiques à partir de ces trois matériaux, selon l'application visée.

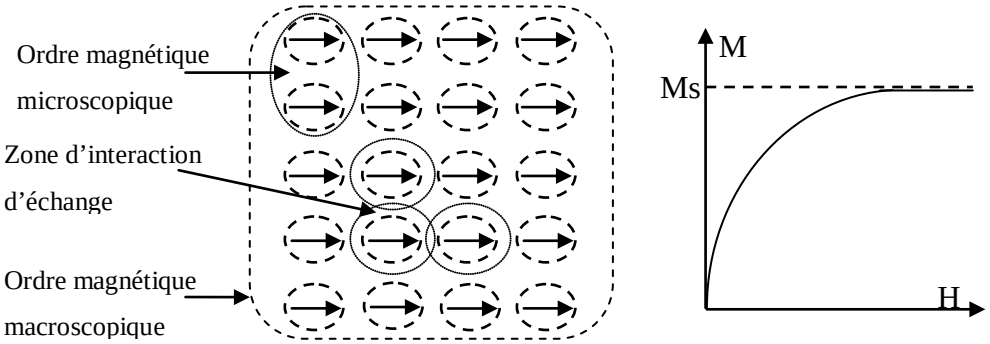


Fig. I. 3. *Effet de l'interaction d'échange à courte portée sur l'ordre magnétique macroscopique et la variation des grandeurs magnétiques (évolution de l'aimantation).*

II. 2. Cycle d'hystérésis

Du point de vue magnétique, l'étude de l'évolution de l'aimantation en fonction du champ magnétique extérieur appliqué est très importante pour caractériser un matériau magnétique. Si on considère un monocristal ferromagnétique, en l'absence d'une excitation du champ magnétique extérieur, il présente un ensemble d'orientations des domaines totalement nul (Fig. I. 4).

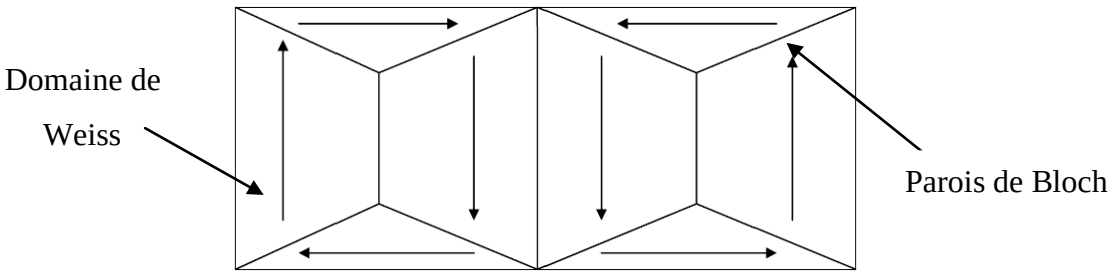


Fig. I. 4. *Orientations des domaines magnétiques d'un monocristal ferromagnétique en l'absence du champ magnétique extérieur.*

Lors de l'application d'un champ magnétique sur un matériau ferromagnétique, les parois se déplacent sous l'influence de la force du champ appliqué. Si on applique un champ magnétique extérieur très grand, le domaine favorablement orienté pour occuper tout le volume du matériau. Cette occupation est connue sous le nom de l'aimantation à saturation (Ms). La courbe qui relie l'aimantation (M) au champ magnétique extérieur (H) s'appelle le cycle d'hystérésis du matériau ou bien la courbe d'aimantation (Fig. I. 5). Dans le phénomène d'hystérésis, l'augmentation du champ magnétique appliqué à partir de zéro provoque le déplacement des parois de Bloch (une paroi de Bloch est une paroi séparant deux domaines de Weiss), ainsi entraînant une aimantation de l'échantillon. A mesure que le champ magnétique appliqué augmente jusqu'a atteindre une valeur maximale (H est suffisamment intense, Hs), l'échantillon est occupé par un seul domaine. Le paramètre magnétique correspondant à ce phénomène est appelé l'aimantation à saturation. D'autre part, la diminution du champ magnétique extérieur est suivie par le déplacement des parois de nouveau. En raison des défauts cristallins dans l'échantillon, le mouvement des parois est irréversible, ainsi le mouvement de retour n'est pas le même. Un autre paramètre apparaît lorsque le champ magnétique est nul, ce paramètre s'appelle aimantation rémanente (Mr). Une aimantation rémanente nulle correspond à un champ magnétique qui s'appelle le champ coercitif (Hc). En effet, le champ coercitif est le champ extérieur nécessaire qu'on applique pour réduire l'aimantation de la rémanence à zéro [16]. A partir d'un cycle d'hystérésis; on peut

déterminer les grandeurs magnétiques suivantes : Ms, Mr, facteur squarness S (Mr/Ms), Hs et Hc. Ce dernier représente aussi, le champ seuil minimal qui peut inverser le sens de l'aimantation d'un matériau ferromagnétique. La microstructure des échantillons influe de façon directe sur la coercivité d'un matériau magnétique. La coercivité augmente avec l'augmentation de la teneur en impuretés. Elle diminue par un recuit et par refroidissement lent. L'aire de la courbe d'aimantation représente la densité d'énergie nécessaire pour réorienter les moments magnétiques des domaines, au cours d'un cycle complet de variation de champ magnétique extérieur appliqué [17].

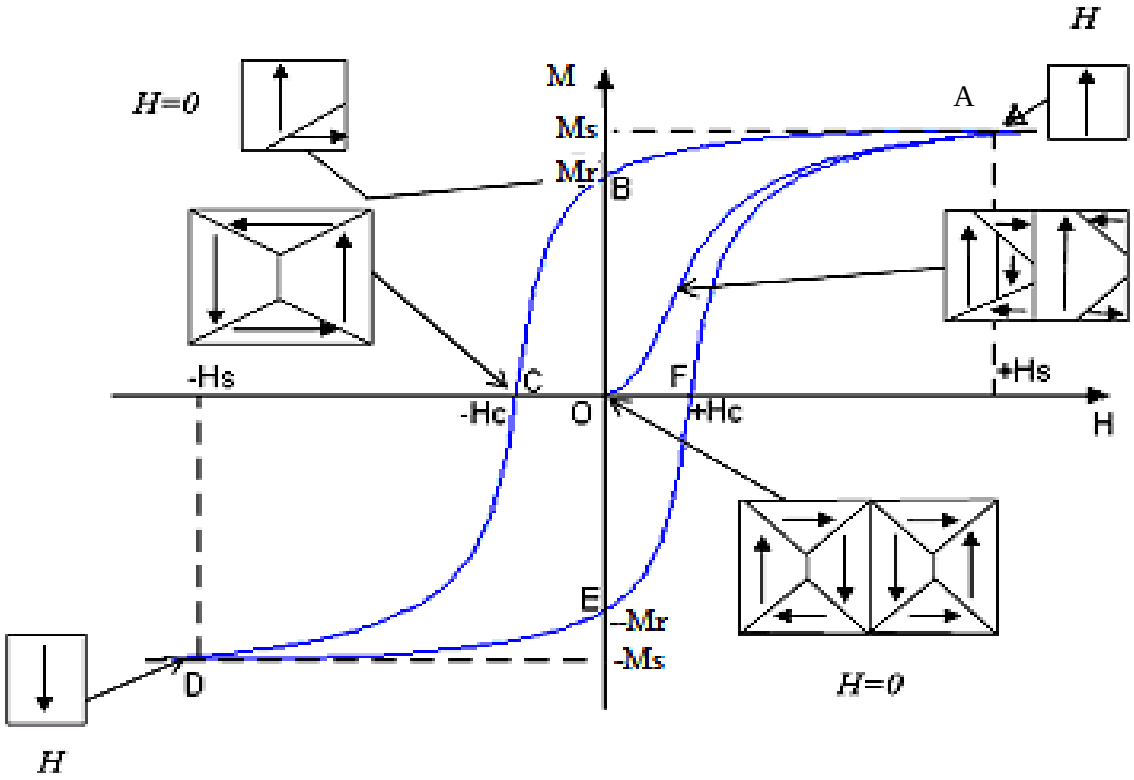


Fig. I. 5. *Cycle d'hystérésis d'un matériau ferromagnétique en fonction d'un champ magnétique extérieur qui varie de +Hs à –Hs. [18]*

II. 3. Les Anisotropies magnétiques

Les propriétés magnétiques dépendent de la direction selon laquelle on les observe. Ceci se traduit par un terme anisotrope dans l'énergie totale du système. L'anisotropie dans un matériau magnétique peut avoir différentes origines. On citera ici deux types d'anisotropie : l'anisotropie de forme et l'anisotropie magnétocristalline.

II. 3. 1. Anisotropie de forme

L'anisotropie de forme d'un matériau ferromagnétique est l'une des anisotropies les plus importantes dans le magnétisme des films magnétiques. Elle représente l'influence de la forme du matériau ferromagnétique sur la direction de son aimantation [1, 2]. On peut définir un champ démagnétisant (H_d) qui s'oppose à l'aimantation du matériau à partir des dipôles électriques et le champ électrique dépolarisant. Le champ démagnétisant est donné sous forme d'un tenseur à trois dimensions. Le champ démagnétisant peut jouer un rôle très important dans l'aimantation des matériaux ferromagnétiques, spécialement dans le cas des couches minces magnétiques. Dans le cas des couches minces, le champ démagnétisant présente une composante perpendiculaire au plan de la couche mince non nulle, tandis que celles contenues dans le plan de la couche mince sont nulles. Ainsi, l'aimantation s'oriente préférentiellement dans le plan du film (Fig. I. 6) [19]. Lors de la fabrication d'un matériau ferromagnétique, il faut prendre en compte sa forme géométrique dans le but d'obtenir une aimantation orientée d'une manière particulière.

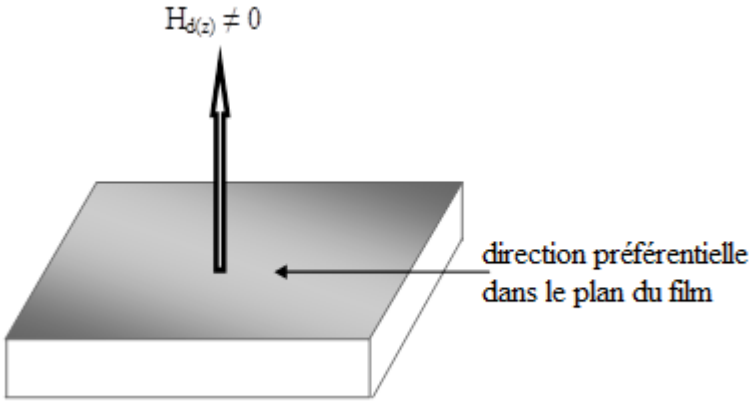


Fig. I. 6. *Influence de la forme d'un matériau f érromagnétique sur l'orientation de l'aimantation.*

II. 3. 2. Anisotropie magnétocristalline

Dans un matériau ferromagnétique, le rapport existant entre le réseau cristallin et l'aimantation magnétique représente l'anisotropie magnétocristalline [1, 2, 12]. Les recherches antécédentes dans le domaine des couches magnétiques montrent qu'il est plus difficile d'aimanter un échantillon monocristallin dans certaines directions cristallographiques que dans d'autres. Le terme d'énergie libre de l'anisotropie magnétocristalline dépend de l'orientation de l'aimantation par rapport aux axes cristallins de la couche mince. La symétrie du réseau cristallin est indispensable dans la formule de l'énergie d'anisotropie

magnétocristalline. Ainsi, l'énergie d'anisotropie doit être invariante par transformation de $\overrightarrow{\boldsymbol{M}}$ en $-\overrightarrow{\boldsymbol{M}}$ (seuls les termes d'ordre pair sont autorisés). Le champ d'anisotropie magnétocristalline (H_a) est le champ nécessaire pour renverser l'aimantation dans le cristal de la direction facile aimantation à la direction de difficile aimantation. L'énergie de l'anisotropie magnétique peut être importante pour certains ferromagnétiques tels que le Ni (Fig. I. 7). La valeur nécessaire du champ extérieur appliqué pour atteindre la saturation est différente selon la direction dans laquelle a été appliqué (parallèle ou perpendiculaire) à l'axe de facile aimantation. Pour les cristaux cubiques comme le Ni, l'énergie d'anisotropie magnetocristalline cubique s'écrit:

$$E_a = K_1(\alpha_1{}^2\alpha_2{}^2 + \alpha_2{}^2\alpha_3{}^2 + \alpha_3{}^2\alpha_1{}^2) + K_2\,\alpha_1{}^2\alpha_2{}^2\alpha_3{}^2 \qquad \text{(I. 2)}$$

Dans ce cas, le premier terme non nul est d'ordre 4. α_1, α_2, α_3 : les cosinus directeurs de l'aimantation par rapport aux axes cristallins d'un cristal cubique et les termes d'ordre 2 disparaissent car $\alpha_1{}^2 + \alpha_2{}^2 + \alpha_3{}^2 = 1$, K_1 et K_2 sont les constantes d'anisotropie du premier ordre et du deuxième ordre, respectivement. En l'absence du champ magnétique (champ nul), à température ambiante, l'aimantation se trouve dans une direction de facile aimantation qui correspond au minimum d'énergie, dans chaque domaine. Pour le Ni ; $K_1 = -5.48\ 10^4$ erg.cm^{-3} et $K_2 = -2.47\ 10^4$ erg.cm^{-3}. La première constante d'anisotropie de Ni est négative, donc l'axe de facile aimantation de Ni (de la structure cfc) est suivant la direction < 111 >, alors que la direction < 100 > est la direction difficile.

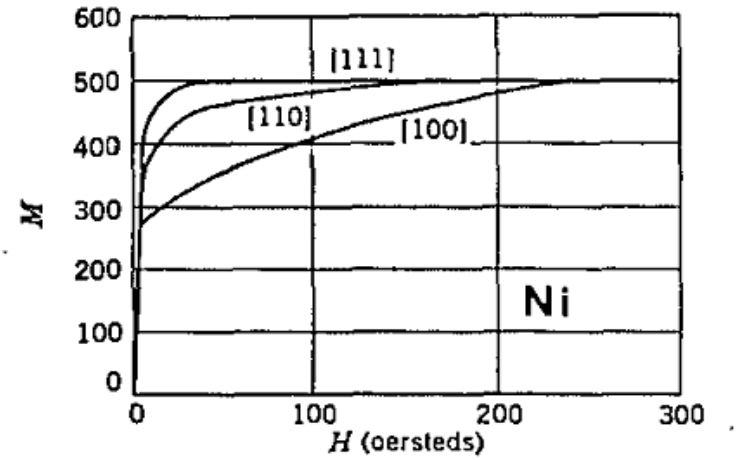


Fig. I. 7. *Courbes d'aimantation du Ni massif dans différentes directions cristallographiques (d'après Morrish, 1965) [20].*

Un autre type d'anisotropie magnétocristalline est l'anisotropie uniaxiale. Dans ce cas, il y a un seul axe d'anisotropie (direction facile ou difficile). C'est le cas du cobalt en structure hexagonale. L'énergie d'anisotropie magnétocristalline uniaxe est donnée par :

$$E_k = K_u \sin^2\theta \qquad \text{(I. 3)}$$

où K_u est la constante d'anisotropie magnétocristalline uniaxe et θ l'angle entre M et l'axe z (axe d'anisotropie).

Chacune des énergies citées précédemment entre en jeu dans l'établissement des orientations possibles de l'aimantation dans un matériau, dans l'objectif de minimiser le bilan énergétique dépensée.

II. 4. Domaines magnétiques et parois de Bloch

Afin d'expliquer le phénomène d'hystérésis, Pierre Weiss considère un matériau ferromagnétique comme un seul corps constitué de plusieurs domaines, ensembles toujours aimantés à saturation. D'un domaine à un autre, la direction des moments (l'aimantation spontanée locale) change de sorte que le moment magnétique total du matériau doit être toujours nul [21]. Les domaines d'un corps ferromagnétique sont séparés par plusieurs plans atomiques. Ces plans atomiques constituent des parois appelées les parois de Bloch. Les parois de Bloch présentent des aimantations qui changent progressivement des directions et des normes d'un domaine à l'autre (Fig. I. 8 a et b) [18]. Cette structure appelée « structure en domaine » prend spontanément naissance pour diminuer l'énergie d'excitation magnétique. Les domaines possèdent des aimantations dans le même sens que le champ extérieur se rapprochent l'un de l'autre pour déterminer un autre domaine plus grand. Les parois de Bloch se déplacent jusqu'aux limites de l'échantillon. La figure I. 8. c représente le lien entre la courbe de première aimantation et l'existence des domaines et des parois. La courbe de première aimantation d'un corps ferromagnétique est constituée de trois zones ; (i) la première zone (1) présente des domaines de Weiss desquels la direction de l'aimantation est dans le même sens que $\overrightarrow{H}$. Ces domaines grossissent de manière réversible pour former d'autres domaines. (ii) La deuxième région (2) ce grossissement devient irréversible et le matériau conservera la trace de l'application de $\overrightarrow{H}$. (iii) Dans la troisième région (3), toutes les aimantations des domaines sont alignées globalement dans le même sens que $\overrightarrow{H}$.

Dans un corps magnétique, l'arrangement des domaines n'est pas aléatoire. En effet, chaque corps cherche de minimiser l'énergie magnétique dépensée qui dépend de l'interaction des moments avec l'organisation de ses domaines magnétiques. Notons que, si les dimensions

d'un corps ferromagnétique sont de même ordre de paroi de Bloch, l'existence de celle-ci n'est énergétiquement plus favorable, et le matériau restera saturé même sous champ extérieur nul. Il devient monodomaine [3, 13, 14].

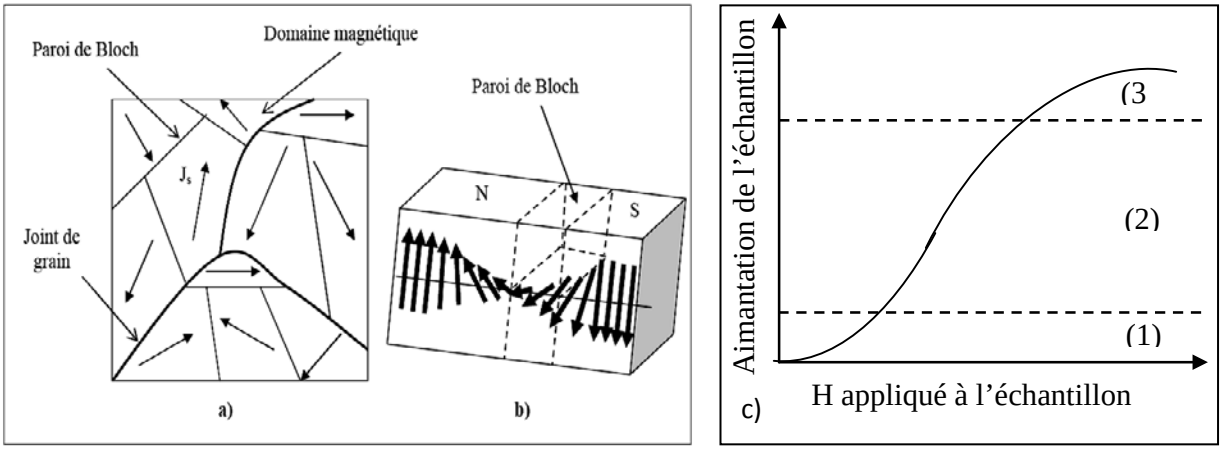


Fig. I. 8. *(a) Domaines magnétiques, (b) changement d'orientation des moments magnétiques à travers une paroi de Bloch et (c) Courbe de première aimantation d'un corps ferromagnétique.*

II. 5. Relation topographie-ferromagnétisme

Dans le cas des films minces, l'effet de la topographie de surface sur les propriétés magnétiques est un facteur important, ainsi l'effet de la topographie n'est pas un problème récent [22, 23]. Ce facteur attire la curiosité des scientifiques, ainsi qu'il fait l'objet d'un grand nombre de travaux de recherche (théoriques et expérimentaux). Certains travaux montrent une corrélation claire entre la topographie et le comportement des paramètres magnétiques (Hc, Ms et Hs) des couches minces et en donnent une approche qualitative [24, 25]. A travers des précédents travaux expérimentaux, nous avons trois facteurs importants qui peuvent influer sur le comportement ferromagnétique des films minces. Le premier facteur est la rugosité de la surface. Elle augmente facilement la teneur en impureté (l'oxydation) et la perturbation des processus de retournement d'aimantation [25, 26]. Le deuxième facteur est la distribution et la taille des grains qui influent l'interaction magnétique granulaire [27]. Le troisième facteur est la forme et la taille des grains qui peut modifier l'anisotropie magnétique de surface [28]. Quelques modèles présentent directement la dépendance entre les paramètres topographiques (taille de grains, rugosité) et le comportement ferromagnétique.

II. 5. 1. Le modèle de Kittel

Le modèle de Kittel présente une relation d'inversement proportionnel entre le champ coercitif et la taille moyenne des grains D. La taille moyenne des grains D est considérée comme sphérique et monodomaine (une seule orientation magnétique) [29]:

$$H_C = H_0\left(1 - \frac{D}{D_0}\right) \quad \text{(I. 4)}$$

Avec H_0 et D_0 deux constantes propres au matériau.

II. 5. 2. Le modèle de Néel

L. Néel [22] a montré les limites du modèle de Kittel. Il a donné une relation entre le champ coercitif et la taille moyenne des grains (grain multidomaines) et a trouvé une relation du type :

$$H_c \propto D^{-\frac{2}{3}} \quad \text{(I. 5)}$$

J.C Lloyd et R.S. Smith [23] développent les travaux de Néel et montrent que la rugosité est un autre facteur qui peut influer sur la coercivité. J. C Lloyd et R. S. Smith proposent une relation entre le champ coercitif et l'épaisseur (t) de la couche mince :

$$H_c(t) = A.t^{-n} \quad \text{(I. 6)}$$

A partir de cette formule, on peut démontrer une relation entre Hc et la rugosité :

$$\Delta H_c = \left(\frac{n.H_c}{t}\right).\Delta t \quad \text{(I. 7)}$$

On peut assimiler Δt à la rugosité (σ) car il s'agit d'une fluctuation de l'épaisseur, d'où :

$$\Delta H_c \propto \sigma \quad \text{(I. 8)}$$

II. 5. 3. Le formalisme de A. Khapikov

Le modèle Khapikov exprime l'effet de la topographie (rugosité) sur le processus de retournement de l'aimantation [30]. Si le retournement de l'aimantation se fait par rotation cohérente des spins, on a :

$$\frac{H_C^{SR}\, M_s}{\left(1-\sqrt{1-\frac{M_r}{M_S}}\right)} \approx \text{constante} \quad \text{(I. 9)}$$

H_C^{SR}, le champ coercitif, M_s l'aimantation à saturation et M_r l'aimantation rémanente. Préférentiellement, pour minimiser ou bien limiter les pertes magnétiques par hystérésis, il est nécessaire de réduire au maximum la rugosité.

II. 5. 4. Le modèle de Hoffmann

Tous les modèles confirment l'existence d'une relation entre les paramètres ferromagnétiques (Hc, Ms…) et les paramètres structuraux (D, t…). D'autre part, une étude de l'influence de la microstructure sur le champ coercitif dans les couches minces est très importante. Généralement, le champ coercitif (Hc) contient trois contributions (composantes); le champ de nucléation des domaines de renversement (H_N), le champ de croissance des domaines (H_G) et la troisième contribution qui est la plus importante, correspond au déplacement des parois magnétiques (H_W).

Le modèle de Hoffmann [31-34] est basé sur les calculs du modèle de Herzer [35]. Ce dernier considère un polycristal parfait constitué d'un nombre fini de cristallites parfaitement couplées. Le modèle de Herzer s'applique uniquement aux matériaux doux isotropes (i.e. dépourvu d'anisotropie uniaxiale K_u). Alors que le modèle de Hoffmann s'applique spécialement dans le cas des couches minces. Il prend en compte l'anisotropie uniaxiale K_u (définie dans Eq. I. 3) qui est liée directement au champ d'anisotropie induit H_k par la formule suivante :

$$H_k = \frac{2K_u}{M_S} \qquad \text{(I. 10)}$$

Hoffmann présente l'expression de la contribution du champ magnétique H_w (dans notre cas H_w = Hc) par la formule suivante :

$$H_w = \frac{\beta}{L_{180^\circ}} \frac{\sqrt{2}}{\pi} \frac{1}{\sqrt[4]{A}} \frac{S\sqrt{D}\sqrt[4]{K_u}}{M_s} \qquad \text{(I. 11)}$$

Avec β est un pré-facteur proche de l'unité, L_{180° est la longueur de couplage parallèle à la paroi, D diamètre des cristallites, A est la constante d'échange et Ms l'aimantation à saturation.

Le terme S est décri la relation à la microstructure (facteur de structure) et donné par :

$$S = \frac{K_1 \times D}{\sqrt{n}} \qquad \text{(I. 12)}$$

n = t / D pour les films d'épaisseur t et dont le diamètre des cristallites D est inférieur à d.

À partir de ces modèles, on conclut qu'à chaque fois que l'on présente un cycle d'hystérésis, on doit préciser dans quelles conditions celui-ci a été obtenu. En effet, si un échantillon possède une anisotropie magnétique, la forme du cycle d'hystérésis peut être fortement modifiée avec la direction d'application du champ magnétique externe. Les valeurs du champ coercitif mesurées à partir des cycles d'hystérésis, nous permettent de classer les matériaux ferromagnétiques.

Nous montrons, dans le tableau. I. 1 et la figure. I. 9, les différentes variations de Hc avec la taille moyenne des grains D et la largeur des parois de Bloch δ_B pour le cas des matériaux massifs et des couches minces d'épaisseur t. A partir du tableau. I. 1, on remarque que Hc varie en 1/D et D^6 pour le cas des matériaux massifs et en D^2 et $D^{3/2}$ pour le cas des couches minces.

Table. I. 1. *Résumé des tendances entre le champ coercitif Hc et la taille des grains D.*

<table>
<tr><td colspan="2">Matériaux massifs</td><td colspan="2">Couches minces</td></tr>
<tr><td>$\delta_B \ll D$</td><td>$\delta_B \gg D$</td><td colspan="2">$\delta_B \sim D$</td></tr>
<tr><td rowspan="2">$H_c \propto \frac{1}{D}$</td><td rowspan="2">$H_c \propto D^6$</td><td>D < t</td><td>D = t</td></tr>
<tr><td>$H_c \propto \frac{D^2}{\sqrt{t}}$</td><td>$H_c \propto D^{\frac{3}{2}}$</td></tr>
</table>

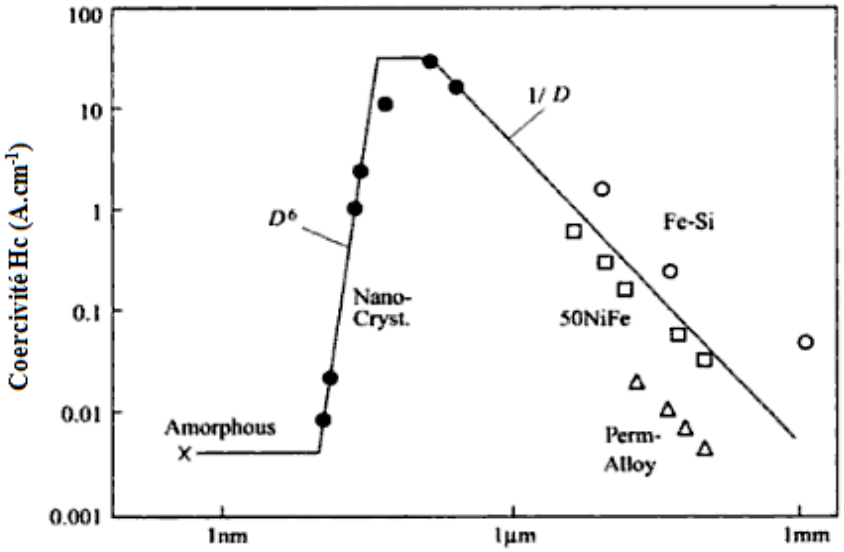


Fig. I. 9. *Illustration des tendances entre le champ coercitif Hc et la taille des grains D [35].*

II. 6. Classification des matériaux ferromagnétiques

Parmi les propriétés intrinsèques d'un matériau magnétique, nous avons l'aimantation spontanée, la température d'ordre magnétique et l'anisotropie magnétique. La recherche d'une forte aimantation spontanée tend à favoriser les matériaux ferromagnétiques à base de Ni ou Fe. Une autre propriété essentielle est la coercivité. Selon la forme du cycle d'hystérésis et à partir de la valeur du champ coercitif, on distingue trois grands types de matériau magnétique (doux, durs et matériaux magnétiques supports de l'enregistrement).

II. 6. 1. Matériaux durs

Les matériaux ferromagnétiques durs sont des matériaux qui présentent un large cycle d'hystérésis (Fig. I. 10. a). Ainsi, un champ coercitif élevé (généralement supérieur à 125Oe) [35] et une induction rémanente élevée. Une autre caractéristique des matériaux durs est la faible perméabilité (sont difficiles à aimanter et désaimanter). Dans un matériau ferromagnétique dur, on cherche à bloquer la réorientation des moments magnétiques dans les domaines de Weiss, ainsi que le déplacement des parois de Bloch. Pour fabriquer les aimants permanents, on utilise habituellement les aciers à l'état trompé. L'une des caractéristiques les plus importantes d'un aimant permanent est la forte valeur de l'anisotropie magnétique qui est utile à la persistance d'une partie importante de l'aimantation spontanée et à la forte coercivité. Les matériaux magnétiques durs font l'objet de plusieurs applications technologiques, comme les noyaux des haut-parleurs, les moteurs électriques de faible puissance, les lentilles magnétiques pour tube cathodique,…etc. [17, 37]. Plusieurs alliages magnétiques durs ont été utilisés. Parmi ces alliages on cite Pt-Co, les ferrites et Sm-Co… etc [18].

II. 6. 2. Matériaux doux

Les matériaux ferromagnétiques doux sont des matériaux qui peuvent être facilement aimantés et désaimantés (ont une très haute perméabilité). L'une des caractéristiques que présentent ces matériaux est la faible perte par hystérésis c'est-à-dire faible aire du cycle d'hystérésis (Fig. I. 10. b) [18]. D'autre part, ces matériaux montrent une aimantation à saturation Ms élevée et un faible champ coercitif (ne sont pas aimantés après l'annulation du champ magnétique extérieur appliqué). Dans ces matériaux, lorsqu'on applique un champ magnétique extérieur, les parois de Bloch doivent se déplacer et réorienter facilement sous l'action du champ magnétique appliqué. Les matériaux magnétiques doux présentent un champ coercitif faible (en général, Hc inférieur à 12.5 Oe dans les matériaux les plus performants [36], la perméabilité relative supérieure à 10^3 [38]). Le matériau magnétique présente la spécificité de réagir facilement à des faibles changements du champ inducteur sans subir d'échauffement. Les matériaux doux sont utilisés dans plusieurs applications technologiques comme les noyaux des transformateurs, des moteurs et des générateurs, les écrans magnétiques,…etc. [17, 18, 39]. Le fer pur et les alliages Fe (FeNi, FeSi, FeAl….) sont parmi les matériaux magnétiques doux les plus utilisés [40].

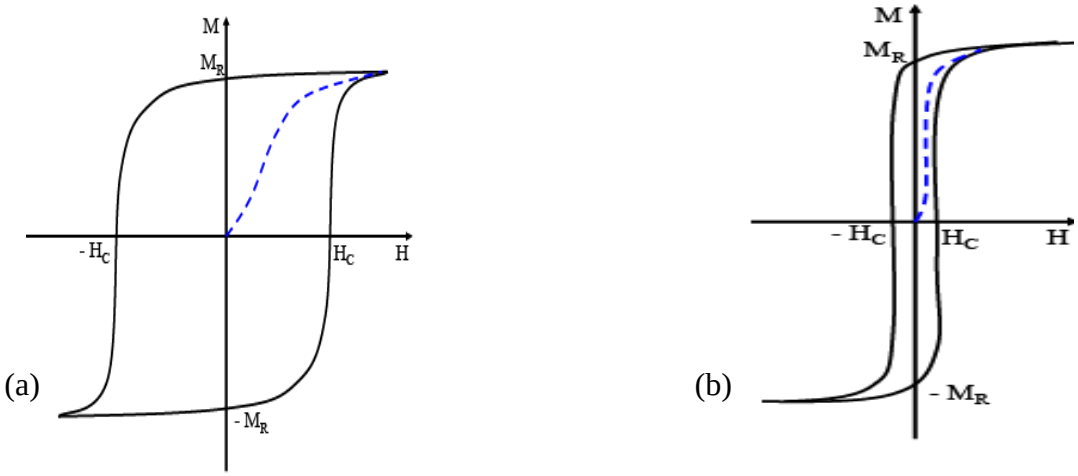


Fig. I. 10. *Cycles d'hystérésis typiques pour : (a) matériau magnétique dur et (b) matériau magnétique doux.*

II. 6. 3. Matériaux supports de l'enregistrement

Les matériaux magnétiques supports de l'information sont des matériaux qui présentent un champ coercitif, Hc, variant entre 250 et 2500 Oe [36]. Parmi les applications de ces matériaux magnétiques, nous avons l'enregistrement audio, vidéo et le stockage sur ordinateur (disquettes et disques durs). Généralement, les matériaux utilisés pour une application d'un milieu magnétique nécessitent une aimantation rémanente suffisante, une coercivité relativement grande et une inversion rapide de l'aimantation [36]. Dans les disques à films minces, les alliages à base de Co déposés en couches minces sont parmi les alliages les plus utilisés à cause de très hautes densités d'enregistrement dans le mode longitudinal [15]. Pour augmenter les densités d'enregistrements, on peut utiliser des films à base d'alliages terres rares-métaux de transition à forte coercivité permettant une réduction de la dimension des bits d'information et aussi on peut utiliser le mode d'enregistrement perpendiculaire. Par ailleurs, une recherche à long terme existe qui est encore strictement du domaine de la physique fondamentale en vue de développer l'enregistrement magnétique à l'échelle nanométrique.

III. Propriétés physiques fondamentales du Ni massif

Le nickel est un matériau assez peu répandu dans l'écorce terrestre. On le trouve dans les météorites ou sous forme combinée essentiellement au fer. Afin d'étudier le nickel en couches minces, il est indispensable de connaître ses paramètres physiques à l'état massif. Les

principales caractéristiques du nickel qui nous intéressent sont résumées dans le tableau ci-dessous (Table. I. 2). A température ambiante, le Ni est caractérisé par une perméabilité égale à 125 10^{-6} H/m, une susceptibilité égale à 110, des constantes d'anisotropies (K_1= -5.48 10^4 erg/cm^3, K_2= -2.47 10^4 erg/cm^3), le moment magnétique en magnéton de Bohr qui égal à 0.614 et une aimantation à saturation Ms= 485 emu/cm^3. [6, 16]

Table. I. 2. *Quelques caractéristiques de Ni.*

Numéro atomique	28
Masse atomique (g/mol)	58.7
Structure électronique	[Ar] $3d^8 4s^2$
Paramètre de maille à 300 K	3.524 Å
Densité volumique	9.140 10^{22} atomes/cm^3
Epaisseur en Å équivalente à 10^{15} atomes/cm^3	1.094
Structure cristallographique	Cubique face centrée (cfc)
Température de fusion (C°)	1453
Température d'évaporation (C°)	2732
Résistivité électrique à 20 C° (µΩ.cm)	7.8
Etat magnétique	Ferromagnétique
Température de Curie (C°)	350
Aimantation à saturation M_s (emu/cm^3)	485

IV. Les différents travaux sur le Ni en couches minces

Plusieurs travaux de recherche ont été publiés sur les couches ferromagnétiques à base de Ni. Généralement, tous les travaux ont démontré que les propriétés structurales, électriques et magnétiques des couches minces peuvent être améliorées par le choix de quelques paramètres expérimentaux, tels que les conditions opératoires, la gamme d'épaisseurs et le type du substrat…. Ces paramètres peuvent influencer la qualité des résultats structuraux, électriques et magnétiques. Dans ce qui suit, un récapitulatif des différents travaux publiés dans notre laboratoire sur les couches minces de Ni est présenté.

C. Nacereddine et al. [42] ont élaboré et étudié les propriétés structurales, électriques et magnétiques [43] des films de Ni sur Cu et sur verre, déposés par évaporation sous vide,

dans une gamme d'épaisseurs de 31 à 163 nm. Aussi, B. Ghebouli et al. [44] ont étudié l'influence des substrats de verre, Si(100), Si (111) et mica sur les propriétés structurales, électriques et magnétiques [45] des couches minces de Ni élaborées par pulvérisation DC. L'épaisseur de la couche de Ni dans cette étude varie entre 47 et 317 nm. D'autres travaux ont été trouvés à littérature sur les couches minces de Ni préparées par les différentes méthodes d'élaboration et déposées sur différents substrats. G. Zou et al. [46] ont élaboré des couches minces de Ni par pulvérisation magnétron (DC) sur des substrats de Al_2O_3 et de SiO_2/Si (100). Les auteurs ont étudié les propriétés structurales et magnétiques dans une gamme d'épaisseurs de Ni qui varie entre 80 et 280 nm. Z. Yang et al. [47] ont étudié les propriétés structurales et électriques des couches minces de Ni déposées par pulvérisation cathodique sur les substrats de polyaniline, dans une gamme d'épaisseurs allant de 45 à 240 nm. Aussi, J. D. Lee et al. [48] ont élaboré des couches minces nanocristallines de Ni préparées par électrodéposition sur les substrats de n-Si (111). Les auteurs ont étudié les propriétés structurales par DRX et les propriétés magnétiques par VSM.

Dans un travail précédent [41], nous avons étudié l'effet des substrats (verre et Si), l'épaisseur (28 à 200 nm) de Ni et la vitesse de dépôt (13 et 22 nm/min) sur les propriétés structurales et électriques des couches minces de Ni, déposées par évaporation sous vide. Dans cette étude tous les échantillons sont polycristallins et croissent suivant la texture <111>. Le paramètre de maille de la série Ni/Si ont plus de contrainte que ceux de Ni/verre. La taille des grains de Ni/verre, pour 13 nm/min, augmente de façon monotone avec t_{Ni} (54 à 140 Å) et est inférieure à ceux de Ni/Si. D'une part pour 22 nm/min, ont un D constant pour les petites t_{Ni} avec D dans le Ni/verre plus grand de que dans le Ni/Si. Les échantillons de Ni/verre déposés à 13 nm/min sont caractérisés par une résistivité électrique plus élevée que ceux déposés à 22 nm/min. Pour la série de Ni/Si, le ρ est pratiquement constante avec le t_{Ni} mais diminue avec l'augmentation de D, indiquant la dominance du mécanisme de diffusion aux joints de grains plutôt que le mécanisme de diffusion par la surface. Pour les échantillons de Ni/verre et de Ni/Si déposés à 13 nm/min, la ρ a une variation plus complexe en fonction de l'épaisseur et de la vitesse de dépôt.

V. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons effectué un rappel sur le magnétisme d'une façon générale. Ce rappel a pour objectif de donner les notions nécessaires pour comprendre le lien entre la les caractéristiques structurales (rugosité, épaisseur et taille moyenne des grains) des couches minces et le ferromagnétisme. Il ressort de cette étude que la taille moyenne des grains et l'épaisseur perturbent et modifient les caractéristiques ferromagnétiques des couches minces. En effet, le modèle de H. Hoffmann montre que la taille moyenne des grains des couches minces a un impact sur l'évolution du comportement du champ coercitif. Le modèle de Néel rend compte de l'évolution de la coercivité des couches minces ferromagnétiques avec leurs épaisseurs.

L'étude des propriétés physiques de Ni constitue l'objectif principal de cette thèse. Pour réaliser cet objectif, nous passons par l'élaboration des couches minces de Ni et des bicouches Ni/Cu puis par les mesures des caractéristiques structurales (épaisseur, taille moyenne des grains…), électriques (résistance carrée et résistivité) et magnétiques (champ coercitif, facteur squarness et champ de saturation). Les mesures de ces caractéristiques nécessitent l'utilisation des techniques expérimentales. Dans le chapitre suivant, nous avons exposé les méthodes d'élaboration, spécialement l'évaporation sous vide, et les principes de fonctionnement des différentes techniques de caractérisation utilisées (RBS, DRX, MEB, quatre pointes, VSM et Kerr).

Références bibliographiques

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

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

[3] C. C. Tannoudji, B. Diu, F. Laloë, *Mécanique Quantique, volume* I, Hermann, Paris, 1992.

[4] N. W. Ashcroft, N. D. Mermin, *Solid State Physics*, Saunders College Publishing. 1976.

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

[6] C. Kittel, *Physique de l'état Solide*, Dunod, Paris (1983).

[7] K. H. J. Buschow, F. R. de Boer, *Physics of Magnetism and Magnetic Materials*, 2004 Kluwer Academic Publishers New York, Boston, Dordrecht, London, Moscow.

[8] D. Jiles, *Introduction to magnetism and magnetic materials*, Chapman ans Hall, 1989.

[9] E. Du Tremolet De Lacheisserie, *Magnétisme*, Tome I: Fondements, Collection Grenoble Sciences, 1999.

[10] H. Breuer, *Atlas de la physique*, La Pochothèque, 1997.

[11] L. Thourel, *Dispositifs à ferrites pour micro-ondes*, Paris, Masson, 1969.

[12] G. Courderchon, *Alliages magnétiques doux,Techniques de l'ingénieur*, vol. M350, 1998.

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

[14] E. Du Tremolet De Lacheisserie, *Magnétisme, Volume 2, Matériaux et applications*, Grenoble: Presses universitaires de Grenoble, 1999.

[15] D. Givord, *Matériaux à propriétés spécifique: les Matériaux magnétiques*, Rapport du laboratoire Louis Néel, CNRS de Grenoble 2000.

[16] G. Bertotti, *Hysteresis in Magnetism*, Academic Press, 1998.

[17] J. P. Bailon et J. M. Dorlot, *Des Matériaux*, Presse Internationale Polytechnique, troisième édition, Canada, 2000.

[18] A. Miouat, thèse doctorat, Université de Batna, 1996.

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

[20] A. H. Morrish, *The Physical Principles of Magnetism*, John Wiley, New-York, 1965.

[21] M. Cyrot, J. P. Yonnet. *Magnétisme I-Fondements*. édition EDP Sciences, 2000.

[22] L. Néel, *Le journal de Physique et le Radium*, 17 (1956) 250.

[23] J. C. Llyod, R.S. Smith, Canadian J. Phys. 40 (1962) 454.

[24] J. Swerts, S. Vandezande, K. Temst, C. Van Haesendonck, Solid. State. Commun 131 (2004) 359–363.

[25] H. Nathani, S. Gubbala, R. D. K. Misra, Mater. Sci. Eng. B 121 (2005) 126–136.

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

[27] G. A. Jones, D. A. Srinivasan, P. J. Grundy, G. J. Keeler, J. Mat. Sci., 27 (1992) 6244.

[28] Z.T. Diao, K. Meguro, S. Tsunashima et M. Jimbo, Phys. Rev. B. 53 (13) (1996) 8227.

[29] J. Degauque, A. Lebouc, *Matériaux magnétiques doux*, laboratoire Louis Néel, CNRS de Grenoble 2000.

[30] A. Khapikov, L. Uspenskaia, J. Ebothé, S. Vilain, Phys. Rev.B.57 (23) (1998).14994.

[31] H. Hoffmann, J. Appl. Phys. 35 (1964)1790.

[32] H. Hoffmann, Phys. Status Solidi 33 (1969) 175.

[33] H. Hoffmann, IEEE Trans. Magn. 9, (1973) 17.

[34] H. Hoffmann and T. Fujii, J. Magn. Magn. Mater. 128 (1993) 395.

[35] G. Herzer. IEEE Trans. Mag., Vol. 26 No. 5, (1990) 1397-1402.

[36] A. Guittoum, thèse de doctorat, Université Ferhat Abbas Setif, 2008.

[37] A. Ivanyi, *Hysteresis models in electromagnetic computation*, Academia Kiado, Budapest, Hungary, 1997.

[38] J. Degauque, J. phys. IV, Colloque C, décembre 1992.

[39] P. Robert, *Matériaux de l'électrotechnique, Traité d'électricité*, Presse Polytechniques Romandes, Troisième édition, 1989.

[40] G. Lacroux, *Les Aimants Permanents*, Edition Technique et Documentation, Lavoisier, Paris, France, 1989.

[41] M. Hemmous, A. Layadi, A. Guittoum, A. Bourzami, A. Benabbas. Microelectronics. J. 39 (2008) 1545 – 154 9.

[42] C. Nacereddine, A. Layadi, A. Guittoum, S.-M. Cherif, T. Chauveau, D. Billet, J. Ben Youssef, A. Bourzami, M.-H. Bourahli. Mater. Sci. Eng. B 136 (2007) 197–202.

[43] S.-M. Chérif, A. Layadi, J. Ben Youssef, C. Nacereddine, Y. Roussigné. Physica B 387 (2007) 281–286.

[44] B. Ghebouli, A. Layadi, L. Kerkache, Eur. Phys. J. Ap 3 (1998) 35-39.

[45] A. Bourzami, B. Ghebouli, A. Kharmouche, A. Guittoum, A. Layadi, O. Lenoble, M. Piecuch. Ann. Chim. Sci. Mat. 30 (2) (2005) 207-2015.

[46] G. Zou, H. Qiu, Y. Zuo, H. Zong, J. He. Thin Solid Films 520 (2012) 6024 –6030.

[47] Z. Yang, H. Qiu, B. Hu, G. Zou. Vacuum 99 (2014) 192-195.

[48] J. D. Lee, H. S. Kim, S.Y. Jeong, K. H. Kim, J. J. Lee, J. E. Kim. Current. Appl. Phys. 10 (2010) 249–254.

Chapitre II

Méthodes d'élaboration et de caractérisation

I. Introduction

Les matériaux élaborés sous la forme de couches minces, bicouches et multicouches présentent des propriétés physico-chimiques différentes de celles des matériaux massifs. La nature chimique, la morphologie, la structure cristallographique et le magnétisme des couches minces sont des paramètres fortement liées aux conditions et aux méthodes d'élaboration. En effet, il est important d'optimiser ces paramètres expérimentaux afin d'expliquer les différents phénomènes qu'on pourra trouver. Notre travail est principalement motivé par l'étude de l'influence des paramètres expérimentaux (le substrat, l'épaisseur et la sous-couche de Cu) sur les propriétés structurales, électriques et magnétiques des couches Ni déposées. Dans un premier temps, nous rappellerons les différentes méthodes d'élaboration des couches minces que nous avons regroupées en trois catégories: (i) méthodes de dépôt en phase vapeur (PVD ; dépôt physique en phase vapeur et CVD ; dépôt chimique en phase vapeur), (ii) le procédé sol-gel et (iii) le procédé électrochimique. Ensuite, nous exposerons le dispositif expérimental de la technique de dépôt utilisé et aussi la procédure de nettoyage des substrats. Enfin, nous présenterons les techniques de caractérisation utilisées (RBS, DRX, MEB, quatre pointes, VSM et Kerr) des couches minces réalisées.

II. Méthodes d'élaboration des couches minces

II. 1. Techniques de dépôt en phase vapeur

L'une des particularités les plus importantes des couches minces est leur faible épaisseur (d'ordre micronique ou submicronique). Parmi les méthodes les plus utilisées pour la fabrication des couches minces, la méthode de dépôt en phase vapeur. Ces méthodes utilisent les produits en phase vapeur pour réaliser des couches minces. On peut classer ces méthodes en deux groupes ; les méthodes de dépôts physiques qui se basent sur un processus d'évaporation thermique, PVD, (dépôts physiques en phase vapeur) [1-4] et les méthodes qui se basent sur des réactions chimiques, CVD, (dépôts chimiques en phase vapeur) [5-9].

Pour bien comprendre ces méthodes, nous détaillons dans la section suivante ces différentes méthodes de dépôt utilisées pour la fabrication des couches minces.

II. 1. 1. Dépôts physiques en phase vapeur

II. 1. 1. 1. Dépôt par évaporation

Le dépôt par évaporation basé sur trois espèces, les molécules, les atomes et les ions, selon la source d'évaporation utilisée. Ils sont transportés vers un substrat à travers un milieu passif (vide ou basse pression) ou actif (plasma, gaz réactif, liquide…). Cette méthode de dépôt permet de créer des vapeurs à partir du matériau de départ qui se condensent sur le substrat et produisent une couche mince. En effet, cette méthode de dépôt permet d'évaporer une longue gamme de matériaux, quand ils sont chauffés à des températures suffisamment élevées. Le mode du chauffage de l'évaporation change avec la variation de la méthode de dépôt utilisée ; chauffage résistif (évaporation par effet Joule) [10-13], chauffage par faisceau d'électrons (bombardement électronique) [12, 13] et chauffage par faisceau laser (évaporation par ablation laser, PLD) [12, 13].

II. 1. 1. 2. Dépôt par pulvérisation cathodique

La pulvérisation cathodique est une méthode de dépôt sous vide. Elle fonctionne à froid, en plasma luminescent, dans un gaz maintenu à pression réduite. A laide de cette méthode on peut déposer tous les types de matériaux sur tous types de substrats. Cette technique permet d'éjecter les atomes superficiels d'un matériau à déposer par des atomes ionisés d'un gaz inerte, et de transférer ces atomes éjectés sur le substrat pour fabriquer une couche mince [14]. La pulvérisation cathodique nécessite un vide entre 10^{-4} et 10^{-7} torr [13]. On introduit le gaz inerte à une pression qui varie entre 10^{-3} à 10^{-1} torr [14]. Le plasma est créé par l'application d'une tension électrique sur la cible, variant entre 500 et 5000 Volts [13]. Ce plasma forme un nuage (électrons et ions) luminescent (Fig. II. 4). Les électrons de ce nuage sont attirés par l'anode (substrat), et les ions positifs sont attirés par la cathode (cible) [14]. Il existe différents types de pulvérisation, tels que la pulvérisation de la diode DC, la radiofréquence et à magnétron….etc.

II. 1. 2. Dépôts chimiques en phase vapeur

Le dépôt de vapeur par voie chimique CVD est une méthode très utilisée, ceci revient à la bonne qualité structurale des films élaborés [15, 16]. Les différents constituants de la phase gazeuse de ce dépôt sont transportés par un courant gazeux. Les constituants réagissent

chimiquement entre eux au voisinage de la surface ou sur le substrat sous l'effet de la chaleur, d'un rayonnement. Les matériaux qui peuvent être déposés par cette technique sont les alliages, siliciures, couches minces isolantes, diélectriques ou semi-conductrices. Les épaisseurs des couches minces obtenues par CVD peuvent être de l'ordre de fraction de micromètre à plus d'un centimètre. L'un des avantages de cette méthode est la bonne adhérence des dépôts sur les substrats avec une bonne homogénéité en épaisseur [13]. Les dépôts par CVD sont utilisés, généralement, dans l'industrie des semi-conducteurs, la fabrication des diodes luminescentes et la fabrication des creusets et des tubes en tungstène. Il existe plusieurs types de CVD, comme la CVD assistée par laser, la CVD thermique et la CVD assistée par plasma (PCVD) [13, 14].

II. 2. Les procédés sol-gel

Le procédé sol-gel est une méthode idéale pour la fabrication des matériaux céramiques, des poudres, des fibres et des films minces [17]. Il consiste en l'hydrolyse et la condensation de précurseurs chimiques. Le concept de base du procédé sol-gel est: un mélange de précurseurs liquides se transforme en un solide par une réaction chimique de type polymérisation à basse température. Le sol est une solution colloïdale d'entités moléculaires plus ou moins grosses et ramifiée. Le passage du sol au gel se fait à basse température. Les couches minces sont élaborées soit par trempage d'un substrat dans une solution moléculaire (dip–coating) et soit par centrifugation d'un filet de solution s'écoulant au centre d'un support en rotation (spin–coating).

II. 3. Les procédés électrochimiques

Le procédé électrochimique est l'une des méthodes de dépôt les plus utilisées pour la fabrication des couches minces inorganiques à partir d'une phase liquide. Les procédés électrochimiques se basent sur un transfert de charge électronique qui s'accompagne par la modification des états d'oxydation et/ou de réduction des matériaux et donc de leur nature physico-chimique.

Sur la figure II. 1, nous avons regroupé les différentes méthodes d'élaboration des couches minces (méthodes physiques et chimiques).

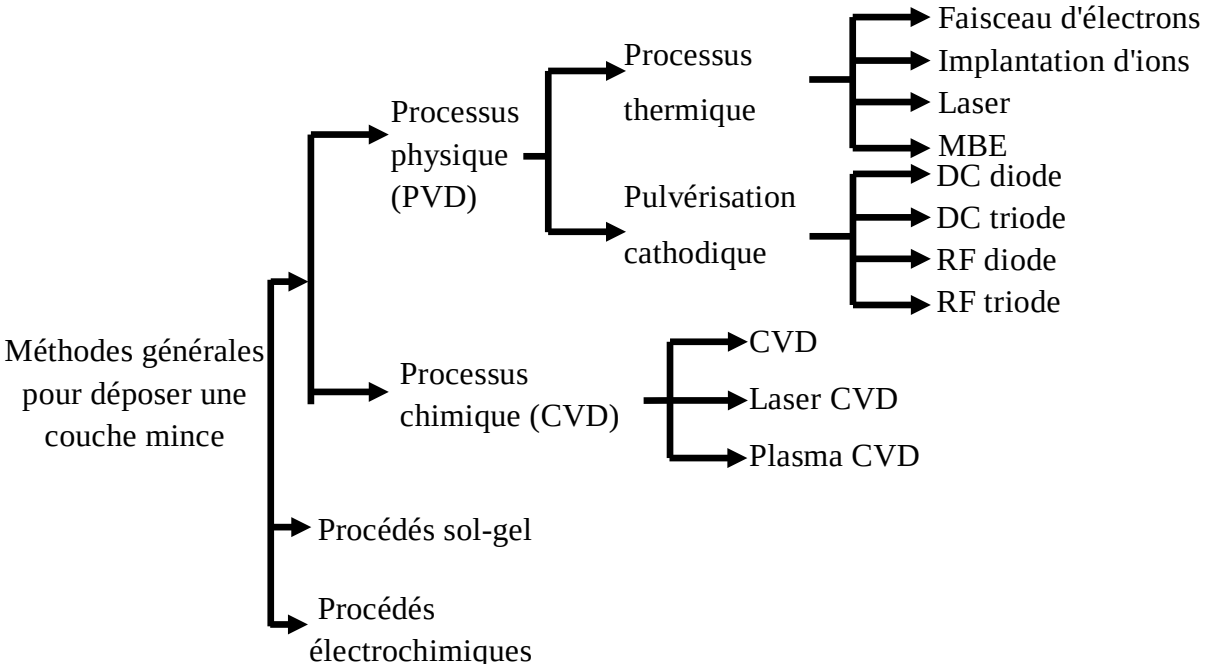


Fig. II. 1. *Méthodes générales de dépôt des couches minces.*

III. Elaboration des échantillons

III. 1. Technique et appareillage utilisé

Le bâti de dépôt sous vide utilisé est de marque MECA2000 (Fig. II. 2. a, b et c). Il est équipé des éléments suivants :

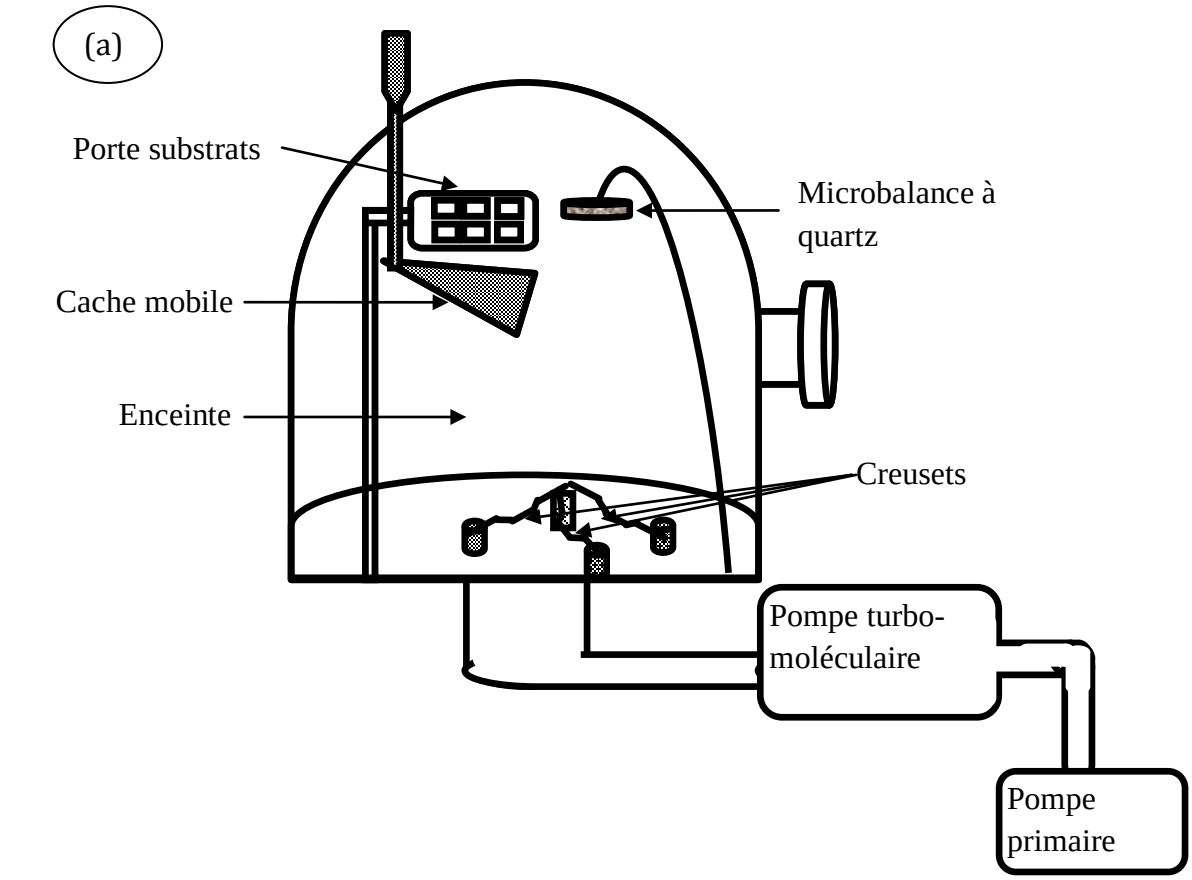
a. Un système d'évaporation muni de trois creusets sélectionnables.

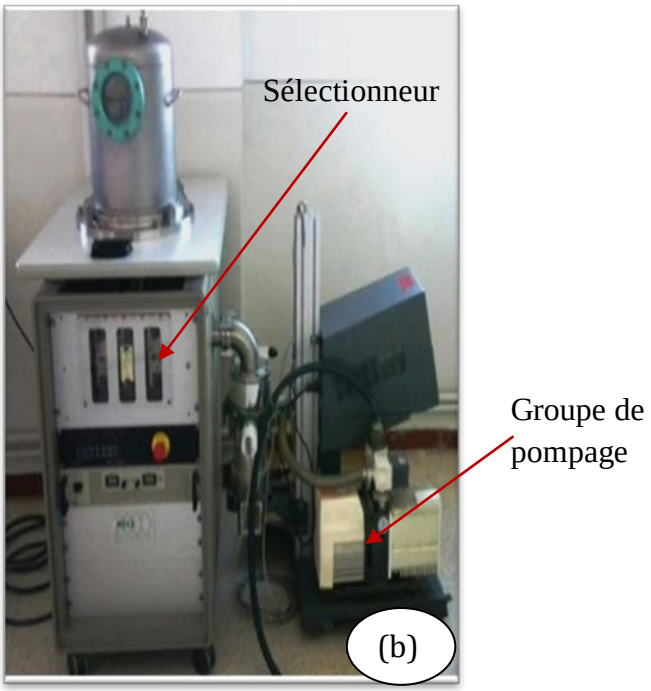
b. Un sélectionneur situé sur la face avant du bâti, nous permet de choisir le creuset qui désigné à contribuer dans l'opération de l'évaporation. Une cartouche permet de connecter le courant de l'alimentation à une des trois traversées de courants reliés aux trois creusets d'évaporation.

c. Une microbalance à quartz de marque MAXTECH-TM 350-ASF140 qui permet de mesurer l'épaisseur et la vitesse d'évaporation du film déposé. Ceci après l'injection de l'impédance acoustique et la densité du matériau à évaporer. Sa fréquence de résonance est donnée par la relation $f_0 = N/dq$.

N : constante égale 1.6710 Hz mm.

dq : épaisseur du quartz (mm).





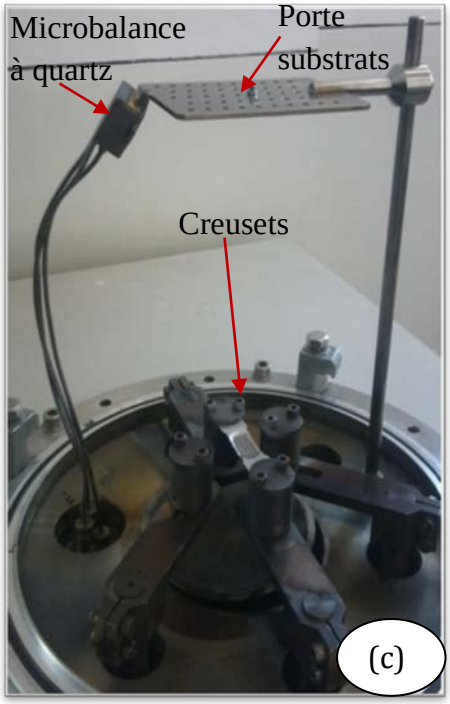


Fig. II. 2. *Système d'évaporation : (a) schéma typique et (b) le bâti Meca-2000 et (c) chambre à vide (Enceinte).*

d. Le porte substrat en inox permet d'installer tous types du substrat.

e. La lecture des différents paramètres mesurés (vitesse d'évaporation, épaisseur ...) se fait directement sur le moniteur.

f. Une jauge à vide Piranie est utilisée pour mesurer la variation de la pression. Cette jauge est de marque ALCATEL, type ACC 1009. Elle est fixée sur la pompe turbo-moléculaire et reliée avec un contrôleur simple voie de marque ALCATEL, type ACS1000. L'ensemble (jauge + contrôleur) mesure la pression totale de l'enceinte à vide.

Le groupe de pompage de l'évaporateur de marque ALCATEL contient:

a. Une pompe primaire ALCATEL model Pascal 2015SD.

b. Une pompe turbo-moléculaire de marque ALCATEL mode ATP (150).

c. Un contrôleur de vide : la jauge de Pirani de marque ALCATEL model 600 T, permet de mesurer la pression totale de l'enceinte à vide.

Notons que l'élaboration des échantillons a été faite au laboratoire ENMC à l'Université Ferhat Abbes de Sétif.

III. 2. Nettoyage des substrats et élaboration des échantillons

La nature des substrats, ainsi que leur état de surface, influent d'une manière directe sur les propriétés physiques de dépôt. Pour obtenir une bonne qualité de dépôt, indépendamment du procédé d'élaboration, il est important d'utiliser des substrats dont la surface est soigneusement nettoyée afin d'éliminer les impuretés ou les graisses qui pourraient être présentes. Cela permet d'éviter les éventuels problèmes d'adhérence et de provoquer une activation de la surface.

Nous avons utilisé dans notre étude les substrats de : verre, Si (111), Cu, mica. Al_2O_3 et CuZn pour la fabrication des couches minces. La nature des substrats, leur état de surface et les processus de nettoyage jouent un rôle préalable sur la précision des résultats obtenus et influents énormément les propriétés physiques des couches minces déposées. Donc, l'opération du nettoyage des substrats est une partie intégrale de l'élaboration des couches minces. Avant l'élaboration, il était important d'obtenir des informations sur les meilleures conditions de nettoyage des surfaces des substrats. Plusieurs solutions ont été proposées dans la littérature pour obtenir des surfaces des substrats propres.

Dans ce travail, les substrats utilisés sont le silicium monocristallin commercialisé (Si (111)), les lames de verre et de mica d'épaisseur de 1 mm, les morceaux de Cu, CuZn et

l'alumine (Al_2O_3) d'épaisseur de 2 mm. Ces substrats ont des faces parallèles et de dimension 1cm x 1cm. Le nettoyage des substrats dans notre cas est purement chimique à l'aide des solvants et consiste simplement de passer par la procédure de nettoyage suivante:

- Un bain d'acétone pendant 3 minutes + rinçage avec l'eau distillée.
- On frotte chaque lame soigneusement avec du papier Josèphe pour enlever les salissures.
- Un bain de méthanol pendant 2 minutes + rinçage avec l'eau distillée.
- On frotte avec autrefois chaque lame soigneusement avec du papier Josèphe.
- Un bain d'éthanol pendant 2 minutes.

Ces opérations permettent d'éliminer les contaminants organiques (huile, graisses,…) et peuvent être refaites plusieurs fois, pour obtenir un meilleur résultat (exp : verre visiblement très net). Dés qu'on retire les substrats de l'éthanol, celui-ci s'évapore rapidement. Juste après le nettoyage, les substrats sont fixés sur le porte substrats qui est introduit après placer dans l'enceinte du dépôt. Afin d'éviter l'oxydation des substrats (Cu, CuZn et Si), il est important de lancer immédiatement le vide.

III. 3. Mesure des épaisseurs par oscillateur à quartz

Une mesure préliminaire des épaisseurs de nos couches minces à l'aide d'un oscillateur à quartz piézoélectrique durant le dépôt a été faite. Cet oscillateur à quartz permet aussi de contrôler la vitesse de dépôt de chaque évaporation. Ce type d'oscillateur contient un monocristal de quartz sous forme de plaquette de diamètre 10 mm et d'épaisseur 1 mm. Il présente dans chacune de ces faces une électrode conductrice. La mesure de la fréquence (f) propre aux oscillations du cristal nécessite l'utilisation d'un fréquencemètre. Le carré de la fréquence du quartz est inversement proportionnel à sa masse (m) [18].

$$f^2 = \frac{1}{4\pi^2}\frac{c}{m} \qquad \text{(II. 1)}$$

Avec c est la force de rappel.

Lorsque une couche mince est déposée sur la plaquette de quartz, la fréquence f du quartz change de Δf et la masse augmente de Δm telle que:

$$2\,\frac{\Delta f}{f} = \frac{\Delta m}{m} \qquad \text{(II. 2)}$$

Cette variation de la fréquence propre du quartz présente une dépendance linéaire avec la masse déposée. Cette propriété est conservée uniquement dans le domaine où la force de rappel est constante.

$$f = f_0 \left(1 - \frac{\Delta m}{2m}\right) \quad \text{(II. 3)}$$

f_0 : la fréquence propre du quartz sans dépôt.

f : la fréquence du quartz chargé d'une masse Δm

Pour un tel quartz, toute variation de f_0 entraine une variation de f telle que :

$$\Delta f = \left(1 - \frac{\Delta m}{2m}\right) \Delta f_0 \quad \text{(II. 4)}$$

Les valeurs des épaisseurs de nos échantillons mesurés par l'oscillation du quartz ne sont pas fiables à 100%. Donc, il est bien de confirmer ces épaisseurs par d'autres méthodes de mesure d'épaisseur. Dans notre cas, nous avons utilisé la RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopy) comme une technique de caractérisation structurale permettant la détermination des épaisseurs, la vitesse de chaque dépôt et l'état de la surface et de l'interface.

IV. Méthodes de caractérisation

IV. 1. Méthodes de caractérisation structurales

IV.1. 1. Technique de rétrodiffusion de Rutherford (RBS)

La technique de la rétrodiffusion de Rutherford (RBS) est une méthode de caractérisation physico-chimique. Cette technique nous permet de déterminer les épaisseurs des couches minces et les bicouches avec une précision suffisante. Soulignons que l'épaisseur d'une couche mince est un facteur important dans l'étude des propriétés physiques des couches minces.

IV. 1. 1. 1. Principe de la RBS

RBS (Rutherford Backscattering Spectroscopy) est l'une des techniques les plus utilisées pour les analyses quantitatives de la composition des régions proches de la surface de la couche mince ou des solides [19]. La technique RBS est une méthode d'analyse qui consiste à bombarder l'échantillon par un faisceau de particules chargées (He^{++} ou H^{+}) délivrées par un accélérateur d'ions. Ces particules interagissent avec la cible de telle sorte qu'elles sont diffusées élastiquement par les atomes du matériau analysé; cette méthode permet de séparer les éléments en fonction de leurs masses atomiques et déterminer leurs distributions en profondeur.

IV. 1. 1. 2. Mesure des épaisseurs des couches minces

La rétrodiffusion de Rutherford (RBS) est basée sur les collisions des projectiles (α) avec les noyaux des atomes de la cible. Elle permet de mesurer les épaisseurs des films minces par la mesure de la perte d'énergie des ions projectiles dans ces films. Rappelons que le but d'utiliser cette technique est de mesurer les épaisseurs, les vitesses de dépôt et voir l'état de surface et d'interface de nos couches minces. À partir des spectres RBS, on peut déduire l'épaisseur de la couche, en évaluant la largeur à mi-hauteur FWHM du pic de matériau dont on veut mesurer l'épaisseur. FWHM est donnée par [20]:

$$FWHM = \Delta E = KE_0 - E_1' = \varepsilon Nt \qquad (II.5).$$

où :

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

ε : pouvoir d'arrêt du matériau considéré.

N: la concentration atomique du matériau considéré.

K est un facteur cinématique. Il est égal au rapport de l'énergie des particules chargées avant et après la collision

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

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

La largeur à mi-hauteur varie avec l'épaisseur de la couche. Aussi pour une énergie de 2 MeV des ions d'He (hélium), la résolution en profondeur de la RBS est de l'ordre de 10 à 30 nm pour un détecteur de Si qui possède une énergie de résolution variant de 15 à 18 KeV [24]. En général, la résolution en profondeur de RBS est de l'ordre de 20 à 30 nm, mais peut être aussi inférieure de 2 ou 3 nm près de la surface d'un échantillon. Les profondeurs typiques d'analyses sont moins de 2000 nm, mais l'utilisation des protons, plutôt que l'hélium, comme particules incidentes peuvent augmenter l'ordre de grandeur de la profondeur [21].

IV. 1. 1. 3. Dispositif Expérimental

Le dispositif de la technique RBS est constitué d'une source d'ions, d'un accélérateur de particules, de deux chambres d'analyses et du système d'acquisition et de traitement des données, (Fig. II.3). Une source d'ions donne un faisceau de particules chargées ($^4He^{++}$), qui passe par un accélérateur de particules du type Van de Graaff. Une chambre d'analyse de

forme cylindrique, dans laquelle on peut réaliser un vide secondaire de 10^{-6} mbar. Elle est constituée d'un porte échantillons fixé sur un goniomètre qui est placé perpendiculairement à la face inférieure de la chambre d'analyse. Ce goniomètre peut effectuer des rotations et des translations des échantillons. Le porte échantillons comporte sept (7) positions pour fixer les échantillons, et avec une rotation de 180° on peut analyser sept échantillons différents dans les mêmes conditions opératoires. Le système d'acquisition et de traitement des données est constitué d'un détecteur en silicium qui permet de détecter les particules rétrodiffusées avec une résolution de 25 KeV, d'un préamplificateur, d'un amplificateur et d'un analyseur multi-canal.

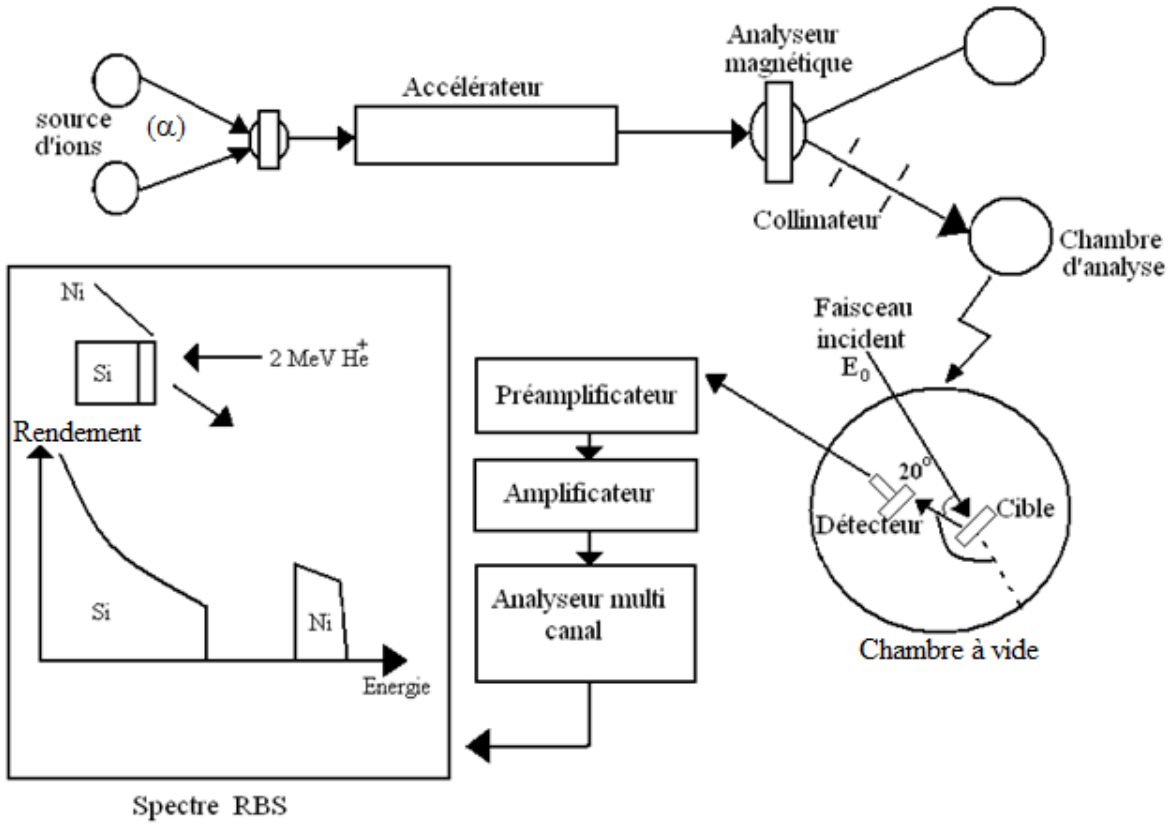


Fig. II. 3. *Dispositif expérimental de l'appareillage de la technique RBS.*

IV. 1. 1. 4. Réalisation et Simulation

Un accélérateur du type Van de Graaff émet un faisceau d'ions hélium avec une énergie égale à 2 MeV et un diamètre de 1mm. La majorité des particules $^4He^+$ incidentes terminent leurs trajectoires en volumes. Cependant une faible proportion subit des interactions avec les noyaux de la cible, donnant lieu à des rétrodiffusions avec un angle θ égale 160° par

rapport à la direction du faisceau incident. Le détecteur est à une distance de 08cm de cible, cet équipement est alimenté par un courant de 50 nA. L'utilisation d'un logiciel de traitement est indispensable pour l'exploitation des données. Nous avons utilisé tout au long de ce travail le logiciel SIMNRA (6.03), qui est fonction de toutes les données expérimentales, des banques de données du facteur d'arrêt et des sections efficaces de rétrodiffusion et d'une cible virtuelle donnée par l'utilisateur. C'est à l'utilisateur de modifier la cible virtuelle jusqu'à ce que le spectre simulé corresponde le mieux possible avec le spectre expérimental. En général, la précision de la technique RBS dépend du temps mis pour recevoir et traiter le faisceau rétrodiffusion [22].

IV. 1. 2. La diffraction des rayons X (DRX)

IV. 1. 2. 1. Principe de fonctionnement de DRX

Le principe de la méthode consiste à envoyer un faisceau de rayons X monochromatique produit par un générateur à anticathode en cuivre (Cu) sur l'échantillon à analyser. L'anticathode est excitée par une tension optimale d'émission de 20 à 45 KV. On utilise un filtre ou un monochromateur pour sélectionner la raie Kα du Cuivre (Cu) de longueur d'onde λ = 1,5406 Å. Lorsque le faisceau des rayons X monochromatique frappe l'échantillon, il y aura une diffraction par les atomes du réseau et on obtient un diagramme de diffraction présentant des pics. Ce diagramme nous renseigne sur la structure de l'échantillon. L'analyse par la diffraction des rayons X permet de tirer plusieurs informations sur la structure cristalline des échantillons, telle que la taille des cristallites, le paramètre de maille et l'état des contraintes. Chacune de ces informations demande un protocole expérimental spécifique.

IV. 1. 2. 2. Loi de Bragg

A l'aide d'une théorie très simple [23, 24] (théorie statique), on obtient la loi de Bragg, donnant les conditions d'interférences constructives (i.e un pic dans le diagramme de diffraction) :

$$2d_{hkl} \cdot \sin\theta = n\lambda \qquad \text{(II. 6)}$$

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

λ est la longueur d'onde du faisceau incident du rayonnement utilisé (λ_{Cu}= 1,5406 Å).
θ est l'angle de diffraction. n est l'ordre de la réflexion dans la famille de plans parallèles.
La figure (II. 4) montre que dans des dispositifs de ce type, seuls les plans parallèles à la surface de l'échantillon diffractent. Les différentes réflexions sont régies par la loi de Bragg.

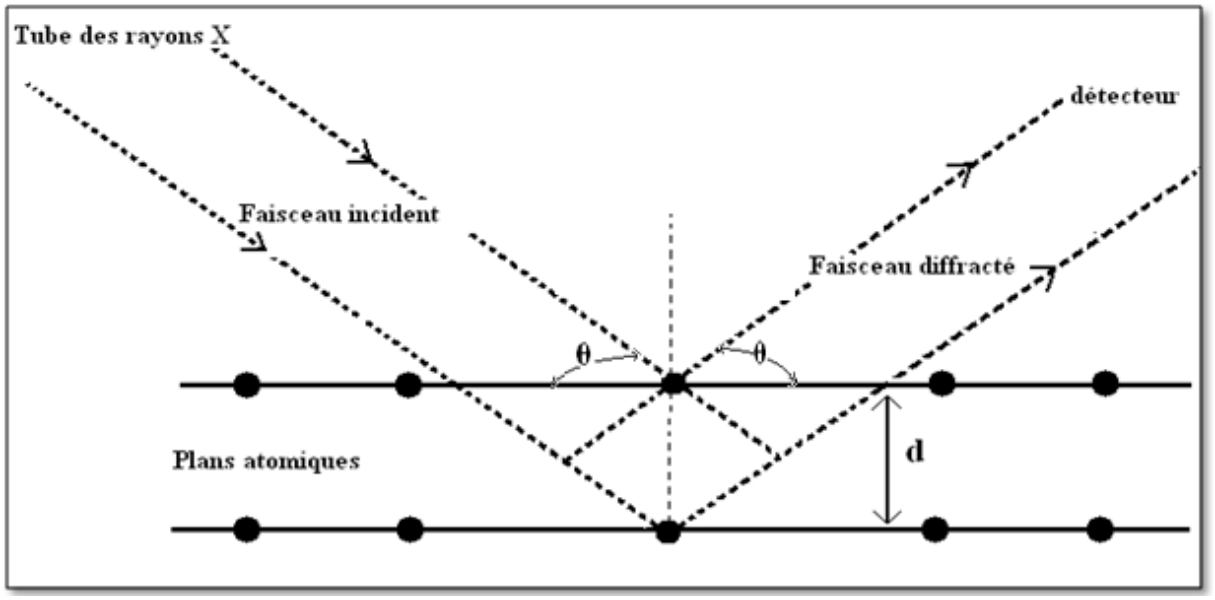


Fig. II. 4. *Illustration de la diffraction des rayons X (relation de Bragg).*

IV. 1. 2. 3. Dispositif expérimental

L'appareil utilisé, de conception de Bragg -Brentano ou (Mode θ-θ) est de marque Philips X'Pert Pro (Fig. II.5). Dans la configuration dite «θ-θ» ("thêta-thêta"), l'échantillon est horizontal et immobile, tandis que la source des rayons X et le détecteur tourne pas à pas (symétriquement) selon la précision désirée [25].

Nous avons utilisé un filtre monochromatique pour sélectionner la raie Kα de Cuivre de longueur d'onde λ_{Cu}= 1,5406 Å. Le diffractomètre est alimenté par une différence de potentiel de 45 KV et un courant de 40 mA. Les plans qui diffractent sont localisés par l'angle 2θ. Une fois que l'analyse est réalisée, on trouve un diagramme de diffraction, représentant le nombre de coups vus par le détecteur (intensité) en fonction de l'angle de détection 2θ. Les pics mis en évidence doivent être alors comparés aux tables internationales du JCPDS (Tble. II. 1) [26], qui recensent toutes les réponses aux rayons X des structures connues. On peut alors, par comparaison avec ces fiches, établir la structure et l'orientation des couches réalisées.

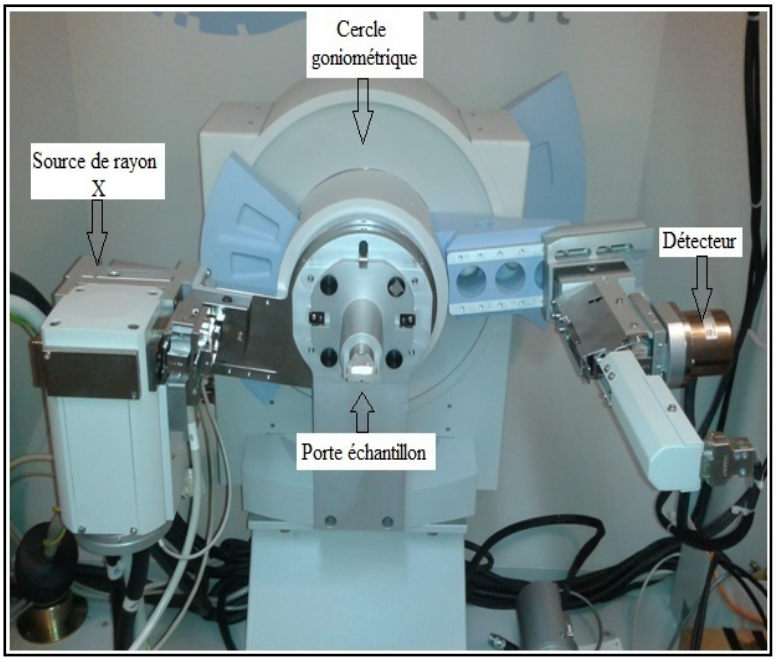


Fig. II. 5. *Photographie du diffractomètre des rayons X du type Philips X'Pert.*

Table. II.1. *Fiche JCPDS du Nickel.*

<table>
<tr><td colspan="3">04-0850 Wavelength=1.5405
*</td><td></td><td></td><td></td><td></td></tr>
<tr><td rowspan="5">Ni
Nickel
Nickel. Syn

Rad : Cuka1 λ=1.5405 Filter : Ni Beta d-sp :
Cut off: Int: Diffract I/Icor:
Ref: Swanson. Tatge. natl. bur. Stand. (U.S). Circ. 539. I.13.(19953)

Sys.: Cubic S.G.:Fm3m (225)
a: 3.5238 b: c: A: C:
α: β: γ: Z= 4
mp:
Ref: Ibid.
Dx : 8.911 Dm : SS/FOM: F8 = 87(.0115 . 8)

Color : White
Pattern taken at 26 C. Sample obtained from Johnson Matthey Company, Ltd .CAS #: 7440-02-0. Spectrographic analysis show <0.01%each of Mg. Si and Ca. Cu type. Gold group .gold subgroup. PSC: cF4. Mwt: 58.70. volume[CD] : 43.76</td><td>2θ</td><td>Int</td><td>h</td><td>k</td><td>l</td></tr>
<tr><td>44.505</td><td>100</td><td>1</td><td>1</td><td>1</td></tr>
<tr><td>51.844</td><td>42</td><td>2</td><td>0</td><td>0</td></tr>
<tr><td>76.366</td><td>21</td><td>2</td><td>2</td><td>0</td></tr>
<tr><td>92.939</td><td>20</td><td>3</td><td>1</td><td>1</td></tr>
<tr><td>98.440</td><td>7</td><td>2</td><td>2</td><td>2</td></tr>
<tr><td>121.922</td><td>4</td><td>4</td><td>0</td><td>0</td></tr>
<tr><td>144.655</td><td>14</td><td>3</td><td>3</td><td>1</td></tr>
<tr><td>155.632</td><td>15</td><td>4</td><td>2</td><td>0</td></tr>
<tr><td colspan="7">ICDD ®1997 JCPDS- International Center for Diffraction Data .All rights reserved
PCPDFWIN v.1.30</td></tr>
</table>

IV. 1. 3. Microscopie électronique à balayage

Le microscope électronique à balayage (MEB) peut être utilisé pour l'étude analytique des poudres sous fort grossissement. Par rapport au microscope optique, il présente l'avantage essentiel d'une résolution accrue et d'une profondeur de champ importante [27], mais en plus, les signaux résultants du bombardement d'une surface par des électrons peuvent induire tout un ensemble de phénomènes exploitables pour l'analyse. L'analyse des signaux permet de découvrir tous les aspects du solide : topographie, liaisons chimiques et distance entre proches voisins [28]. Les expériences de MEB ont été faites au centre de Recherche Nucléaire d'Alger et à l'Université de Abderrahmane Mira – Bejaia.

Le microscope électronique à balayage consiste à balayer la surface de l'échantillon par des lignes consécutives et à transmettre le signal détecté à un écran cathodique duquel le balayage est synchronisé avec celui du faisceau incident [29]. Les signaux résultant de l'interaction du faisceau incident d'électrons et l'échantillon sont : des électrons secondaires, des électrons rétrodiffusés, des électrons Auger, les rayons X caractéristiques des éléments présents dans l'échantillon (Fig. II. 6).

Dans le MEB, l'échantillon est soumis à un faisceau primaire d'électrons délivrés par un canon thermoélectronique d'énergie de quelques dizaines de KeV.

Suivant le système de détection disponible, l'image est réalisée soit avec des électrons secondaires, auquel cas le contraste obtenu sera de nature morphologique, soit avec des électrons rétrodiffusés et le contraste sera alors associé à la nature chimique du matériau analysé [30]. En plus des fonctions d'observation, en général, la microscopie électronique à balayage est équipée d'un spectromètre à rayon d'énergie dispersive (EDX).

Lorsque les électrons de hautes énergies frappent un solide, il se produit une émission X caractéristique des éléments présents dans le solide. Si l'on concentre une sonde fine d'électrons en un point d'un échantillon et que l'on analyse cette émission, on peut obtenir une information sur la composition chimique du point considéré. Parmi l'ensemble des rayonnements électromagnétiques, les rayons X sont caractérisés par des longueurs d'ondes λ comprises entre 0.1 et 100Å. [31]

Les micrographies MEB obtenues dans notre travail ont été enregistrées sur un microscope à balayage du type Philips XL 30 FE-SEM couplé à un spectromètre dispersif en énergie EDAX qui nous a permis d'effectuer de la microanalyse en mode global et local. Les micrographies MEB de nos échantillons ont été faites avec un agrandissement entre 150X et 4800X. (Fig. II. 6).

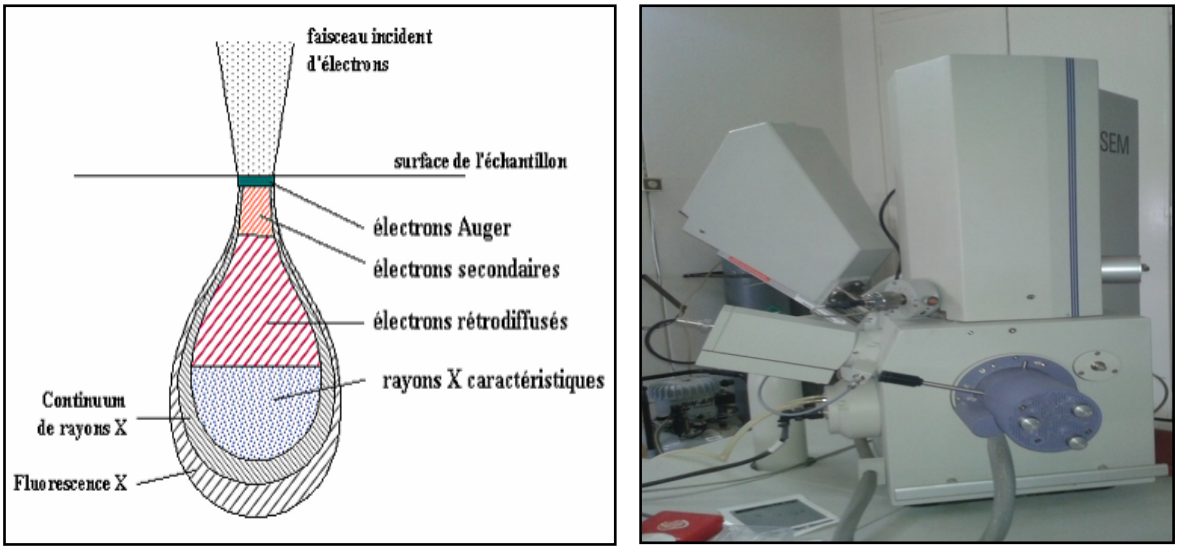


Fig. II. 6. *Les signaux résultants de l'interaction du faisceau primaire-surface de l'échantillon et une photo du microscope électronique à balayage.*

IV. 2. Méthodes de caractérisation électriques (Méthode des quatre pointes)

IV. 2. 1. Dispositif de mesure de la résistance carrée

L'épaisseur d'une couche mince joue un rôle important dans les propriétés électriques. Si l'épaisseur est négligeable par rapport aux autres dimensions on peut utiliser un modèle bidimensionnel de la conduction qui donne:

$$\frac{V}{I} = k.\frac{\rho}{t} \qquad \text{(II. 7)}$$

V est la tension en volt (V).

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

t est l'épaisseur de la couche mince (cm)

ρ est la résistivité électrique de la couche en Ω.cm.

Le coefficient K peut être calculé analytiquement dans quelques cas particuliers très simples, par exemple pour 4 pointes alignées équidistantes sur une couche sans limites (infinie):

$$k = \frac{\ln 2}{\pi} \qquad \text{(II. 8)}$$

avec

$$\frac{1}{k} = c_f = 4.53 \qquad \text{(II. 9)}$$

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

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

Eq. II. 9 est valable si l'épaisseur de la couche est négligeable devant la moitié de la distance b entre les pointes. Donc pour t << 2b, on trouve que $C_f = 4.53$ [32].

IV. 2. 2. Principe de fonctionnement

La méthode des quatre pointes est une technique qui permet de mesurer la résistivité électrique des couches minces à partir des résistances carrées. Dans la méthode des quatre pointes, on applique sur le film quatre pointes fines, alignées et conductrices de diamètre Φ= 0.4 mm. Ces pointes sont équidistantes de 1mm comme il est montré sur la figure II.7. L'équipement de mesure de la résistance carrée constitue un dispositif qui contient les quatre pointes raccordées à un micro-ordinateur. Cet équipement et la résistance carrée des couches minces permettent de faciliter les calculs de la résistivité. Le dispositif est conçu pour fonctionner dans un domaine bien précis : la résistance carrée entre 1mΩ et 2MΩ et la résistivité entre 10 μΩ.cm et 200 KΩ.cm (à savoir l'épaisseur du film). La méthode des quatre pointes consiste à mesurer la résistance carrée des couches minces à l'aide de quatre électrodes, en injectant un courant continu I entre les deux électrodes externes du dispositif de mesure et en mesurant la différence de potentiel induite entre les deux électrodes internes, comme il est montré sur la figure (II. 7). La résistance carrée est donnée généralement par l'expression [33]:

$$R_{\square} = C_f \cdot \frac{V}{I} \qquad \text{(II. 10)}$$

A partir des équations (II.7 et II.10) on remarque que $R_{\square} = \frac{\rho}{t}$, ($R_{\square}$ est donnée en Ω).

Donc, la résistivité électrique d'un film mince est donnée par [34, 35] :

$$\rho_f = R_{\square} \cdot t \qquad \text{(II.11).}$$

ρ_f est la résistivité électrique de la couche en Ω.cm.

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

La mesure de la résistance carrée de nos échantillons a été effectuée à l'air libre (température ambiante, pression atmosphérique) par la méthode des quatre pointes.

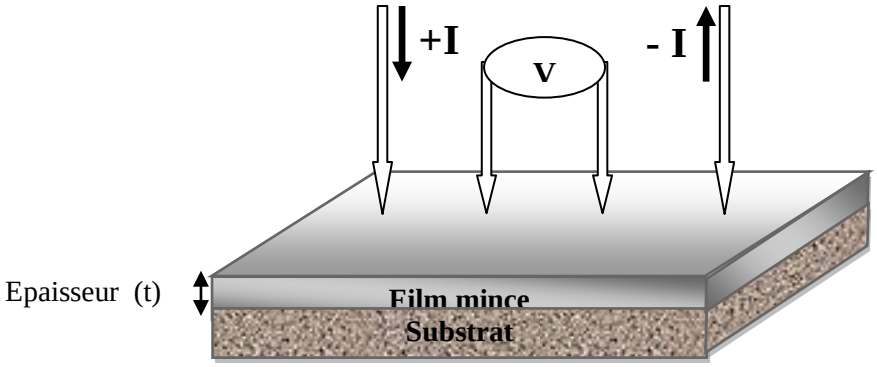


Fig. II. 7. *Schéma simplifié de la technique des quatre pointes.*

IV. 3. Méthodes de caractérisation magnétiques

Pour l'étude des propriétés magnétiques d'un matériau ferromagnétique (cycle d'hystérésis, température de Curie…) plusieurs techniques de caractérisations magnétiques ont été utilisées. Dans ce travail, pour les couches minces de Ni, nous avons utilisé le magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) et le magnétomètre à effet Kerr (configuration longitudinale).

IV. 3. 1. Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)

Le magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) est une technique de caractérisation magnétique. Il permet de déterminer les propriétés magnétiques de couches minces, bicouches, multicouches et de petits cristaux de nature diverse (ferromagnétiques, oxydes magnétiques etc.) en fonction du champ magnétique extérieur appliqué et de la température (pour le cas des mesures des cycles d'hystérésis à base et haute température). Le principe de fonctionnement du VSM repose sur la mesurer du flux (F) induit dans un bobinage par déplacement périodique de l'échantillon. On utilise dans cette méthode de caractérisation, un système du bobinage de mesure avec une amplitude constante. On fait vibrer un échantillon placé au centre de ce bobinage, verticalement (sur l'axe z) avec une fréquence f (Fig. II. 8). La particularité de cette technique de mesure est sa rapidité car les dérives parasites gênantes sont des signaux pseudo-continus éliminés par la détection synchrone.

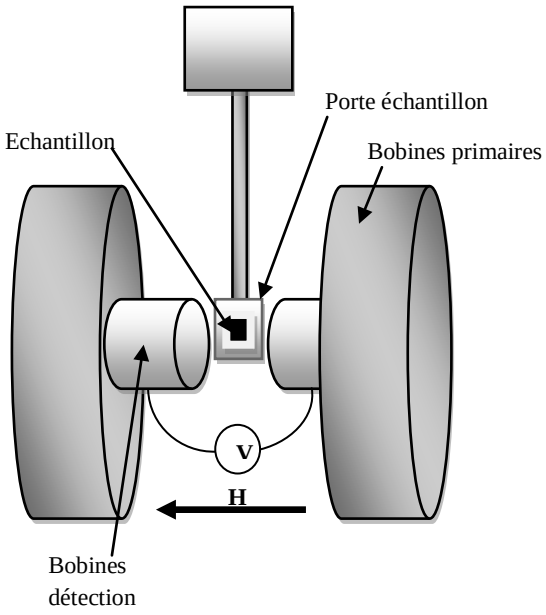
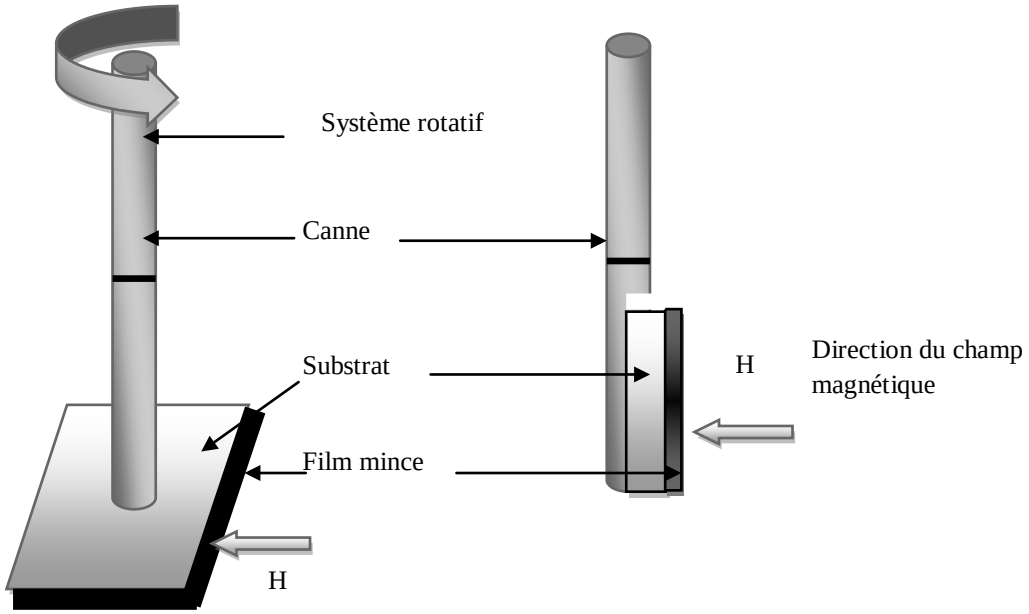


Fig. II. 8. *Schéma du système de vibration.*

On peut appliquer le champ magnétique extérieur dans le plan du film (Fig. II. 9. a) ou perpendiculaire au film (Fig. II. 9.b)



(a) Mesure parallèle (b) Mesure perpendiculaire

Fig. II. 9. *Configuration de mesures magnétiques dans le VSM.*

IV. 3. 2. Magnétomètre à effet Kerr

Le Magnéto-Optical Kerr Effect (MOKE), connu sous le nom de' l'effet Kerr a été découvert par J. Kerr en 1876 [36, 37]. Dans la configuration Kerr, la lumière polarisée linéairement est envoyée sur un échantillon magnétique et est réfléchie par ce dernier.

Le principe de cette technique consiste dans la mesure de la rotation du plan de polarisation et/ou de l'ellipticité d'un faisceau laser incident (polarisé linéairement) après réflexion sur un matériau magnétique. On distingue trois géométries fondamentales suivant l'orientation du champ magnétique par rapport à la surface de l'échantillon et au plan de la lumière : polaire, longitudinal et transverse (Fig. II. 10). Chaque géométrie est sensible à une composante de l'aimantation : (i) L'effet Kerr polaire sensible à la composante de l'aimantation perpendiculaire à l'échantillon, située dans le plan d'incidence. (ii) L'effet Kerr longitudinal (utilisé dans ce travail) sensible à la composante de l'aimantation dans le plan de l'échantillon et parallèle au plan d'incidence. (iii) L'effet Kerr transverse mesure de la composante de l'aimantation orientée dans le plan de l'échantillon et orthogonale au plan d'incidence du faisceau laser.

Les mesures magnétiques (VSM et effet Kerr) ont été effectuées au laboratoire de : LEMAC, IEMN CNRS 8520, Université Lille, France

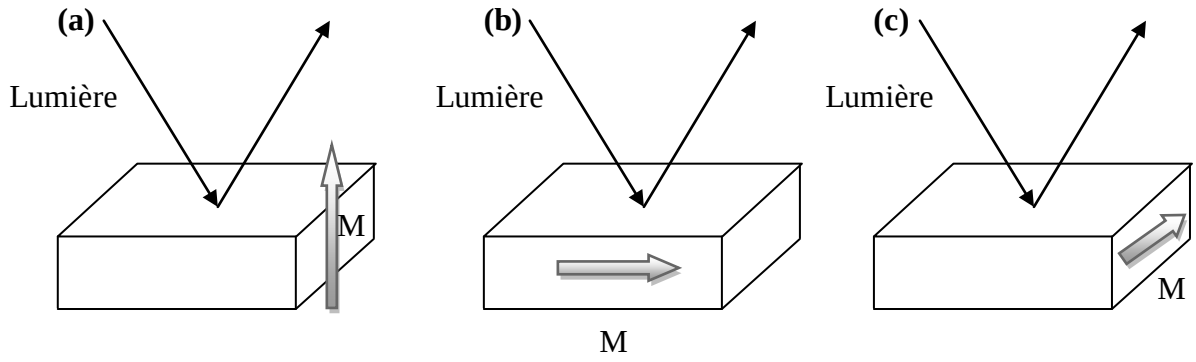


Fig. II. 10. *Configurations Kerr typiques: (a) configuration polaire, (b) configuration longitudinale et (c) configuration transverse.*

V. Conclusion

Dans le premier volet de ce chapitre nous avons résumé les différentes méthodes de dépôt des couches minces en phase vapeur (PVD et CVD) et d'autres procédés (sol-gel et électrochimiques). Ainsi, nous avons exposé les techniques relatives au vide et en détaillant la description des dispositifs expérimentaux utilisés. Dans le deuxième volet de ce chapitre, nous avons décrit les méthodes de caractérisation utilisées pour étudier les différentes propriétés de nos échantillons, à savoir les propriétés structurales, électriques et magnétiques. Une description complète des méthodes de caractérisation utilisées (RBS, la DRX, MEB, les quatre pointes, VSM et effet Kerr) est donnée.

Comme tout travail expérimental, les propriétés physiques dépendent toujours des conditions opératoires, de la méthode d'élaboration et de la nature du matériau à évaporer. Donc, nous avons présenté la description détaillée du système de la technique d'évaporation par effet Joule (meca-2000). Aussi, les étapes nécessaires de nettoyage des substrats qui offrent de nombreux avantages dans l'interprétation des résultats.

Nous présenterons dans le chapitre suivant (Etude des propriétés structurales) les paramètres utilisés durant l'élaboration, la mesure des épaisseurs, l'étude de la structure cristalline (texture, paramètre de maille, déformationet taille moyenne des grains) et la morphologie des couches minces élaborées.

Références bibliographiques

[1] L. Pawlowski, *Dépôts physiques*, Lausanne: Presses polytechniques et Universitaires romandes, 2003.

[2] D. M. Hoffmann, *Handbook of vacuum science and technology*, San Diego: Academic Press, 1998.

[3] D. M. Mattoxm, *Handbook of physical vapor deposition processing*, Society of Vacuum Coaters, Albuquerque, New Mexico, 1998.

[4] A. Galerie, *Traitements de surfaces en phase vapeur*, Paris : Hermès Science publ, 2002.

[5] T. T. Kodas. M. J. Hampden. Smith. *The Chemistry of Metal CVD*, Weinheim Germany, 1995.

[6] M. L. Hitchman, K.F. Jensen. *Chemical Vapor Deposition: Principles and Applications*, Academic Press: London, 1993.

[7] C. E. Morosanu, *Thin Films by Chemical Vapor Deposition*, Amsterdam Vol. 1. 1990.

[8] A. K. Pattanaik, V. K. Sarin, *Chemical Vapor Deposition*, USA. Vol. 2. 2001.

[9] H.O. Pierson, *Handbook of chemical vapor deposition (CVD)*, Westwood New Jersey, USA, 1992.

[10] H. O. Pierson, *Handbook of Refractory Carbides and Nitrides*, Westwood, New Jersey, USA, 1996.

[11] H. Lüth, *Solid Surfaces, Interfaces and Thin Films*, Springer Study Edition, 2001.

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

[13] A. Richardt, A. M Durand, *Le vide- les couches minces-les couches dures*, Edition INFINE Paris,1994.

[14] J. J. Béssot, *Dépôt par pulvérisation cathodique*, Technique de l'ingénieur .M1, 1985.

[15] G. T. Stauf, D. C. Driscoll, P. A. Dowben. Thin Solid Films 153 (1987) 421.

[16] T. Kada, M. Ishikawa, H. Machida, A. Ogura, Y. Ohshita, K. Soai. J. Cryst. Growth 275 (2005) e1115– e1119.

[17] C. J. Brinker, W G. Scherer, *Sol- Gel science*, Acad. Press, San Diego, USA, 1990.

[18] J. J. Bessot. *Enseignement des techniques du vide*. Tome I.

[19] H. Bubert, H. Jenett, *Surface and Thin Film Analysis*, Wiley-VCH, 2002.

[20] R. W. Cahn, P. Haasen, E. J. Kramer, *Materials Science and Technology*, Volume 2A, Part I, New York; Basel; Cambridge, VCH, 1992.

[21] C. R. Brundle, C. A. Evans; Jr, S. Wihon, *Encyclopedia of Materials Characterization*, Butter Worth-Heinemann, 1992.

[22] H. Lee, W. Yu, and Y. Kwon, *Proceedings of the Third International Conference on Information Technology*, IEEE, 2006.

[23] C. Kittel, *Physique de l'Etat Solide*, 7 eme edition DUNOD Paris, 1998.

[24] N. W. Ashcroft, N. D. Mermin, *Physique des Solides*, EDP Sciences, 2002.

[25] J. P. Eberhart, *Analyse Structurale et Chimique des Matériaux*, DUNOD Bordas, Paris, 1989.

[26] Base des donnés JCPDS X'pert HighScore version 1. 0 édition, 2002.

[27] C. Cornet et J-P. Deville, *Physique et ingénierie des surfaces*, EDP Sciences, 1998.

[28] J. P. Eberhardt, *Analyse structural et chimique des matériaux*, Dunod, 1999.

[29] C. Richardt. A Evans, *Encyclopedia of materials characterizations*, Divison of read publishing USA.

[30] S. Bodea, *Thèse de doctorat*. Université Josèphe Fourier de Grenoble I, 2000.

[31] J. L. Martin. A George, *Caractérisation expérimentale des matériaux II*, P.P UNIV Romandes, 1998.

[32] D. David et R. Caplain, *Méthodes usuelles de caractérisation des surfaces*, édition EYROLLES, 1988.

[33] A. Vappaille et R. Castagné, *Dispositifs et circuits intégrés semi-conducteurs*, Bordas. Paris, 1990.

[34] B. Ghebouli, A. Layadi and L. Kerkache, Eur. Phys. J. AP. 3 (1998) 35-39.

[35] A. Kusy, Thin Solid Films 43 (1977) 243-250.

[36] J. Kerr, Phil. Mag. 3 (1877) 321.

[37] J. Kerr, Phil. Mag. 5 (1878) 161.

Chapitre III

Etude des propriétés structurales

I. Introduction

Dans ce troisième chapitre, nous avons présenté les conditions d'élaboration de nos échantillons (temps, pression et courant de dépôt) pour chaque système et les différents résultats des propriétés structurales et microstructurales obtenus. Ces résultats ont été obtenus à l'aide des caractérisations par la rétrodiffusion de Rutherford, la diffraction des rayons X et le microscope électronique à balayage. En premier lieu, il est nécessaire de mesurer les épaisseurs et d'assurer de la qualité structurale et microstructurale des échantillons élaborés avant d'étudier leurs propriétés électriques et magnétiques.

Ce chapitre contient trois sections, la première montre les résultats expérimentaux obtenus du système Ni/substrats (substrats : verre, Si (111), mica, Cu et Al_2O_3), la deuxième présente les résultats du système Ni/Cu/substrats (substrats : verre, Si (111), mica, Cu, et CuZn) et la troisième section est consacrée à l'étude comparative entre les deux systèmes (ou bien, à l'effet de la sous-couche de Cu sur les propriétés structurales). Nous terminons ce chapitre par une conclusion qui résume tous les résultats expérimentaux.

II. Etude du système Ni/substrats

II. 1. Conditions d'élaboration des échantillons

Les couches minces et les bicouches (Ni/substrats et Ni/Cu/substrats) ont été préparées par évaporation sous vide à effet Joule, à l'aide d'un évaporateur de marque ALCATEL MECA 2000. Les dépôts ont été faits au niveau du laboratoire ENMC (Elaboration des Nouveaux Matériaux et Caractérisation) à l'Université Ferhat Abbas de Sétif.

La poudre de Ni, de pureté 99.99 %, est déposée sur un creuset en tungstène. En face d'un creuset immobile, le porte substrats est placé à une distance de 20 cm. Le porte substrats et le creuset sont séparés par un cache mobile. L'enceinte est fermée par le toit. La réalisation du dépôt nécessite un vide dans l'enceinte. Pour cela, on met la pompe primaire en service, elle permet de réaliser un vide allant jusqu'à 10^{-3} mbar. Puis on ouvre la vanne entre les deux pompes et on lance la pompe turbo-moléculaire (vide secondaire). On pompe jusqu'à un vide de l'ordre de 10^{-7} mbar. Après ces étapes et après la stabilisation du vide dans l'enceinte, on chauffe le creuset quelques instants par un courant primaire. On fait varier le courant jusqu'à ce que le creuset et la quantité de Ni commence à rougir. Notons que, l'épaisseur des couches déposées est contrôlée par la microbalance à quartz, après avoir injecté la densité et

l'impédance acoustique pour l'évaporation de chaque matériau. Le début d'évaporation de Ni est indiqué par la lecture de la vitesse d'évaporation et de l'épaisseur. Pendant ce temps on observe que le vide se détériore pour quelques instants, puis revient à sa valeur initiale, cette détérioration est due au dégazage de la poudre de Ni. Ensuite on enlève le cache pour avoir la condensation de Ni sur les substrats. On laisse le matériau s'évaporer pendant un temps bien précis qui donne l'épaisseur souhaitée, puis on remet le cache à sa position initiale pour arrêter l'opération d'évaporation du matériau. Pour récupérer les échantillons on laisse refroidir et on casse le vide. On refait ces étapes pour chaque évaporation, mais avec des épaisseurs différentes pour chaque dépôt d'échantillons.

Dans cette expérience, nous avons réalisé quatre (04) dépôts (Table. III. 1). Dans chaque dépôt, nous avons élaboré dix (10) échantillons: deux échantillons pour chaque type du substrat mis côte à côte. Les échantillons élaborés sont conservés dans une boîte en plastique bien propre dans une enceinte sous vide, pour éviter le contact entre les substrats, les mains ou tout corps étranger afin de minimiser les contaminations.

Table. III.1. *Temps, pression et courant de dépôt des échantillons du système Ni/substrats.*

Système Ni/Substrats				
Dépôt №	Pression avant le dépôt (mbar)	Pression pendant le dépôt (mbar)	Temps de dépôt (S)	courant pendant le dépôt (A)
# 1	$1.37\ 10^{-6}$	$1.19\ 10^{-5}$	540	160
# 2	$2.86\ 10^{-6}$	$2.66\ 10^{-5}$	840	243
# 3	$7.69\ 10^{-7}$	$6.65\ 10^{-6}$	2025	275
# 4	$1.78\ 10^{-6}$	$5.5\ 10^{-5}$	1740	232

II. 2. Analyse physico-chimique par la RBS

Nous décrivons dans cette sous-section les résultats obtenus par la RBS. Cette technique nous permet de déterminer les épaisseurs des couches minces avec une précision suffisante. Ainsi que les vitesses de dépôt de chaque série d'échantillons. Soulignons que l'épaisseur et la vitesse de dépôt sont des facteurs importants dans l'étude des propriétés physiques des couches minces. Nous utilisons un programme de simulation SIMNRA (version 6.03) pour simuler les spectres expérimentaux. Notons que les expériences de la technique RBS ont été faites au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA).

La figure III 1 (a et b) représente deux exemples des spectres RBS du système

Ni/substrats et leurs simulations exécutées par le logiciel SIMNRA. Les signaux de Si et de Ni sont bien séparés par une plage de très faible rendement qui détermine l'état d'interface. Dans la figure III 1. a, nous avons remarqué que le pic de Ni est situé à la surface avec une énergie de 1.53 MeV, alors que le palier de Si s'ajuste à une énergie de 1.13 MeV. Pour la figure III 1. b, le pic de la surface est situé toujours à une énergie de 1.53 MeV, mais le palier de Si est décalé vers l'énergie 1.08 MeV. Ce décalage ou bien la différence d'énergie augmente avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche de Ni, ce qui confirme l'effet de perte d'énergie avec la profondeur de la couche. L'absence de bosses à l'interface confirme le bon état de surface du substrat de Si. Nous avons observé aussi qu'il n y a aucune interdiffusion entre les matériaux (entre la couche de Ni et du substrat de Si).

Notons que la technique RBS est la méthode la plus utilisée pour identifier les épaisseurs et l'interdiffusion des couches minces. On cite par exemple les couches minces de Ni/Si et Ni/verre [1], Ni/Cu [2], Ni/Si [3], Ni/Al_2O_3 [4], Ni/mica [5].

Dans le tableau III. 2, nous avons exposé les différentes épaisseurs des couches minces de Ni dans le système Ni/substrats, déterminées à partir de la simulation des spectres expérimentaux de la technique RBS, ainsi que la vitesse de dépôt de chaque évaporation.

Table. III. 2. *Epaisseur et vitesse de dépôt des couche mince de Ni du système Ni/substrats.*

Système Ni/substrats			
Dépôt №	Epaisseur (nm)	Temps de dépôt (S)	Vitesse de dépôt (Å/S)
# 1	9 ± 1	540	0,2
# 2	42 ± 3	840	0,5
# 3	50 ± 3	2025	0,25
# 4	163 ± 5	1740	0,94

A partir du tableau III. 2, nous concluons que les épaisseurs des couches de Ni évaporées sur les différents substrats (verre, Si (111), mica, Cu et Al_2O_3) vont de 9 ± 1 à 163 ± 5 nm pour le système Ni/substrats. Le calcul de la vitesse de dépôt (le rapport de l'épaisseur sur le temps de dépôt) de chaque évaporation donne des vitesses qui varient de 0.2 à 0.94 Å/s. Une fois que les dépôts sont réalisés et les épaisseurs mesurées, il est intéressant de connaître l'évolution de la structure cristalline (texture, paramètre de maille, déformation et taille moyenne des grains) en fonction des épaisseurs et de type du substrat.

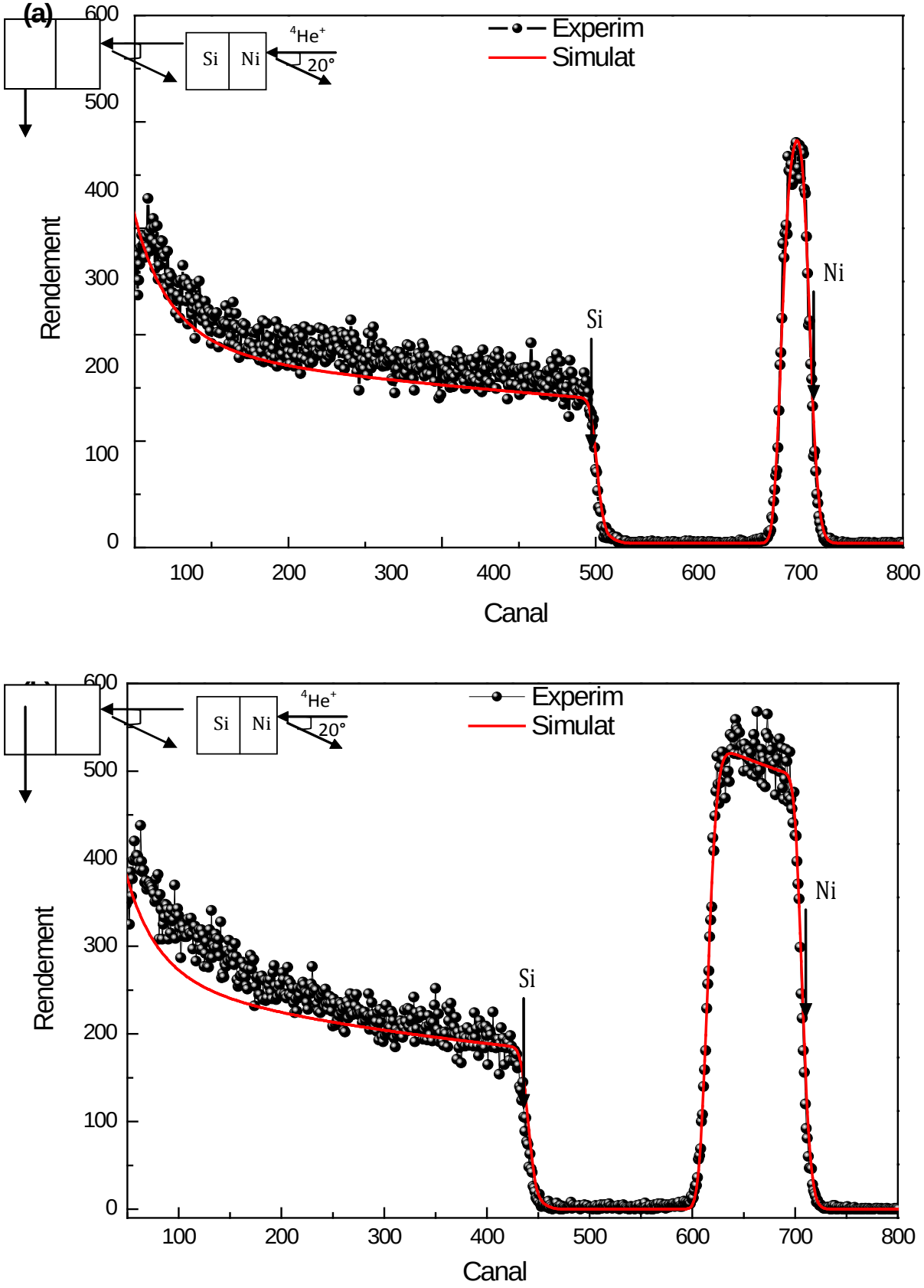


Fig. III. 1. *Exemples des spectres de RBS présentent deux épaisseurs : (a) Ni (50 nm) /Si (111) et (b) Ni (163 nm)/Si (111).*

II. 3. Analyse structurale par la diffraction des rayons X

Pour étudier les propriétés structurales de nos couches minces de Ni (système Ni/substrats et Ni/Cu/substrats), nous avons utilisé la diffraction des rayons X (DRX), montage de Bragg- Brentano, mode θ-θ. Les expériences ont été réalisées à l'aide d'un diffractomètre du type Philips X'Pert Pro disponible au CRNB (Centre de Recherche Nucléaire de Birin). Nous avons exploité la gamme du balayage 2θ = 40°-100°, cette gamme est pratiquement suffisante pour l'identification des principaux pics. La fiche utilisée de JCPDS (04 - 0850) de Ni est donnée dans le chapitre II. La DRX permet de donner les différentes informations sur la structure cristalline de nos échantillons (texture, paramètre de maille a (Å), déformation ε (%) et taille moyenne des grains < D (nm) >).

Pour étudier l'évolution de la structure cristalline des deux systèmes, nous avons utilisé le logiciel X'pert High-Score [6] qui permet l'identification des phases cristallines ainsi que la deconvolution des pics de diffraction. Le High-Score utilise une fonction analytique approximant la fonction Pseudo-Voigt. Il permet dans un premier temps de visualiser les diffractogrammes puis de procéder à un ajustement de chaque pic par un habillage constitué de Gaussiennes et de Lorentziennes [7].

II. 3. 1. Texture

Pour un matériau polycristallin, dans le cas général, les grains ne sont pas orientés au hasard. Ils ont des orientations préférentielles qui forment ce qu'on appelle une texture cristallographique. Cette orientation préférentielle ou texturation possède une influence prépondérante sur les propriétés et la performance des couches minces élaborées. Les couches minces de Ni élaborées par les différentes techniques de dépôt et déposées sur des différents substrats montrent la dominance d'une orientation préférentielle selon la direction <111> [1, 2, 8-18]. Comme on peut trouver d'autres orientations préférentielles [19, 20].

Au cours de l'identification des pics, un décalage angulaire des pics de la diffraction des rayons X (Δ 2θ), a été observé. Ce dernier peut être attribué aux contraintes internes, car le premier ordre des contraintes internes agit au niveau macroscopique en modifiant la distance interréticulaire, donc le paramètre du réseau, et par conséquent provoque un déplacement des pics de DRX [21]. D'autre part, ce décalage peut probablement attribuer à l'erreur de mesure et aussi à la fiche (JCPDS) qui correspond à une référence de poudre de Ni pur. Cependant nos couches minces peuvent présenter des impuretés telles que l'oxygène.

La figure III. 2 a, b et c représente quelques exemples des spectres de la diffraction des rayons X du système Ni/substrats : (a) Ni/verre, (b) Ni/Si (111) et (c) Ni/Cu pour une épaisseur de Ni égale 163 nm.

Dans la série Ni/verre (exemple de cette série Fig. III. 2. a), les spectres de la diffraction des rayons X montrent deux pics ayant une grande intensité. Le premier pic correspond au plan Ni (111) et le deuxième pic moins intense correspond au plan Ni (200). En plus de ces pics, l'échantillon d'épaisseur t = 163 nm présente d'autres pics de faible intensité, correspondant aux plans Ni (220), Ni (311) et Ni (222). La texture dans cette série est suivant la direction <111>.

La figure III. 2. b représente un exemple des spectres de la diffraction des rayons X de la série Ni/Si (111). En plus du pic du substrat Si (311), nous avons observé deux pics de très grandes intensités correspondant aux plans Ni (111) et Ni (200). D'autres pics de faibles intensités provenant aux plans Ni (220), Ni (311) et Ni (222) ont été observés. Avec l'augmentation de l'épaisseur, nous avons remarqué l'augmentation des intensités des pics. Les couches minces déposées sur des substrats de Si (111) présentent une orientation préférentielle suivant la direction <111>. Cela indique que le plan Ni (111) est orienté préférentiellement suivant la direction parallèle du plan du substrat Si (111) [11].

Sur la figure III. 2. c, nous avons montré un exemple des spectres de la diffraction des rayons X de la série Ni/Cu. Les couches minces de Ni de cette série présentent des pics larges et clairs. Nous avons observé l'apparition de plusieurs pics étroits et plus intenses du substrat pour toutes les épaisseurs. Dans cette série, nous avons remarqué l'apparition de plusieurs pics correspondent aux plans Ni (111), Ni (200), Ni (220) et Ni (311). Le pic de Ni suivant la direction <111> représente la texture dans cette série d'échantillons.

Dans la série d'échantillons Ni/Al_2O_3 (ne pas montrer sur la figure III. 2), les pics de Ni sont de très faibles intensités pour toutes les épaisseurs. Après le calcul du rapport des intensités, nous avons trouvé que le pic le plus intense (la direction [111]) présente l'orientation préférentielle.

Finalement, les couches minces de Ni déposées sur des substrats de mica (ne pas montrer sur la figure III. 2), pour toutes les épaisseurs, nous avons observé des pics clairs avec des intensités remarquables. Ces pics correspondent aux plans Ni (111), Ni (200) et Ni (220). La direction <111> présente l'orientation préférentielle dans cette série des couches minces.

Nous avons observé dans ce système (Ni/substrats), une augmentation progressive des intensités des pics avec l'augmentation de l'épaisseur. Ainsi la texture ou bien l'orientation

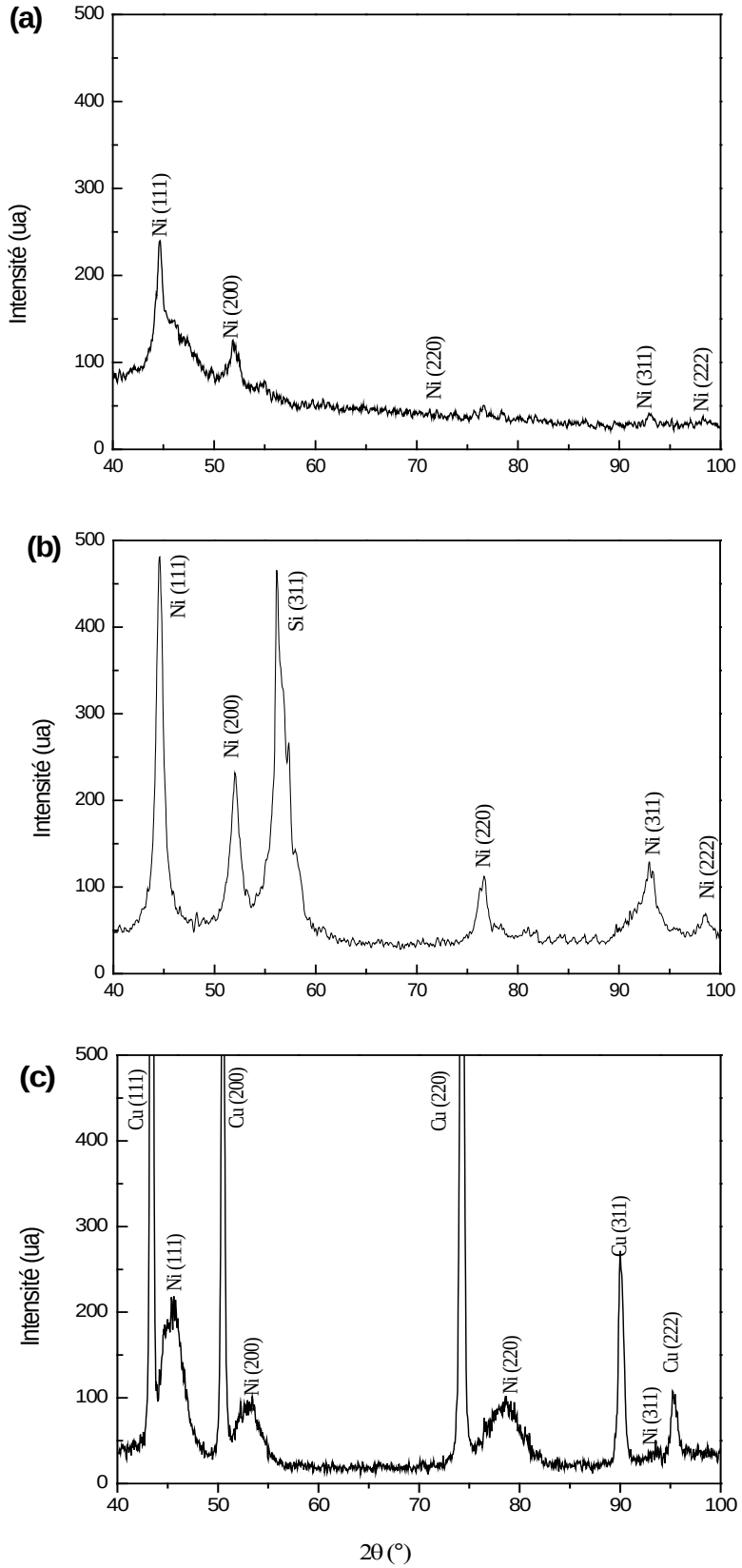


Fig. III. 2. *Exemples des spectres de la diffraction des rayons X du système Ni/substrats : (a) Ni/verre, (b) Ni/Si (111) et (c) Ni/Cu pour une épaisseur de163 nm.*

préférentielle est suivant la direction [111] de la structure cubique à faces centrées de Ni, pour toutes les épaisseurs et dans toutes les séries. Nous pouvons dire ici que le changement de type du substrat ne joue aucun rôle dans la modification de la texture de nos films de Ni dans ce système.

Par comparaison aux travaux réalisés au sein de notre laboratoire, les couches de Ni/Si, Ni/verre et Ni/Cu préparées par évaporation sous vide, présentent une orientation préférentielle suivant la direction [111] de Ni (cfc) [1, 2]. On peut aussi comparer à d'autres travaux, comme les couches minces de Ni déposées par la pulvérisation magnétron DC sur des substrats SiO_2/Si (100) et Al_2O_3 dans une gamme d'épaisseurs varie de 80 à 260 nm qui présentent une texture suivant la direction [111] (Ni (111) de structure cubique à faces centrées (cfc)) [8]. Notons aussi que les couches minces de Ni préparées par Spin Coater KW-4A sur des substrats de Al_2O_3, montrent une texture suivant la direction [111] de Ni (cfc) [9]. Ainsi que les couches minces de Ni déposées par la pulvérisation magnétron DC sur des substrats de verre pour une épaisseur t = 200 nm, présentent la même texture [10]. Par la méthode d'électrodéposition, les couches minces de Ni/n-Si (111) montrent aussi une texture suivant la direction < 111 > [11]. Les couches minces de Ni déposées sur les substrats de polymère (PI), préparées par bombardement ionique, montrent une orientation préférentielle suivant la direction < 111 > [12]. Comme on peut également trouver une autre texture suivant la direction < 200 > pour une épaisseur de t= 60 nm [19] ou < 220 > [20]. On voit que généralement la texture des couches minces de Ni déposées sur différents substrats avec différentes méthodes d'élaboration est suivant la direction [111] de la structure cfc [13-18]. Ceci est dû probablement à la plus grande densité atomique de la surface du plan Ni (111) par rapport à celle des plans Ni (200) et Ni (220) [11].

II. 3. 2. Evolution du paramètre de maille

Le paramètre de maille est un facteur important qui permet d'avoir des renseignements sur l'état des contraintes exercées sur la couche mince. La différence entre la valeur du paramètre de maille naturel (massif) et la valeur mesurée par la diffraction des rayons X nous donne la déformation ε^{hkl} [22]:

$$\varepsilon^{hkl} = \frac{a_{mesure} - a_{mass}}{a_{mass}} \qquad \text{(III.1)}$$

Elle peut prendre trois types de valeurs : positif (le film soumis à des contraintes de

dilatation), nul (absence complète des contraintes) et négatif (le film est soumis à des contraintes de compression).

Le paramètre de maille est calculé à partir d'une relation entre la distance interréticulaire et les indices de Miller (h, k, l). Dans notre étude, le Ni a une structure cubique, donc le paramètre de maille est donné [23, 24]:

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

avec : a (Å) est le paramètre de maille, λ est la longueur d'onde des rayons X (λ_{Cu} = 1.5406 Å), θ est l'angle de diffraction et h, k et l sont les indices de Miller.

Sur la figure III. 3, nous avons montré l'évolution du paramètre de maille a (Å) en fonction de l'épaisseur du film de Ni pour le système Ni/substrats. Indépendamment de type du substrat (verre, Si (111) et mica), nous avons remarqué que le paramètre de maille diminue d'une façon monotone avec l'augmentation de l'épaisseur jusqu'à une valeur inférieure à celle de Ni_{massif}. Notons que la valeur du paramètre de maille de Ni massif est égale 3.5240 Å [25].

Pour la série d'échantillons de Ni/verre, l'évolution du paramètre de maille présente une valeur maximale égale 3.551 ± 0.003 Å pour t = 9 nm, ensuite une diminution monotone jusqu'à une valeur minimale de a = 3.516 ± 0.002 Å pour t = 50 nm, puis on remarque une légère diminution jusqu'à une valeur de a = 3.516 ± 0.002 Å pour une épaisseur t = 163 nm. La déformation ε^{hkl} (Table. III. 3) varie (en valeur absolue) entre 0.14 ± 0.01 et 0.77 ± 0.05 %. Les séries de Ni/Si (111) et Ni/mica montrent une diminution monotone du paramètre de maille avec l'augmentation d'épaisseur. Cette diminution varie de 3.543 ± 0.003 Å pour t = 9 nm jusqu'à 3.522 ± 0.002 Å pour t = 163 nm et de 3.552 ± 0.003 Å (à t= 9 nm) jusqu'à 3.515 ± 0.002 Å (à t= 163 nm) pour Ni/Si (111) et Ni/mica, respectivement. Le même comportement a été observé pour la déformation (Table. III.3), de sorte qu'elle diminue de 0.55 ± 0.06 % jusqu'à 0.020 ± 0.001 % et de 0.79 ± 0.06 % jusqu'à 0.08 ± 0.01 % pour Ni/Si (111) et Ni/mica, respectivement. Dans les trois séries, nous avons remarqué qu'il y a moins de contraintes dans la série Ni/Si (111) que dans la série Ni/verre et de Ni/mica. Nous pouvons dire ici que cette différence est probablement due à l'effet du substrat sur le paramètre de maille de la couche déposée.

L'évolution du paramètre de maille et de la déformation pour les séries Ni/Cu et Ni/Al_2O_3 est pratiquement différente de celle des autres séries (Ni/verre, Ni/Si (111) et Ni/mica). La série de Ni/Cu montre une diminution monotone du paramètre de maille avec

l'épaisseur de a = 3.464 ± 0.002 Å jusqu'à a= 3.444 ± 0.002 Å, toutes ces valeurs du paramètre de maille sont inférieures à celle de Ni_{massif} et aussi inférieures à celles de reste des séries. Nous avons remarqué que la déformation dans cette série est inferieure à zéro (0 %) et augmente (en valeur absolue) de façon monotone avec l'augmentation de l'épaisseur. Cette augmentation est probablement liée au type du substrat. Par contre pour la série de Ni/Al_2O_3, nous avons remarqué que toutes les valeurs de a (Å) sont inférieures à celle de massif. Nous avons observé aussi une augmentation monotone du paramètre de maille avec l'épaisseur de 3.465 ± 0.003 Å jusqu'à 3.517 ± 0.002 Å. Cette série présente des valeurs de la déformation inférieures à zéro. La déformation diminue progressivement avec l'augmentation de l'épaisseur. Notons que l'augmentation du paramètre de maille est dû probablement à présence des impuretés comme les atomes d'oxygène dans la maille de Ni qui impose une augmentation du paramètre de maille du Ni [26]. Notons que dans notre cas, on n'a pas observé un pic NiO, probablement en raison de la disparition rapide de l'oxygène dans la couche de Ni [27].

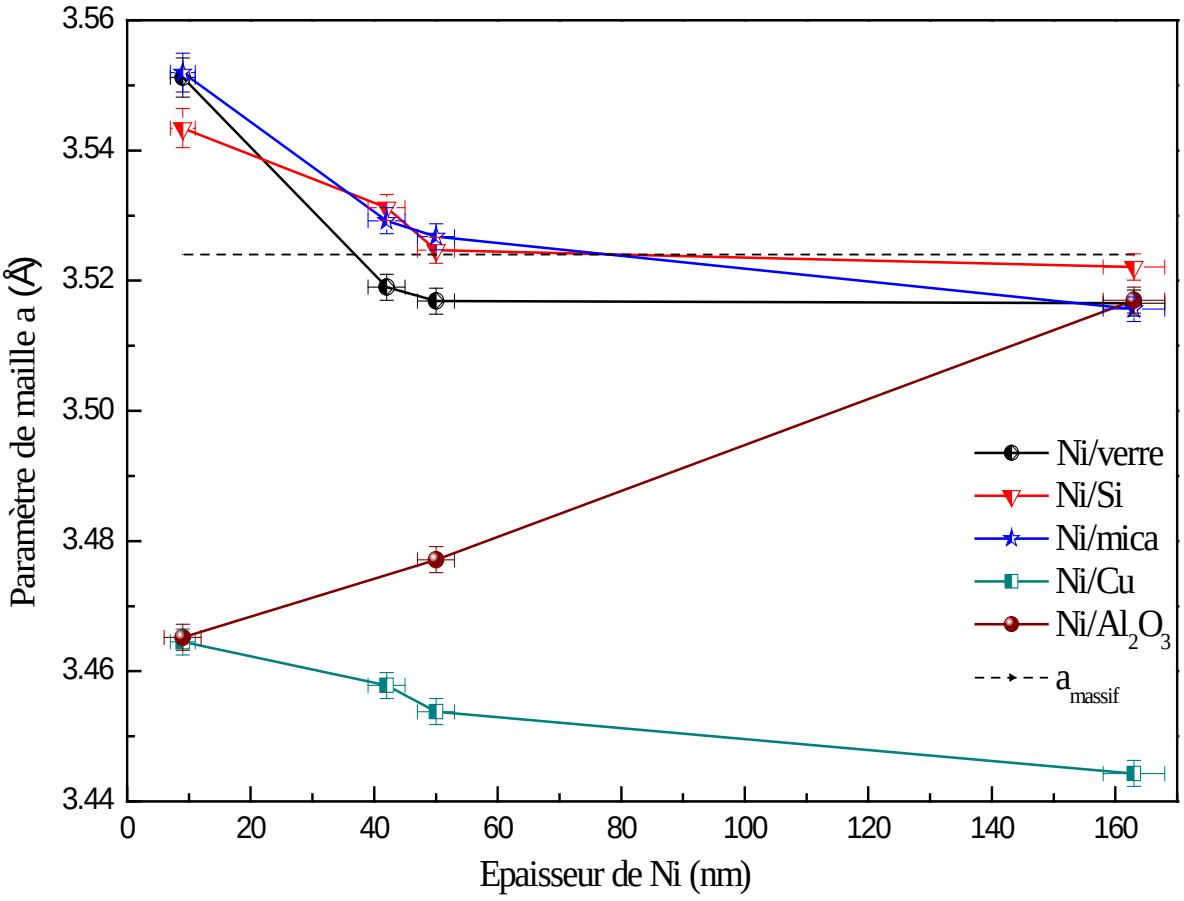


Fig. III. 3. *Evolution du paramètre de maille a (Å) en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/substrats.*

Notons que la diminution de la déformation en fonction de l'épaisseur pour les films déposés sur les substrats de verre, Si (111), mica et Al_2O_3 indique qu'il y a une relaxation des contraintes avec l'augmentation de l'épaisseur. On conclut que dans les couches minces de Ni déposées sur les différents substrats, le changement dans le paramètre de maille est dû probablement aux contraintes résiduelles, ou à la présence des atomes d'oxygène dans les grains et aussi è l'effet du substrat qui peut jouer un rôle important dans l'origine des contraintes.

Dans un travail précédent [1], nous avons préparé des couches minces de Ni par évaporation sous vide, dans une gamme d'épaisseurs varie de 28 à 200 nm. Cette gamme d'épaisseurs présente des valeurs de la déformation allant de 0.81 à 0.07 % et de 0.59 à 0.77 % pour Ni/verre et Ni/Si, respectivement. Ainsi que C. Nacereddine et al. [2], ont trouvé des valeurs de la déformation des couches minces de Ni, préparées par évaporation sous vide sur des substrats de Cu, pour une gamme d'épaisseurs allant de 31 à 165 nm, relativement grandes (de -0.74 à -0.31 %) par rapport aux nôtres, et le contraire pour la série de Ni/verre (de -0.65 à -0.26 %). Notons que V. Volkov et al. [28], ont élaboré des couches minces de Ni/Si, par deux techniques, pulvérisation magnétron (RF) et évaporation par bombardement électronique. Les auteurs ont obtenu un paramètre de maille a = 3.61 Å (équivalent de la déformation de 2.4 %) à t = 3.2 nm et 3.57 Å (équivalent de la déformation1.3 %) à t = 5 nm. On peut également citer M. Yu et al. [14] qui ont obtenu les valeurs de a = 3.5245 Å (équivalent de la déformation de 0.015 %) pour des couches minces de $Ni/SiO_2/Si$ préparées par pulvérisation magnétron DC à t= 200 nm. Les couches minces de Ni préparées par Y. Yang et al. [20] déposées sur des substrats de SiO_2/Si par la pulvérisation magnétron DC, montrent une valeur de la déformation égale à 0.15 % pour t= 280 nm.

Table. III. 3. *Déformation ε (%) et épaisseur de la couche mince de Ni du système Ni/substrats.*

	Déformation < ε (%) >				
t (nm)	Ni/verre	Ni/Si	Ni/mica	Ni/Al_2O_3	Ni/Cu
9 ± 1	0,77 ± 0.05	0,55 ± 0.06	0,79 ± 0.06	-1,67 ± 0.04	-1,69 ± 0.04
42 ± 2	-0,14 ± 0.01	0,20 ± 0.01	0,15 ± 0.01	*	-1,88 ± 0.04
50 ± 2	-0,20 ± 0.01	0,02 ± 0.001	0,08 ± 0.01	-1,33 ± 0.03	-1,99 ± 0.04
163 ± 3	-0,21 ± 0.01	-0,05 ± 0.003	-0,24 ± 0.04	-0,20 ± 0.01	-2,26 ± 0.04

II. 3. 3. Evolution de la taille moyenne des grains

L'analyse de la diffraction des rayons X est un outil très important pour étudier la croissance cristalline des couches minces. Il nous permet de calculer la taille moyenne des grains qui peut jouer un rôle important dans les propriétés physiques (électriques, magnétiques …) des couches minces.

La taille moyenne des grains, < D (nm) >, a été calculée à partir des spectres de la diffraction des rayons X relatifs aux différentes épaisseurs et pour les différents substrats. L'affinement des profils des raies des spectres de la diffraction X a été effectué à l'aide du logiciel High-Score [6]. La taille moyenne des grains a été calculée à l'aide de la relation de Scherrer incluse dans le logiciel High-Score et qui est donnée par la relation suivante [29]:

$$< D(nm) > = \frac{\mathrm{K}.\lambda}{\beta_L \cos\theta} \qquad \text{(III. 3)}$$

Avec : K est la constante de Scherrer (ici K = 0.9), λ est la longueur d'onde de la raie $K\alpha_1$ du rayonnement X, θ est l'angle de diffraction, et β_L est la contribution de la Lorentzienne à la largeur vraie β (β_L traduit l'effet de la taille des cristallites).

La figure III. 4 représente l'évolution de la taille moyenne des grains en fonction de l'épaisseur et du substrat pour le système Ni/substrats.

Pour la série de Ni/verre, l'évolution de la taille moyenne des grains des films de Ni présente une augmentation monotone en fonction de l'épaisseur. La plus faible valeur de D = 4.4 ± 0.3 nm est enregistrée pour une épaisseur t = 9 nm. Alors que la plus grande valeur de la taille moyenne des grains est égale à 13.7 ± 0.7 nm correspond à une épaisseur de t = 163 nm. Le même comportement a été observé pour la série Ni/Si (111). En effet, une augmentation monotone de < D (nm) > avec l'augmentation de l'épaisseur a été remarquée. D varie de 5 ± 0.3 nm pour t= 9 nm jusqu'à 15 ± 0.6 nm pour une épaisseur de 163 nm. Dans la série Ni/mica, la taille moyenne des grains augmente de façon progressive pour les faibles épaisseurs. Puis, une légère augmentation de < D > en fonction de t a été observée. Une valeur minimale de D = 5.6 ± 0.3 nm est notée dans cette série pour t = 9 nm et une valeur maximale égale 8.5 ± 0.4 nm est enregistrée pour t = 163 nm.

Si on fait une comparaison entre les séries déposées sur le verre, Si(111) et le mica, on trouve que pour les faibles épaisseurs (9 nm $\leq$ t $\leq$ 50 nm), la taille moyenne des grains D (Ni/mica) est supérieure à D (Ni/Si) et D (Ni/verre). Dans cette gamme d'épaisseurs, la série Ni/verre présente la plus faible taille moyenne des grains D = 4.4 ± 0.3 nm pour t = 9 nm.

Alors que la série Ni/mica présente la plus grande taille moyenne des grains D = 5.6 ± 0.3 nm pour la même épaisseur. D'autre part, pour les grandes épaisseurs, la série de Ni/Si présente la plus grande taille D = 15 ± 0.7 nm à t = 163 nm et la série Ni/mica montre la plus faible taille D = 8.5 ± 0.4 nm pour la même épaisseur. Nous pouvons dire ici que l'augmentation de la taille moyenne des grains en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni est due à l'accumulation des grains avec l'augmentation de l'épaisseur. Nous concluons donc que dans les séries Ni/verre, Ni/Si et Ni/mica, la taille moyenne des grains augmente avec l'augmentation de l'épaisseur et selon le type du substrat.

La série de Ni/Cu présente un comportement totalement différent de celui des trois premières séries (Ni/verre, Ni/Si et Ni/mica). En effet, on observe une diminution monotone de D avec l'augmentation de l'épaisseur. Une valeur maximale de D égale à 6 ± 0.3 nm est notée pour une épaisseur de t = 9 nm, alors qu'une valeur minimale de D = 4.8 ± 0.4 nm est marquée pour t= 163 nm. La série de Ni/Al_2O_3 présente une variation aléatoire, tel que D varie entre 4 ± 0.2 nm et 14.1 ± 0.7 nm.

Lorsqu'on compare les valeurs de la taille moyenne des grains dans ce système Ni/substrats (verre, Si, mica, Cu et Al_2O_3) on trouve que : (i) la série de Ni/ Al_2O_3 possède la plus faible valeur de D (D= 4 ± 0.2 nm pour t= 50 nm) et la série de Ni/Si possède la plus grande valeur de D (D= 15 ± 0.6 nm à t= 163 nm). (ii) Pour les séries de Ni/verre, Ni/Si, Ni/mica et Ni/Cu, D (Ni/Cu) présente la plus grande (faible) valeur de taille moyenne des grains pour la plus faible (grande) épaisseur. Nous pouvons déclarer clairement que cette variation est due à l'effet du type de substrat.

A titre de comparaison, les couches minces de Ni/Al_2O_3 préparées par Z. Li et al. [9] montrent une taille des grains égale à 13 nm pour une épaisseur de t= 90 nm. Par la méthode sol-gel, les couches minces de Ni/Al_2O_3 préparées par M. H. Amin et al. [30], présentent une taille des grains de 15.9 nm. On remarque que ces valeurs trouvées sont similaires à celle que nous avons trouvée par évaporation sous vide pour une épaisseur de 163 nm. A. M. Thron et al. [31] ont trouvés une taille des grains varie de 15 et 76 nm pour les couches minces de Ni/Si préparées par la pulvérisation magnétron DC. Cette gamme des tailles est supérieure à celle que nous avons trouvée dans ce travail. Des valeurs similaires à celles de ce travail, ont été trouvées dans un travail précédent [1], tel que la série de Ni/verre déposée à une vitesse de v_1= 13 nm/min montre une taille variée de 5.4 à 14 nm, alors que à v_2= 22 nm/min, D varie de 13.1 à 10.8 nm. Pour Ni/Si, D augmente de 8.9 jusqu'à 14.7 nm (v_1) et de 9.1 à 10.6 nm (v_2).

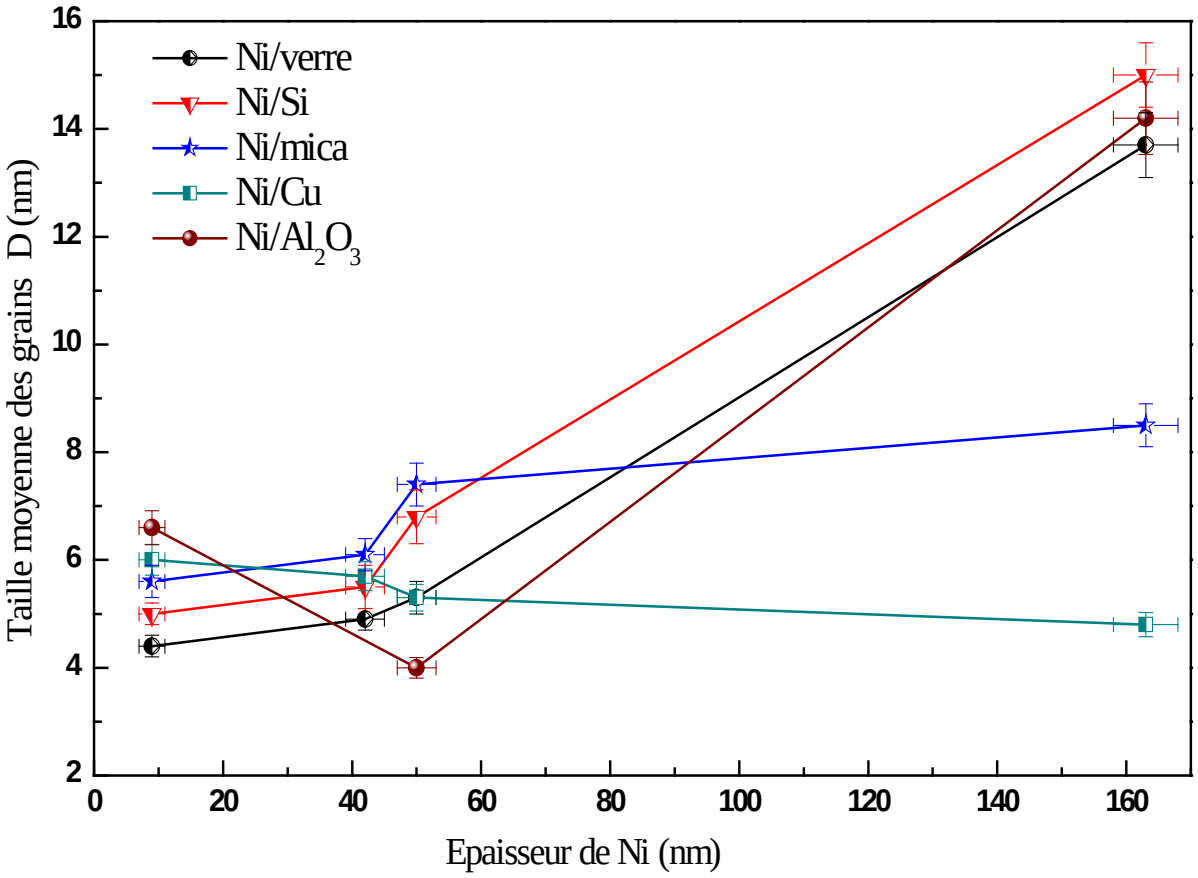


Fig. III. 4. *Evolution de la taille moyenne des grains <D (nm)> en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/substrats.*

Aussi par la même méthode d'élaboration, C. Nacereddine et al. [2] trouvent des valeurs supérieures par rapport à celles que nous avons trouvées. Les auteurs ont étudié les couches minces de Ni/verre et Ni/Cu pour une gamme d'épaisseurs allant de 31 à 165 nm. La taille moyenne de grains D (Ni/verre) varie de 16 à 26 nm et D (Ni/Cu) varie de 18 à 29 nm. On peut citer les valeurs de D des couches minces de Ni/Si (100) préparées par pulvérisation magnétron DC trouvées par J. Xu et al. [15], pour une épaisseur t= 180 nm, la taille moyenne des grains D = 17 nm. Alors que les couches minces de Ni préparées par épitaxie par jets moléculaires (MBE) sur des substrats Si (111) ont une taille moyenne des grains proche de nos valeurs, D = 10 nm pour une épaisseur t = 27.5 nm [32]. On peut noter que les couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre par pulvérisation D.C, ont une taille moyenne des grains D = 16 nm pour t = 140 nm [33]. Les valeurs de la taille moyenne des grains trouvées par ces derniers auteurs sont proches à nos valeurs pour les mêmes types du substrat. K. F. Chiu et al. [34] ont trouvé des valeurs de D des couches minces Ni/Al_2O_3, préparées par pulvérisation magnétron RF, proche de nos résultats, D entre 5 et 10 nm. S. Amoruso et al. [35] ont trouvé pour des couches minces de Ni/mica préparées par ablation

laser, une valeur moyenne de D (40 nm) très grande comparant à celles que nous avons trouvées pour les films déposés sur le même substrat. Aussi, J. B. Yi et al. [36] ont obtenu des valeurs de D allant de 4 nm (à t = 15 nm) à 50 nm (à t= 100 nm) pour les couches minces de Ni préparées par pulvérisation magnétron sur des substrats de verre. Pour la faible épaisseur, la valeur de D est comparable à nos valeurs. Alors que pour la grande épaisseur, la valeur de D est très grande à nos valeurs de D.

II. 4. Analyse microstructurale

Le microscope électronique à balayage peut être utilisé pour l'étude de la morphologie et la composition de la surface des échantillons sous fort grossissement. Par rapport au microscope optique, il présente l'avantage essentiel d'une résolution accrue et d'une profondeur de champ importante [37], mais en plus, le bombardement d'une surface par des électrons peut induire tout un ensemble de phénomènes exploitables pour l'analyse.
Pour nos échantillons, les expériences de MEB ont été réalisées au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger et à l'Université de Abderrahmane Mira Bejaia.

Les figures III.5, 6, 7 et 8 représentent les micrographies obtenus par la microscopie électronique à balayage pour les couches minces de Ni déposées sur verre, Si (111), Cu et Al_2O_3. La première remarque à faire est que les surfaces présentées sur ces images sont rugueuses, avec des grains de différentes tailles mais de forme circulaire pour la plupart.

Les images de la figure III. 5 correspondent à la série des couches minces de Ni/verre d'épaisseur 50 et 163 nm.

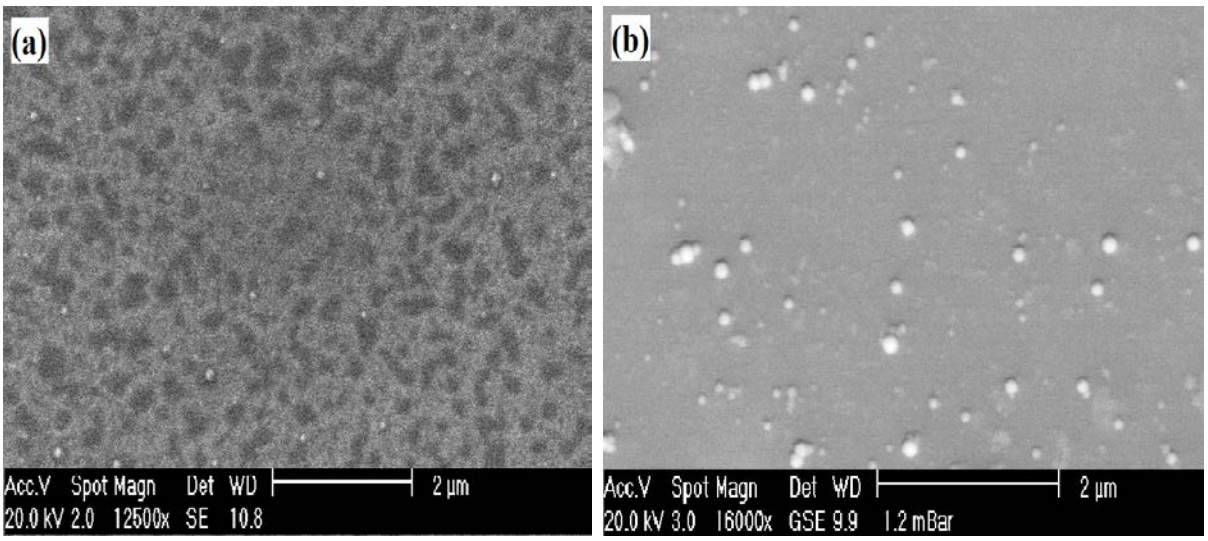


Fig.III.5. *Images par MEB des surfaces des couches minces de Ni/verre: (a)50nm et (b) 163nm.*

L'image (a) d'épaisseur 50 nm représente une couche mince discontinue (relativement poreuse) et moins dense par rapport à la couche d'épaisseur 163nm. Les plages grises correspondent probablement à la matrice de Ni et les petits grains de forme circulaire dans les plages noires correspondent aux jets de Ni pendant l'évaporation. Il semblerait aussi que pour la surface de cet échantillon, les îlots sont divergents, i.e. la couche de Ni n'est pas vraiment continue, cette discontinuité de Ni/verre peut être due à l'état amorphe du substrat de verre. L'image (b) d'épaisseur 163 nm, représente une couche très dense avec une faible porosité (continue), ainsi que la présence des grains pratiquement sphériques due probablement au jet par évaporation. On conclut que pour ces épaisseurs, la porosité de la couche diminue et la densité de la couche augmente avec l'épaisseur.

Les images de la figure III. 6 correspondent à la série des couches minces de Ni/Si (111). L'image (a) d'épaisseur 42 nm représente une couche mince un peu poreuse et moins dense par rapport à celle de l'épaisseur 50 nm. On remarque des plages grises qui correspondent probablement à la matrice de Ni et on voit aussi des grains de forme presque circulaire correspondant aux jets de Ni pendant l'évaporation, mais le nombre est très faible. L'image (b) d'épaisseur 50 nm, représente une couche très dense avec une faible porosité, ainsi que l'existence des clusters (des îlots) de différentes tailles. Lorsque ces derniers acquièrent une taille suffisante, ils se rejoignent les uns aux autres pour constituer des grains de taille plus grande.

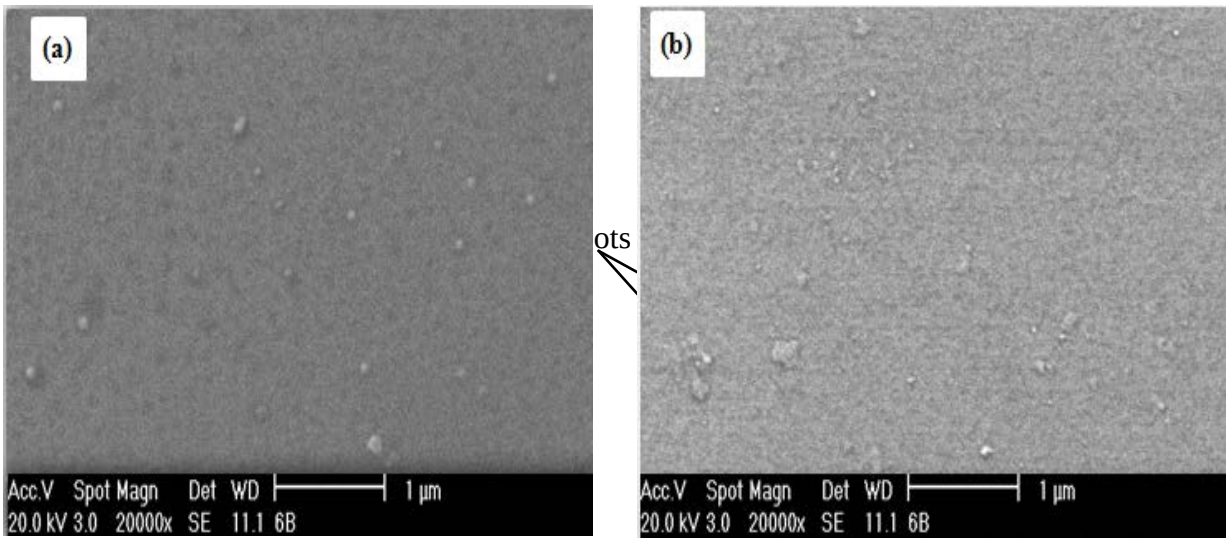


Fig.III.6. *Images par MEB des surfaces des couches minces de Ni/Si(111): (a) 42 nm et (b) 50 nm.*

Sur la figure III. 7, nous avons représenté deux images de la série Ni/Cu d'épaisseurs 9 nm et 50 nm. Pour l'image (a) qui correspond à une couche mince d'épaisseur 9 nm, on observe des gros grains de forme circulaire et de taille de 45 nm à 100 nm. Entre ces gros grains, il y a d'autres grains de taille plus petite (sous grains) de l'ordre de 15 nm, de forme circulaire est aussi majoritaires. On remarque aussi la présence des gros grains résultant de la coalescence (accumulation) entre plusieurs grains de petite taille. Pour l'image (b) qui correspond à une couche d'épaisseur 50 nm, la surface montre une grande rugosité et moins d'uniformité par rapport à la surface de la couche d'épaisseur 09 nm. Sur cette image, les grains qui apparaissent ont une forme circulaire avec des tailles différentes (grandes, moyennes et petites). Il est apparent que ces grains sont bien assemblés et bien collés. Notons que ce phénomène de soudage des grains est dû probablement à l'augmentation de l'épaisseur de la couche. Notons aussi que sur les images de cette série, on voit les traces du polissage mécanique comme des lignes sombres. Les surfaces des films de cette série ne sont pas uniformes et relativement rugueuses. Ces dernières observations peuvent être dues à la rugosité du substrat de Cu (où le Ni se dépose dans les « creux » et des traces du polissage mécanique du substrat de Cu). La forte densité des îlots sur le substrat de Cu peut être due à la différence de mobilité entre les atomes de la couche et ceux du substrat [37]. En effet, il a été rapporté qu'une forte interaction conduit à une densité d'îlots élevée [39]. En outre, il serait bon de mentionner que C. Nacereddine et al. [2] ont préparé des films de Ni par évaporation sous vide sur des substrats de cuivre (Ni/Cu). Les auteurs ont observé par MEB des tailles moyennes des grains entre 50 nm et 73 nm pour une épaisseur de 54 nm.

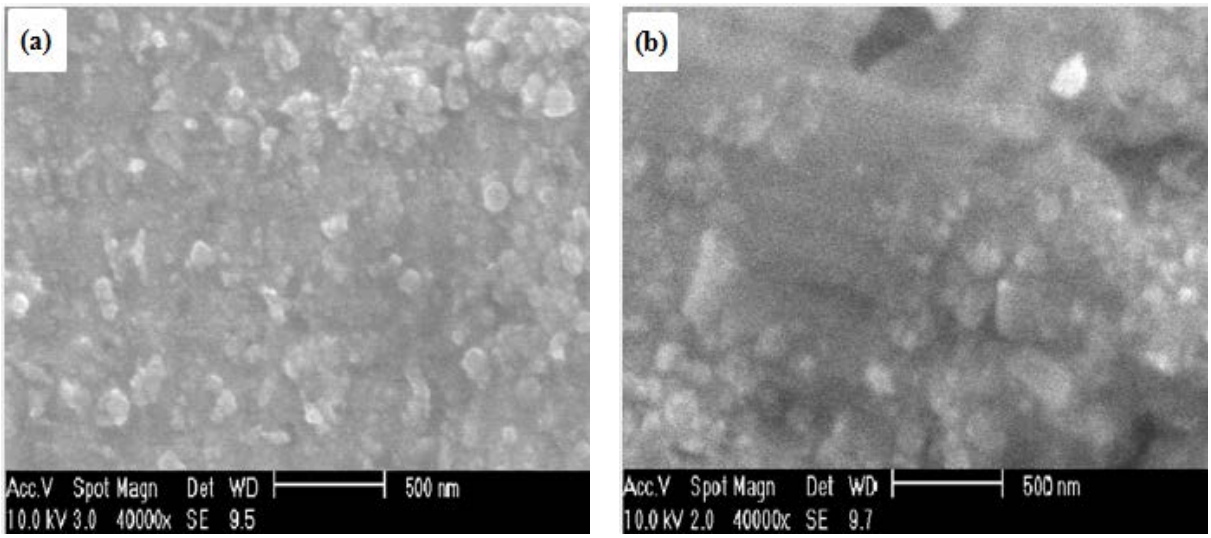


Fig. III. 7. *Images par MEB des surfaces des couches minces de Ni/Cu: (a) 09 nm et (b) 50nm.*

Les micrographies de la figure III. 8 correspondent à la série des couches minces de Ni/Al_2O_3. Sur la micrographie de l'échantillon d'épaisseur 50 nm, on voit que la surface de dépôt apparaît une grande rugosité et moins d'uniformité par rapport aux dépôts sur d'autres types du substrat. Les gros grains apparents sur l'image ne sont pas de nickel mais sont de la surface du substrat (Al_2O_3). Lorsqu'on change l'échelle pour le même échantillon, comme il est montré dans l'image (b), on remarque que la taille des grains de Ni est très faible par rapport à la taille des grains du substrat. Notons que, des structures similaires ont été trouvées par P. H. Bolt et al. [4] pour des films de Ni (des épaisseurs vont de 35 à 100 nm) déposés par évaporation sous vide sur des substrats Al_2O_3.

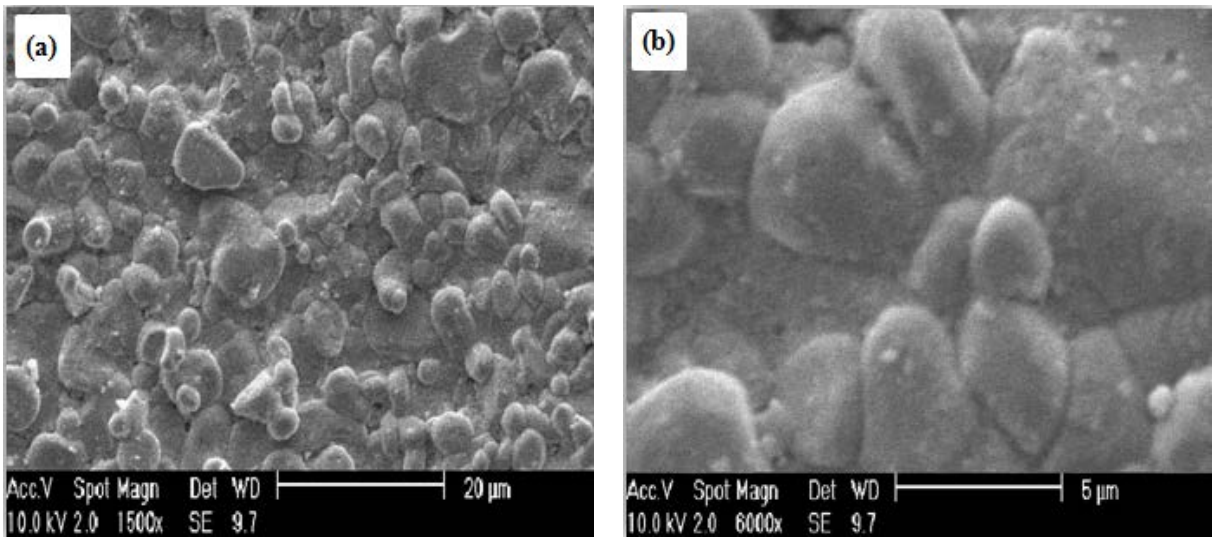


Fig.III.8. *Images par MEB des surfaces des couches minces de Ni/Al_2O_3 pour une épaisseur de 50 nm à différents agrandissements.*

III. Etude du système Ni/Cu/substrats

III. 1. Conditions d'élaboration des échantillons

Les poudres de Ni (99.99 %) et de Cu (99.99 %) sont placées dans deux nacelles différentes en tungstène (W) et en molybdène (Mo), respectivement. Les deux couches sont évaporées après avoir pris soin de dégazer chaque matériau et de réactualiser le vide initial. Notons que, les séries d'échantillons du système Ni/Cu/substrats (verre, Si (111), Cu, mica et CuZn) ont été réalisées par la même méthode d'évaporation et le même bâti de dépôt (MECA2000) sans détériorer le vide. Lors de dépôt de ce système, nous avons suivi les mêmes étapes pour réaliser un vide secondaire, puis on lance l'opération d'évaporation de la

couche de Cu sur tous les substrats et tout cela après l'injection de la densité et l'impédance acoustique de Cu pour contrôler les épaisseurs des couches déposées. Sans casser le vide, nous avons injecté la densité et l'impédance acoustique de Ni et changer la position de cartouche (connecteur du courant électrique) pour orienter le courant vers le creuset qui contient la poudre de Ni. Notons que l'opération d'évaporation de la couche de Ni a été effectuée sur les échantillons de Cu/substrats.

Table. III. 4*. Temps, pression et courant de dépôt des échantillons du système Ni/Cu/substrats.*

Système Ni/Cu/Substrats				
Dépôt №	Pression avant le dépôt (mbar)	Pression pendant le dépôt (mbar)	Temps de dépôt (s)	courant pendant le dépôt (A)
#1	$3.97\ 10^{-6}$	$1.37\ 10^{-5}$	31	254
#2	$5.5\ 10^{-6}$	$1.05\ 10^{-5}$	70	243
#3	$3.36\ 10^{-6}$	$1.44\ 10^{-5}$	278	243
#4	$2.14\ 10^{-6}$	$1.11\ 10^{-5}$	170	245
#5	$1.52\ 10^{-6}$	$1.58\ 10^{-5}$	330	234
#6	$3.86\ 10^{-6}$	$1.04\ 10^{-5}$	1680	254

III. 2. Mesure des épaisseurs

Par la même méthode de caractérisation (RBS), nous avons mesuré les épaisseurs des films de Ni et de la sous-couche de Cu dans le système de Ni/Cu/substrats (substrats : verre, Si (111), mica, Cu et CuZn) et calculé la vitesse de dépôt de chaque évaporation.

La figure III. 9 représente deux exemples des spectres de la RBS et leurs simulations exécutées par le logiciel SIMNRA (6.03). Les signaux du substrat (Si) et de dépôt sont bien séparés par une plage de très faible rendement qui détermine l'état d'interface. Par contre, nous avons remarqué que les deux pics de Cu et de Ni sont en chevauchement l'un avec l'autre. D'après le principe de base de la RBS : une grande différence de masse entre les deux atomes de la cible implique une bonne séparation des pics du spectre RBS, ce qui est ne pas le cas dans notre système ($_{58.69}^{28}Ni\ et\ _{63.55}^{29}Cu$). Ainsi, sur la figure III.9. a, le pic situé à l'énergie 1.53 MeV correspond à la couche de la surface (la couche de Ni d'épaisseur 14 nm) et le deuxième pic d'énergie 1.55 MeV correspond à la sous-couche de Cu (52 nm). Le palier du substrat de Si est posé à l'énergie 1.08 MeV.

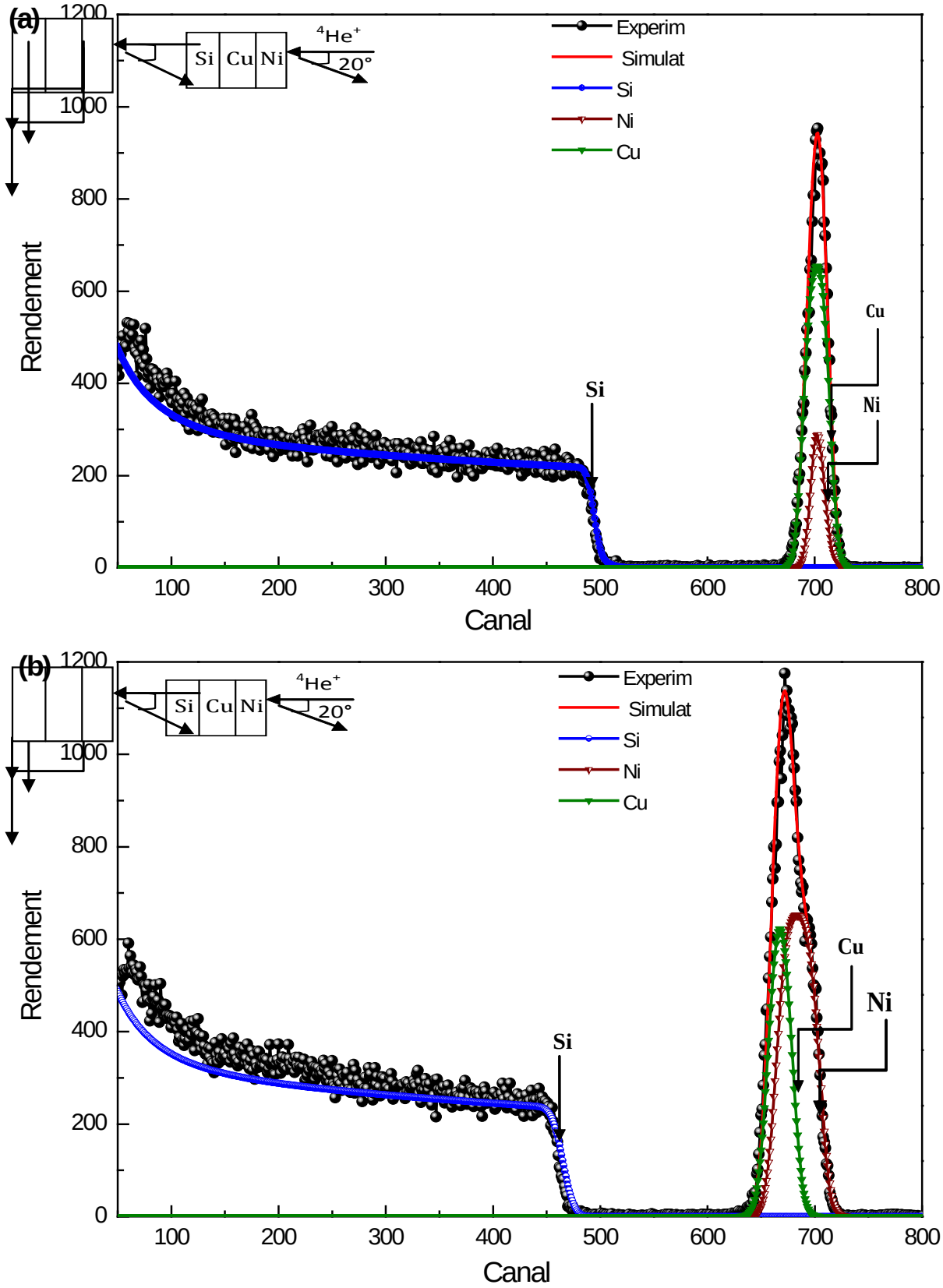


Fig. III. 9. *Exemples des spectres de la RBS présentent deux épaisseurs :*
(a) Ni (14nm)/Cu (52nm)/Si(111) et (b) Ni (67nm)/Cu (52nm)/Si(111).

Alors que sur la figure III.9. b, le pic qui correspond à la surface (la couche de Ni) est fixé toujours à la même énergie (1.53 MeV), tandis que le pic de Cu est décalé vers l'énergie 1.49 MeV. La même observation pour le palier de substrat qui se décale à une valeur de l'énergie de 1.01 MeV. Ce décalage ou bien la différence d'énergie augmente avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche de Ni et de la sous-couche de Cu. Le décalage du pic de Cu confirme l'effet de perte d'énergie avec la profondeur de la couche. Il est important de noter l'absence de l'interdiffusion entre les deux couches de Ni et de Cu, et aussi entre la couche de Cu et le substrat de Si. Il est intéressant de déclarer le bon état de la surface et de l'interface de dépôt.

Nous avons montré dans le tableau III.5 les différentes épaisseurs du système Ni/Cu/substrats (épaisseurs de Ni et épaisseurs de Cu), le temps de dépôt et la vitesse d'évaporation de chaque dépôt de la couche de Ni.

Cette technique (RBS) est utilisée pour identifier les épaisseurs, les interdiffusions entre les bicouches par exemple les bicouches de Ni/Ti/Si dans le travail de S. Petrovic et al. [40] et Au/Ni/Cu dans le travail de K.C. Hung et al. [41].

Table. III. 5. *Epaisseur de Ni et de Cu, temps et vitesse de dépôt de la couche mince de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

Système Ni/Cu/substrats				
Dépôt №	Epaisseur de Cu (nm)	Epaisseur de nickel (nm)	Temps de dépôt (S) de Ni	Vitesse de dépôt (Å/S) de Ni
# 1	52 ± 2	04 ± 0.5	31	1,3
# 2	27 ± 2	06 ± 1	70	0.9
# 3	52 ± 2	08 ± 1	278	0,3
# 4	52 ± 2	14 ± 2	170	0,8
# 5	90 ± 4	24 ± 2	330	0,7
# 6	52 ± 2	67 ± 3	1680	0,4

Pour ce deuxième système, les valeurs exposées dans ce tableau présentent une dépendance linéaire entre le temps de dépôt et l'épaisseur mesurée (sauf l'échantillon d'épaisseur t= 8 ± 1 nm). A partir de ce tableau, nous avons remarqué que l'épaisseur de la sous-couche de Cu donne une valeur constante pour les dépôts (# 1, # 3, # 4 et # 6), elle est d'ordre de 52 ± 2 nm. L'échantillon # 2 présente la plus faible épaisseur de la sous-couche de cuivre, cette épaisseur due au blocage de la balance à quartez pendant l'évaporation ; on n'a

aucun moyen pour contrôler l'épaisseur de la sous-couche de cuivre de ce dépôt. Alors que le dépôt (# 5) d'épaisseur t_{Cu}= 90 ± 4 nm possède une épaisseur différente du reste des épaisseurs. Cette différence est due à la fluctuation du courant pendant l'évaporation ce qui crée une boule de cuivre fusionnée (liquide) puis provoque la sublimation du cuivre sur les substrats. A cause de cette sublimation on n'a pas pu contrôler l'épaisseur de la sous-couche de Cu. D'autre part les épaisseurs des couches de Ni vont de 4 ± 0.5 à 67 ± 3 nm et le calcul de la vitesse de dépôt (le rapport de l'épaisseur sur le temps de dépôt) pour chaque dépôt donne une gamme de vitesse entre 0.3 Å/s et 1.3 Å/s. Après l'utilisation de la RBS, nous utilisons la DRX et le MEB pour étudier l'évolution de la structure cristalline (texture, paramètre de maille, déformation et taille moyenne des grains) en fonction de l'épaisseur et le type du substrat, et aussi pour voir la morphologie des dépôts.

III. 3. Analyse structurale par la diffraction des rayons X

III. 3. 1. Texture

Dans certains matériaux polycristallins, quelques orientations prédominent. Cette orientation préférentielle ou texture est due aux caractéristiques géométriques des cristaux. La connaissance de la texture est importante, car elle influe sur les propriétés physiques du matériau. Le processus de formation de la texture dépond de plusieurs paramètres comme : le type du substrat, la température de recuit, les conditions de dépôt, la structure du matériau élaboré et aussi les effets des multicouches et des bicouches sur cette texture.

La figure III.10 représente trois exemples des spectres de la diffraction des rayons X du système Ni/Cu/substrats : (a) Ni/Cu/verre, (b) Ni/Cu/Si(111) et (c) Ni/Cu/CuZn avec une épaisseur de 52 ± 2 nm pour le Cu et 67 ± 3 nm pour le Ni. Pour la série des bicouches déposée sur le verre (Fig. III. 10. a), les intensités des pics correspondant aux plans de Ni (111) et de Cu (111) sont les plus importantes sur toute la gamme de balayage. En plus de ces pics, nous avons remarqué l'apparition d'autres pics moins intenses correspondant aux plans Ni (200), Cu (200), Ni (220), Cu (220), Ni (311) et Cu (311). Après le calcul du rapport des intensités, nous avons trouvé que l'orientation préférentielle est suivant la direction <111> pour la couche de Ni et aussi pour la sous-couche de Cu.

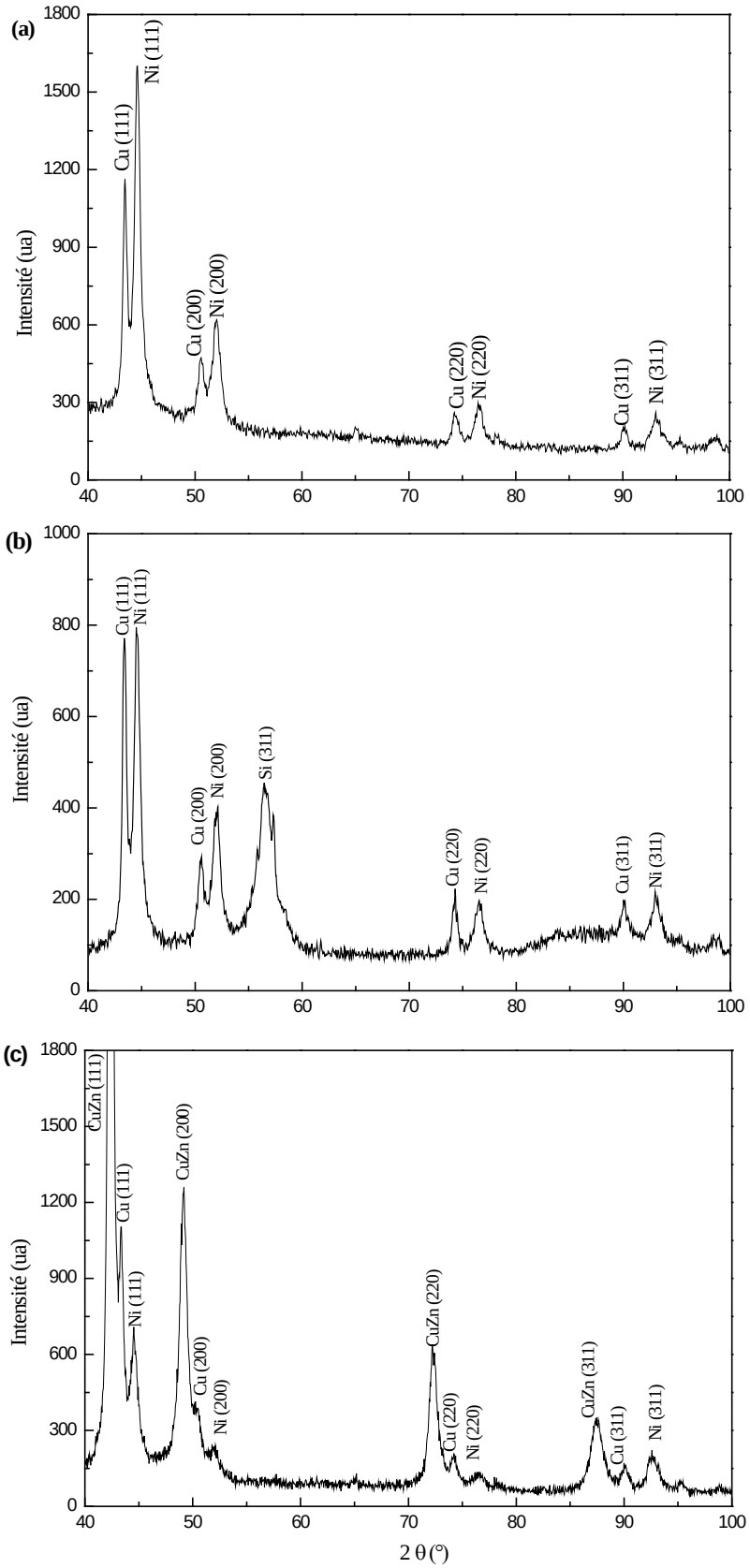


Fig. III. 10. *Exemples des spectres de la diffraction des rayons X du système Ni/Cu/substrats: (a) Ni/Cu/verre, (b) Ni/Cu/Si (111) et (c) Ni/Cu/CuZn pour les épaisseurs* t_{Ni} *= 67 nm et* t_{Cu} *= 52 nm.*

Les mêmes remarques ont été observées pour la série des bicouches de Ni/Cu/Si(111) (Fig. III. 10. b). En plus des pics cités précédemment, nous avons remarqué l'apparition de pic du substrat Si (311). Dans cette série la texture est suivant la direction < 111 > pour les films de Ni et aussi pour la sous-couche de Cu.

Pour la série de Ni/Cu/CuZn (Fig. III. 10. c), la texture est suivant la direction < 111 > pour la couche de Ni et aussi pour la sous-couche de Cu. Dans cette série, nous avons remarqué l'apparition de plusieurs pics correspondant aux plans (111), (200), (220) et (311) de Ni et aussi de Cu. En plus de ces pics, des pics très intenses du substrat de CuZn ont été observés. Nous n'avons pas remarqué les pics des phases d'interdiffusion, ce qui indique qu'il n'y a aucune réaction entre la couche de Ni et de Cu ou entre le Cu et les substrats.

Nous concluons donc que la texture ou bien l'orientation préférentielle est suivant la direction [111] de la structure cubique à faces centrées du Ni et aussi du Cu, pour toutes les épaisseurs dans toutes les séries. Nous pouvons affirmer ici que la sous-couche de Cu n'a pas provoqué un changement de la texture de nos films de Ni dans ce système. L'absence de l'effet de la sous-couche de Cu sur la texture est peut être due à la direction préférentielle de Cu qui est la même à celle de Ni.

Les résultats trouvés par S. Singh et al. [42] montrent que la texture des bicouches de Ni/Cu déposées sur des substrats de Si (111) est suivant la direction [111]. Il a été aussi reporté que pour les bicouches de Ni/Cu déposées sur des substrats de Si (100), préparées par H. Sadeghi et al. [43] présentent une texture suivant la direction [111]. La même texture a été trouvée par J. Pflaum et al. [44] sur les systèmes Ni/Au/verre et Ni/Au/mica, avec t_{Ni} qui varie entre 2 et 390 nm. On peut citer aussi les travaux de S. K. Ghosh et al. [45,46] sur le système Ni/Cu déposé sur des substrats en acier inoxydable (AISI SS 304), montrent une texture suivant la direction [111]. Ces résultats sont en bon accord avec nos résultats.

III. 3. 2. Evolution du paramètre de maille

Dans cette partie, nous avons étudié l'évolution du paramètre de maille et de la déformation des couches de Ni déposées par évaporation sous vide sur différents substrats en fonction de l'épaisseur avec la présence de la sous-couche de Cu. Dans ce système et à partir des spectres de la diffraction des rayons X, nous avons calculé le paramètre de maille des couches minces déposées, par le fit du pic principal correspondant à chaque couche.

La figure III.11 représente l'évolution du paramètre de maille en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni. A partir de cette figure, nous pouvons observer que

l'évolution du paramètre de maille en fonction de l'épaisseur présente le même comportement pour toutes les séries, de sorte que, nous pouvons distinguer deux régions. Dans la première région d'épaisseur de 4 ± 0.5 et 8 ± 1 nm et de 4 ± 0.5 à 6 ± 1 nm pour Ni/Cu/verre et Ni/Cu/Si (111), respectivement, le paramètre de maille diminue de façon monotone avec l'augmentation de l'épaisseur. Dans la seconde région, le paramètre de maille augmente progressivement pour se stabiliser à une valeur égale, dans la limite de l'incertitude expérimentale, à 3.5191 ± 0.003 Å pour Ni/Cu/verre et 3.5221 ± 0.003 Å pour Ni/Cu/Si (111). Toujours sur la même figure, dans la série Ni/Cu/mica, la variation du paramètre de maille considère deux stades avec deux comportements différents. Le premier stade présente une diminution progressive de a avec l'augmentation de l'épaisseur jusqu'à t= 14 ± 2 nm, au-delà de cette épaisseur, le paramètre de maille augmente rapidement avec t jusqu'à une valeur égale à 3.5163 ± 0.002 Å.

Le même comportement que celui de la série de Ni/Cu/mica a été observé pour la série de Ni/Cu/CuZn. En effet, on remarque une diminution progressive de a (Å) avec l'augmentation de l'épaisseur jusqu'à t= 14 ± 2 nm, puis une augmentation de a (Å) avec l'augmentation de t jusqu'à une valeur maximale égale à 3.5267 ± 0.003 Å supérieur à celle de Ni massif. Par contre pour la série de Ni/Cu/Cu, le paramètre de maille montre une diminution jusqu'à t= 24 ± 2 nm suivie par une légère augmentation. Néanmoins, le paramètre de maille dans cette série est très inférieur à celui de Ni massif.

La diminution du paramètre de maille avec l'augmentation de l'épaisseur de Ni peut être attribuée à l'effet de la sous-couche de cuivre sur les films de faibles épaisseurs. Rappelons que, le paramètre de maille de Cu est supérieur à celui de Ni. D'autre part, l'augmentation du paramètre de maille est probablement attribuée à une relaxation des contraintes lorsque l'épaisseur de la couche de Ni augmente.

Ce qui concerne l'évolution du strain, la série de Ni/Cu/Cu montrent les plus grandes valeurs par apport à celles des autres séries (voir le tableau III. 6). Si on fait une comparaison entre les séries pour une épaisseur donnée (on exclu la série Ni/Cu/Cu qui donne les plus grandes valeurs du strain.), on voit que pour la plus faible épaisseur (t= 4 ± 0.5 nm), la série Ni/Cu/CuZn présente la valeur la plus faible de la déformation(-0,05 ± 0.004 %), d'autre part, la série de Ni/Cu/Si (111) donne la plus grande valeur de la déformation (-0,62 ± 0.04 %). Alors que, pour la plus grande épaisseur (t= 67 ± 3 nm), la série de Ni/Cu/verre présente la plus grande valeur de la déformation (-0.34 ± 0.02 %), mais la plus faible valeur de la déformation est attribuée à la série de Ni/Cu/Si(111) (-0,05 ± 0.01 %). Dans ce tableau, nous

avons remarqué la présence d'une épaisseur critique de Ni (t_{Cr}), à partir de laquelle on observe un changement dans le comportement du strain. Cette épaisseur change selon le type du substrat. Pour $t < t_{Cr}$, on remarque que la déformation augmente avec l'augmentation de l'épaisseur. Alors que pour $t > t_{Cr}$, on trouve que la déformation diminue progressivement avec l'augmentation de l'épaisseur.

Table. III. 6. *Déformation ε (%) et épaisseur de la couche mince de Ni du système Ni/Cu /substrats.*

t (nm)	***Déformation ε (%)***				
	Ni/Cu/verre	Ni/Cu/Si(111)	Ni/Cu/mica	Ni/Cu/Cu	Ni/Cu/CuZn
4 ± 0.5	-0,16 ± 0.01	-0,62 ± 0.04	-0,12 ± 0.01	-1,88 ± 0.05	-0,05 ± 0.004
6 ± 1	-1,37 ± 0.05	-1,34 ± 0.05	-0,18 ± 0.01	-2,00 ± 0.05	-0,08 ± 0.006
8 ± 1	-1,72 ± 0.05	-1,05 ± 0.04	-1,88 ± 0.05	-2,05 ± 0.05	-0,32 ± 0.02
14 ± 2	-0,66 ± 0.04	-0,77 ± 0.04	-2.00 ± 0.05	-2,13 ± 0.05	-0,59 ± 0.03
24 ± 2	-0,22 ± 0.02	-0,34 ± 0.02	-1,90 ± 0.05	-2,20 ± 0.05	-0,51 ± 0.03
67 ± 3	-0,34 ± 0.02	-0,05 ± 0.01	-0.22 ± 0.02	-1,84 ± 0.05	0,08 ± 0.007

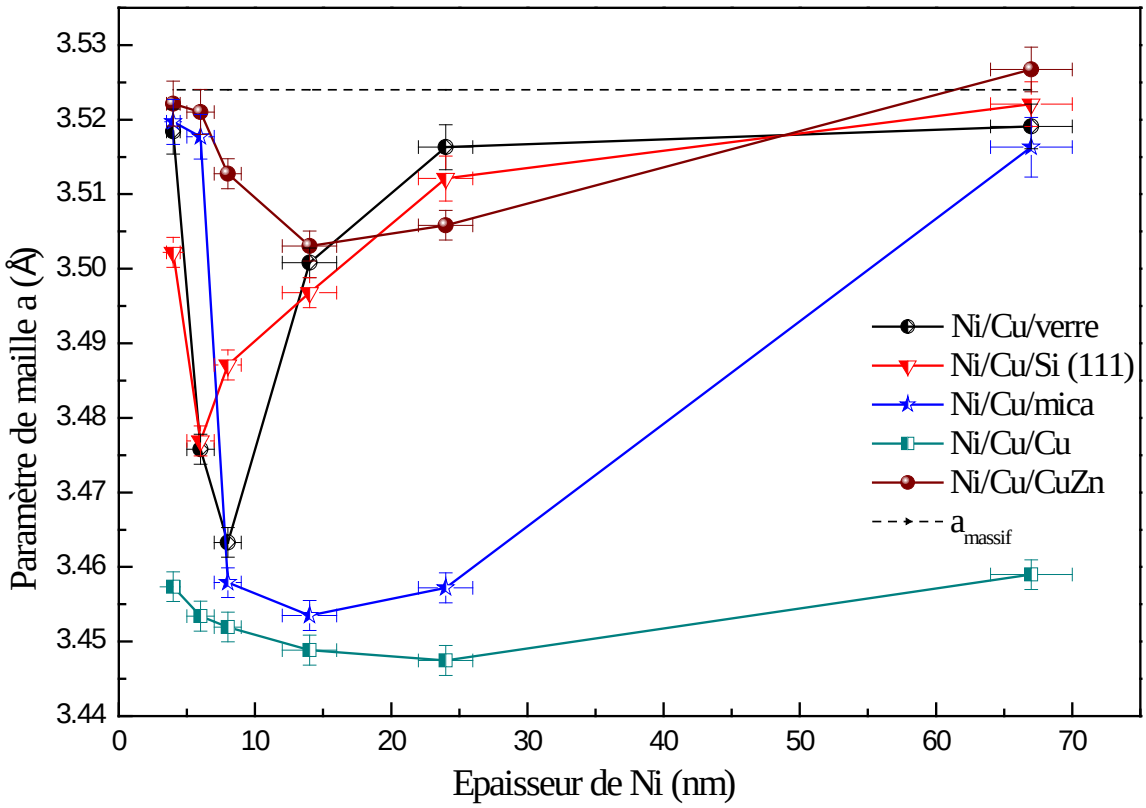


Fig. III.11. *Evolution du paramètre de maille a (Å) en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

A titre de comparaison, C. A. F. Vaz et al. [47] trouvent des valeurs de la déformation de Ni varient de -1.60 ± 0.03 % à -1.86 ± 0.07 % pour les multicouches de Au/Cu/Ni/Cu/Si (pour une épaisseur de Cu varie entre 2 nm et 9 nm). Ainsi que T. G. Kim et al. [48] ont trouvé des valeurs de la déformation varient de + 1.12 % jusqu'à + 0.72 % pour le système Cu/Ni/Cu/Si préparées par épitaxie. Le système Cu/Ni/Cu(001) préparé par épitaxie par H. M. Hwang et al. [49] présente une déformation varie de 0.7 % pour une épaisseur de 6 nm jusqu'à 0.6 % pour t= 9 nm.

III. 3. 3. Evolution de la taille moyenne des grains

Dans cette section, nous avons étudié l'effet de la sous-couche de Cu sur l'évolution de la taille moyenne des grains de la couche mince de Ni en fonction de l'épaisseur (t_{Ni}).

La figure III. 12 représente l'évolution de la taille moyenne des grains en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni. On voit clairement que la taille moyenne des grains de la série Ni/Cu/verre augmente rapidement et de façon monotone de 3.4 ± 0.4 nm pour t= 4 ± 0.5 nm jusqu'à 14.1 ± 1 nm pour t= 67 ± 3 nm. Un comportement similaire à celui de Ni/Cu/verre a été observé pour la série de Ni/Cu/CuZn. Dans cette série, la taille moyenne des grains augmente de façon monotone avec l'augmentation de l'épaisseur de 5.4 ± 0.12 nm pour t= 4 ± 0.5 nm jusqu'à 14.3 ± 0.2 nm pour t= 67 ± 3 nm. Par contre, pour la série de Ni/Cu/Si (111), la taille moyenne des grains décroît de façon monotone avec l'augmentation de l'épaisseur de 10 ± 1 nm pour t= 4 ± 0.5 nm jusqu'à 5.6 ± 0.7 nm pour t= 14 ± 1 nm, puis au-delà de cette épaisseur, D augmente progressivement avec l'épaisseur jusqu'à 13 ± 1 nm pour la plus grande épaisseur. Le même comportement a été observé pour la série Ni/Cu/mica. En effet, la taille moyenne des grains diminue de façon monotone de 12.2 ± 1 nm pour t= 4 ± 0.5 nm jusqu'à 5.8 ± 0.7 nm pour t= 24 ± 2 nm. Au-delà de cette épaisseur, D augmente jusqu'à 10.3 ± 1 nm pour t= 67 ± 3 nm. Pour la série Ni/Cu/Cu, la taille moyenne des grains diminue avec l'augmentation de l'épaisseur jusqu'à 5.3 ± 0.14 nm pour t= 14 nm, puis augmente jusqu'à 12.8 ± 0.2 nm à t= 67 ± 3 nm. Pour les séries des bicouches déposées sur le Si (111), mica et Cu, la série de Ni/Cu/Cu présente les valeurs les plus faibles de la taille moyenne des grains dans la gamme de faibles épaisseurs (t_{Ni} < 24 nm).

Quand on fait une comparaison entre les valeurs de la taille moyenne des grains pour le système Ni/Cu/substrats (verre, Si (111), mica, Cu et CuZn) on voit que : (i) Pour la plus faible épaisseur (t= 4 ± 0.5 nm), D (Ni/Cu/mica) présente la plus grande valeur (D= 12.2 ± 1 nm) et D (Ni/Cu/verre) la plus petite valeur (D= 3.4 ± 0.4 nm). Par contre, pour la plus grande

valeur de l'épaisseur (t= 67 ± 3 nm), D (Ni/Cu/CuZn) présente la plus grande valeur (D= 14.3 ± 0.2 nm) et D (Ni/Cu/mica) présente la plus petite valeur (D= 10.3 ± 1 nm).

Les séries Ni/Cu/Si, Ni/Cu/mica et Ni/Cu/Cu présentent une épaisseur critique de Ni (t_{Cr}). Lorsque $t < t_{Cr}$, la taille moyenne des grains diminue de façon monotone avec l'augmentation de l'épaisseur. Alors que pour $t > t_{Cr}$, la taille moyenne des grains augmente progressivement avec l'épaisseur. Notons que l'épaisseur critique varie d'un substrat à autre. Une corrélation claire entre la variation de la déformation et de la taille moyenne des grains a été observée dans ce système. Lorsque la taille des grains diminue ($t < t_{Cr}$), le stress augmente et lorsque D augmente ($t > t_{Cr}$), le stress diminue. Généralement, pour toutes les épaisseurs et dans tout le système, l'augmentation (diminution) de la taille des grains est suivie par une diminution (augmentation) du stress interne.

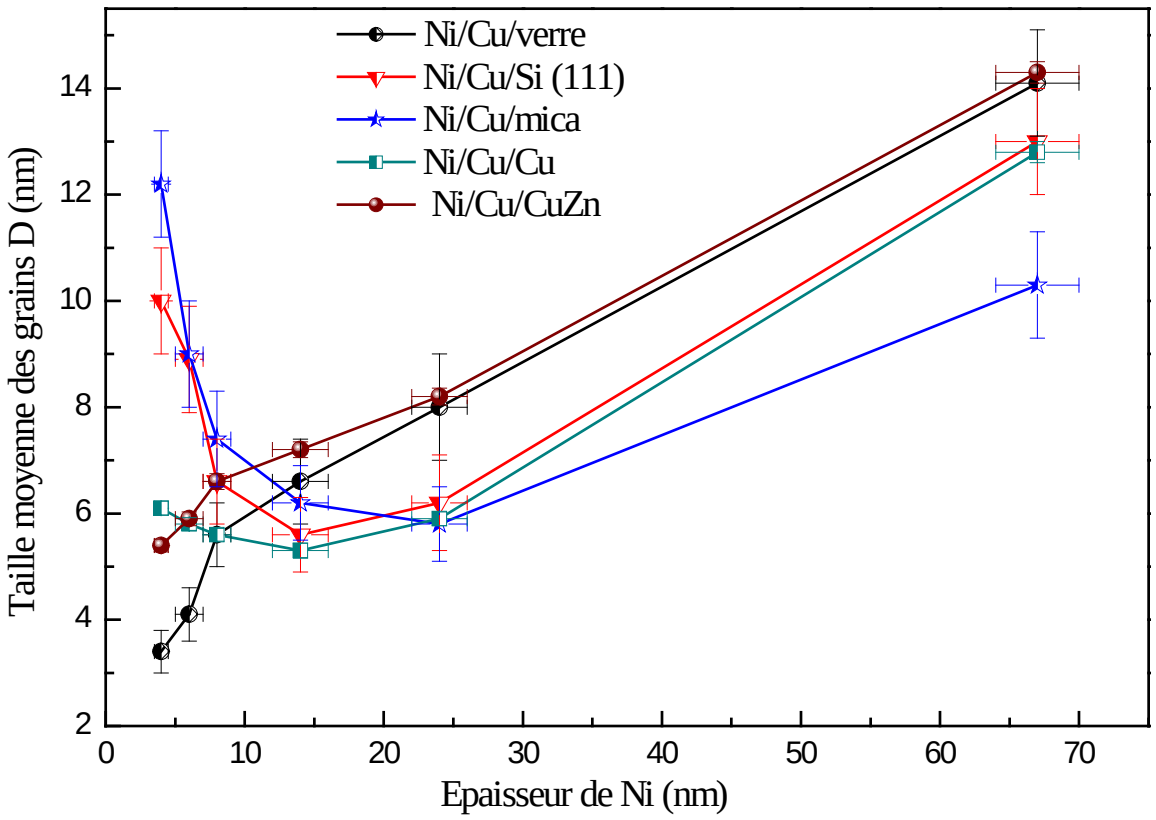


Fig. III. 12. *Evolution de la taille moyenne des grains <D (nm)> en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

III. 4. Analyse microstructurale

La figure III.13 représente les micrographies obtenues par la microscopie électronique à balayage des bicouches déposées sur les substrats de verre et de Si (111). La première

remarque à faire est que la sous-couche de Cu a engendrée des modifications sur la morphologie des échantillons représentés dans ces figures. Les surfaces sont uniformes avec une faible rugosité.

On remarque que les surfaces correspondant aux échantillons présentés sur les images (a), (b) et (c) sont homogènes et moins rugueuses par rapport aux surfaces du premier système (Ni/substrats) pour les mêmes substrats. Ces dépôts ont de faibles tailles des grains. Les tailles des grains sont différentes mais avec des formes circulaires pour la plupart. On remarque aussi que la formation de clusters (des îlots) bien distribués sur la surface et séparés par des joints de grains (voir l'échantillon (c) Ni (67nm)/Cu (52nm)/Si(111)).

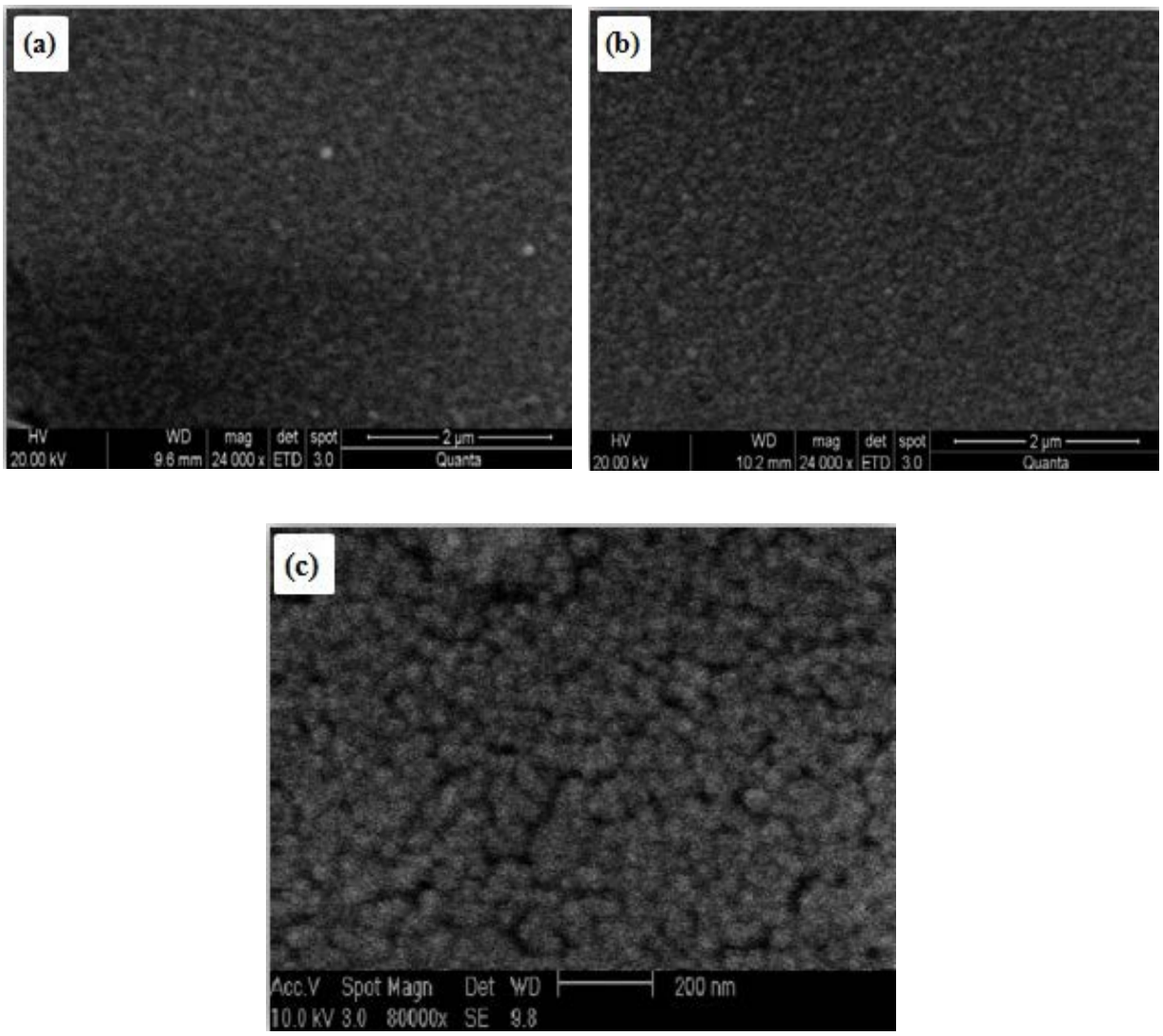


Fig. III. 13. *Images par MEB des surfaces: (a) Ni (14nm)/Cu/ verre, (b) Ni(14nm)/Cu/Si (111) et (c) Ni (67nm)/Cu/Si(111).*

Sur la figure III.14, nous avons montré les micrographies des bicouches déposées sur les substrats de Cu et CuZn. Les images (a) et (b) correspondent aux bicouches de Ni (67 nm)/Cu/Cu et Ni (67 nm)/Cu/CuZn, respectivement. La forme des grains est généralement circulaire avec des tailles différentes. Pour l'échantillon (b), la surface est rugueuse, les tailles des grains varient entre de faibles, de moyennes et de grandes tailles, ces derniers résultent probablement de la coalescence de deux grains (ou plus). Alors que, pour l'échantillon (a), les tailles de ses grains sont en général homogènes (de même taille) et la surface de cet échantillon est moins rugueuse que celle de l'échantillon (b).

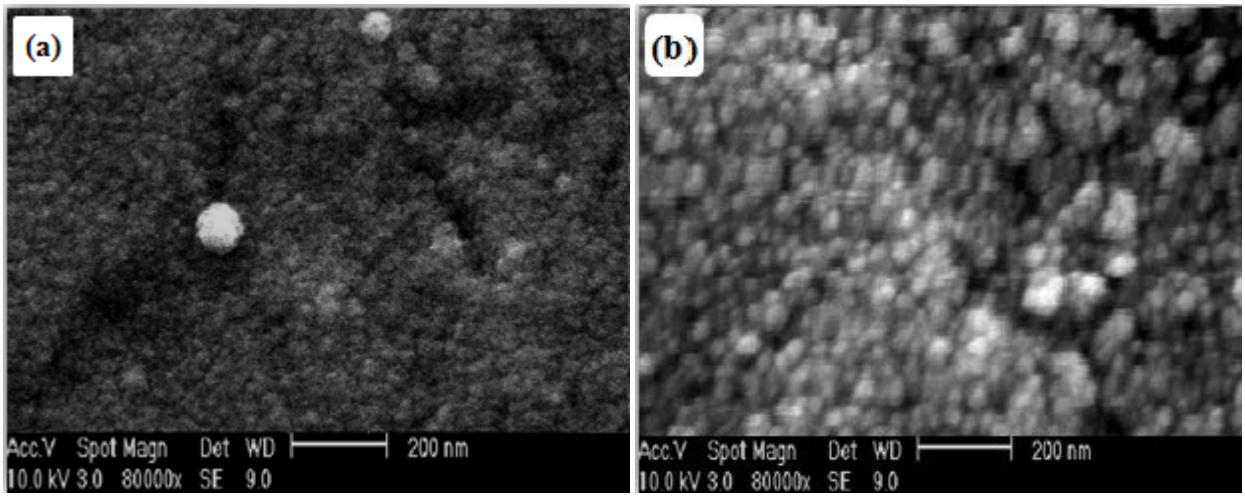


Fig. III. 14. *Images par MEB des surfaces : (a) Ni (67nm)/Cu/Cu et (b) Ni (67nm)/Cu/CuZn.*

IV. Etude comparative entre les deux systèmes

IV. 1. Texture

Dans notre cas, nous avons étudié l'effet du substrat, l'épaisseur et la sous-couche sur la structure cristalline de la couche de Ni.

La structure de nos échantillons présente une forte texture dans la direction [111] dans les deux systèmes Ni/substrats et Ni/Cu/substrats. Donc, ici ni le substrat, ni la sous-couche et ni l'épaisseur ont changé l'orientation préférentielle de ces dépôts. Ceci peut être dû à : (i). La sous-couche de Cu qui présente aussi une texture suivant la direction [111]. (ii). La densité atomique de la surface du plan (111) est supérieure à la densité atomique des plans (200) et (220) [14].

IV. 2. Déformation

La déformation est un facteur important pour l'étude des propriétés magnétiques et électriques. Il permet de savoir des renseignements sur l'état des contraintes exercées sur la couche mince du coté du substrat et/ou du coté de la sous-couche comme dans notre cas. La déformation est donnée par la différence entre la valeur du paramètre de maille naturel (massif) et la valeur mesurée par la diffraction des rayons X.

Les tableaux (III. 3) et (III. 6) montrent la variation de la déformation en fonction de l'épaisseur pour les deux systèmes Ni/substrats et Ni/Cu/substrats, respectivement. Le système Ni/substrats présente moins de contrainte par apport au système Ni/Cu/substrats. Dans le premier système (Ni/substrats), la relaxation des contraintes est attribuée probablement à la contribution de type du substrat et à l'augmentation de l'épaisseur de Ni. Alors que, dans le deuxième système (Ni/Cu/substrats), la sous-couche de Cu peut être le facteur qui empêche le phénomène de relaxation des contraintes.

L'origine des contraintes internes dans les multicouches Ni/Cu due au désaccord entre la maille de Cu et de Ni, comme dans notre cas, est une préoccupation majeure, car le désaccord de maille est d'environ 2,5 % (paramètre de maille pour le Cu= 3,608 Å, Ni= 3,524 Å) [50]. Par conséquent, lorsque le Ni déposé sur le Cu, il doit être sous tension à l'interface Cu/Ni, cela donne une contrainte de traction. L'inverse, si le Cu est déposé sur le Ni, il aura une contrainte de compression. Par conséquent, lorsque $t_{Ni} > t_{Cu}$, il y a une contrainte de traction et inversement lorsque $t_{Cu} > t_{Ni}$, une contrainte de compression existe [51–52].

Ces dernières études sont en bon accord avec nos résultats, de sorte que, le système Ni/Cu/substrats présente deux stades différents (une épaisseur critique). Le premier stade est celui qui présente l'augmentation du strain, dans lequel l'effet de la sous-couche de Cu qui domine sur l'effet de l'épaisseur de Ni. Alors que le deuxième stade est celui qui présente la diminution du strain, dans lequel, nous avons probablement la dominance de l'effet de l'augmentation de l'épaisseur de Ni. En effet, une relaxation rapide des contraintes. En plus de ces deux effets (sous-couche de Cu et l'épaisseur), il ne faut pas oublier la contribution de l'effet du substrat qui est apparu clairement dans ces tableaux (III.3 et III.6).

IV. 3. Taille moyenne des grains

La taille moyenne des grains dans le système Ni/substrats est faible par apport à celle du système Ni/Cu/substrats. Pour la série déposée sur les substrats de verre, pour une

épaisseur t = 9 ± 1 nm, la taille des grains de premier système égale à D= 4.4 nm, alors que dans le deuxième système D= 5.6 nm. Les mêmes remarques pour les séries déposées sur les substrats de Si(111) et de mica, on observe que pour une épaisseur t = 9 ± 1 nm, D (Ni/Cu/Si(111)) = 6.6 nm et D (Ni/Cu/mica) = 7.4 nm, alors que D (Ni/Si(111)) = 5 nm et D (Ni/mica)= 5.6 nm.

V. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les différents résultats obtenus avec les techniques de caractérisation physico-chimiques, structurales et microstructurales. Nous avons ainsi pu vérifier la qualité des échantillons élaborés avant d'étudier leurs propriétés électriques et magnétiques.

A partir des spectres RBS, simulés par le programme SIMINRA on a pu mesurer les épaisseurs des couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre, Si (111), mica, Cu et Al_2O_3, une gamme des épaisseurs obtenues entre 09 et 163 nm. Par la même méthode, nous avons mesuré les épaisseurs des bicouches Ni/Cu sur les substrats verre, Si (111), mica, Cu et CuZn. La gamme d'épaisseurs obtenues varie entre 4 et 67 nm pour la couche de Ni. Alors que la sous-couche de Cu montre quatre échantillons d'épaisseur 52 nm et deux autres d'épaisseur 27 et 90 nm. L'étude de ces spectres montre un bon état de la surface et d'interface des échantillons élaborés ; il n'y a aucune interdiffusion entre les couches de Ni et les substrats, entre la sous-couche de Cu et les substrats et aussi entre la couche de Ni et la sous-couche de Cu. Les valeurs des épaisseurs montrent une dépendance non linéaire entre le temps de dépôt et les épaisseurs mesurées pour le système Ni/substrats et une dépendance linéaire pour le système Ni/Cu/substrats.

En ce qui concerne la diffraction des rayons X, la direction < 111 > est l'orientation préférentielle observée dans toutes les séries d'échantillons, et pour les deux systèmes (Ni/substrats et Ni/Cu/substrats). Le système Ni/substrats montre plus de contrainte que le système Ni/Cu/substrats. La déformation varie de 0.02 % à 2,26 % et de 0.05 % à 2.2 % (en valeur absolue) pour le système Ni/substrats et Ni/Cu/substrats, respectivement.

A l'aide de relation de D. Scherrer nous avons calculé la taille moyenne des grains. Le système de Ni/Cu/substrats présente une grande taille des grains par rapport au système Ni/Substrat dans toutes les séries, sauf la série déposée sur les substrats de Cu qui possède pratiquement la même taille moyenne des grains. Les films du système de Ni/substrats présentent une gamme $4 \leq D \leq 15$ nm, et les films du système Ni/Cu/Substrats présentent une gamme $3.4 \leq D \leq 14.3$ nm. Une augmentation de la taille moyenne des grains pour les séries Ni/verre, Ni/Si(111), Ni/mica, Ni/Cu/CuZn et Ni/Cu/verre, et une diminution pour les séries déposées sur des substrats de Cu dans le premier système. Une variation complexe de D avec t pour la série de Ni/Al_2O_3 dans le premier système.

L'étude microstructurale par le MEB, nous a permis d'observer la qualité de la surface,

la forme ainsi que la taille des grains avec et sans la sous-couche de Cu. Il est clair que la sous-couche de Cu engendre des modifications sur la morphologie des échantillons. En effet, les surfaces des films de Ni sont plus uniformes et avec une faible rugosité dans le deuxième système (Ni/Cu/substrats).

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

Références bibliographiques

[1] M. Hemmous, A. Layadi, A. Guittoum, A. Bourzami, A. Benabbas. Microelectronics. J. 39 (2008) 1545 – 154 9.

[2] C. Nacereddine, A. Layadi, A. Guittoum, S.-M. Cherif, T. Chauveau, D. Billet, J. Ben Youssef, A. Bourzami, M.-H. Bourahli. Mater. Sci. Eng. B 136 (2007) 197–202.

[3] G. Utlu, N. Artunc, S. Budak, S. Tari. Appl. Surf. Sci. 256 (2010) 5069–5075.

[4] P.H. Bolt, S.F. Lobner, J.W. Geus, F.H.P.M. Habraken. Appl. Surf. Sci. 89 (1995) 339-349.

[5] J.L. Bubendorff, j. Pflaum, E. Huebner, D. Raiser, j.p. Bucher, j. Pelzl. J. Magn. Magn. Mater. 165 (1997) 199-201.

[6] High Score software for crystallography, Philips analytical, 2002.

[7] R. Lardé, *thèse de doctorat,* Université du Rouen, 2005.

[8] G. Zou, H. Qiu, Y. Zuo, H. Zong, J. He. Thin Solid Films 520 (2012) 6024 –6030.

[9] Z. Li, J. Zhao, L. Ren. Sol. Energ. Mater. Solar Cells 105 (2012) 90 –95.

[10] S.S. Kang, X.Y. Liu, X.H. Xiang, G.J. Jin, J.H. Du,M.Lu, Mu Wang, Y.X. Sui, A. Hu, S.S. Jiang, D. Feng, J.W. Feng, H. Xia. J. Magn. Magn. Mater. 187 (1998) 154-159.

[11] J. D. Lee, H.S. Kim, S.Y. Jeong, K.H. Kim, J.J. Lee, J.E. Kim. Current Appl. Phys 10 (2010) 249–254.

[12] J. Xu, T. Shao, S. Wei, L. Qin. Surf. Coat. Tech. 204 (2010) 3443– 3450.

[13] S. Thiele, A. Reina, P. Healey, J. Kedzierski, P. Wyatt, P. L. Hsu,C. Keast, J. Schaefer and J. Kong. Nanotechnology 21 (2010) 015601.

[14] M. Yu, H. Qiu, X. Chen, P. Wu, Y. Tian. Thin Solid Films 516 (2008) 7903 – 7909.

[15] K. Zhang. Nucl. Inst. Meth. Phys. Research B 243 (2006) 51–57.

[16] S. Singh, S. Basu. Surf. Coat. Tech. 201 (2006) 952 – 957.

[17] T. Kada, M. Ishikawa, H. Machida, A. Ogura, Y. Ohshita, K. Soai. J. Cryst. Growth 275 (2005) e1115–e1119.

[18] L. Pereira, P. Barquinha, E. Fortunato, R. Martins. Thin Solid Films 487 (2005) 102-106.

[19] J. B. Shi, Y. C. Chen, C. W. Lee, Y. T. Lin, C. Wu, C. J. Chen. Mater. Lett. 62 (2008) 15-18.

[20] Y. Yang, H. Qiu, X. Chen, M. Yu. Appl. Surf. Sci. 255 (2009) 6226–6231.

[21] A. Guittoum, thèse doctorat, université Ferhat Abbas de Setif, 2008.

[22] T. Emoto, K. Akimoto, A. Ichimiya, K. Hirose, appl. Surf. Sci. 190 (2002) 113-120.

[23] P. J. Brown, J, B, Forsyth, *The Crystal Structure of Solids*, Edward Arnold, 1973.

[24] H. P. Klug and L. E. Alexander, *X- Ray-Diffraction Procedures*, John Wiley & Sons, 1974.

[25] J. Barralis, J. Maeder, *Elaboration, Structures-Propriétés, Normalisation*, NATHAN, 1992.

[26] V. Stary, K. SefCik, Vacuum 31 (1981) 345-349.

[27] H. Bubert, H. Jenett, *Surface and Thin Film Analysis*, Wiley-VCH, 2002.

[28] V. Volkov, V. Levashov , V. Matveev, L. Matveeva, I. Khodos, Yu Kasumov. Thin Solid Films 519 (2011) 4329 – 4333.

[29] P. Scherrer, Nachr. Ges. Wiss. Göttingen, 2 (1918) 96.

[30] M. H. Amin, K. Mantri, J. Newnham, J. Tardio, S. K. Bhargava. Appl. Cataly. B: Environmental 119– 120 (2012) 217– 226.

[31] A. M. Thron, P. K. Greene, K. Liu, K. van Benthem. Acta Mater. 60 (2012) 2668–2678.

[32] M. Gruyters, Surf. Sci. 515 (2002) 53–60

[33] A. Bourzami, B. Ghebouli, A. Kharmouche, A. Guittoum, A. Layadi, O. Lenoble, M. Piecuch, Ann. Chim. Sci. Mat. 30 (2) (2005) 207-215.

[34] K. F. Chiu, C.C. Dai. Thin Solid Films 513 (2006) 374 – 379.

[35] S. Amoruso, G. Ausanio, C. de Lisio, V. Iannotti, M. Vitiello, X. Wang, L. Lanotte. Appl. Surf. Sci. 247 (2005) 71–75.

[36] J. B. Yi, Y. Z. Zhou, J. Ding, G. M. Chow, Z. L. Dong, T. White, XingYu Gao, A. T.S. Wee, X.J. Yud. J. Magn. Magn. Mater. 284 (2004) 303–311.

[37] C. Cornet et J-P. Deville, *Physique et ingénierie des surfaces*, EDP Sciences, 1998.

[38] K. L. Chopra, *Thin Film phenomena*, Mc Graw- Hill, New York, 1969.

[39] A. Richardt et A-M. Durand, Le vide. *Les couches minces. Les couches dures*, Edition IN FINE. Paris, 1994.

[40] S. Petrovic, B. Radak, D. Perusko, P. Pelicon, J. Kovac, M. Mitric, B. Gakovic, M. Trtica. Appl. Surf. Sci. 264 (2013) 273– 279.

[41] K.C. Hung, Y.C. Chan, H.C. Ong, P.L. Tu, C.W. Tang. Mater. Sci. Eng. B76 (2000) 87-94.

[42] S. Singh, S. K. Ghosh, Saibal Basu, Mukul Gupta, P. Mishra, and A. K. Grover. Electrochemical and Solid-State Letters, 9 (3) (2006) J5-J8.

[43] H. Sadeghi and A. Zolanvari. Armenian J. Phys. Vol. 2, issue 4 (2009) 302-306.

[44] J. Pflaum, E. Hübner, Th. Zeidler, T. Schmitte, J. Pelzl. Thin Solid Films 318 (1998)

186–188.

[45] S. K. Ghosh, P.K. Limaye, B.P. Swain, N.L. Soni, R.G. Agrawal, R.O. Dusane, A.K. Grover. Surf. Coat. Tech. 201 (2007) 4609 – 4618.

[46] S. K. Ghosh, P.K. Limaye, S. Bhattacharya, N.L. Soni, A.K. Grover. Surf. Coat. Tech. 201 (2007) 7441 – 7448.

[47] C. A. F. Vaz, G. Lauho, J. A.C. Bland, B. D. Fulthorpe, T. P. A. Hase, B. K. Tanner, S. Langridge, J. Penfold. J. Magn. Magn. Mater. 226-230 (2001) 1618-1620.

[48] T. G. Kim, J.H. Lee, J. H. Song, K. H. Chae, S. W. Shin, H. M. Hwang, J. Lee, K. Jeong, C.N. Whang, J. -S. Lee, K. -B. Lee. J. Magn. Magn. Mater. 299 (2006) 105–111.

[49] H. M. Hwang, J. C. Park, D. G. You, H. S. Park, K. Jeong, J. Lee, T. G. Kim, J. H. Song. J. Appl. Phys., Vol. 93, No. 10, Parts 2 & 3, 15 May 2003.

[50] T.E. Such, Trans. Inst. Met. Finish. 1 (4) (1992) 21.

[51] R. Weil, Plating 58 (1971) 1231; R. Weil, Plating 57 (1971) 137.

[52] S. K. Ghosh, A. K. Grover, M. K. Totlani, Trans. Inst. Met. Finish. 80 (2002) 56.

Chapitre IV

Etude des propriétés électriques

I. Introduction

La résistivité électrique, ρ, est l'une des caractéristiques électroniques la plus importante des métaux. Une caractéristique d'un métal est sa petite résistivité électrique qui résulte de la facilité de déplacement des électrons dans le réseau du matériau. Les propriétés électriques dans un corps massif sont différentes de celles des systèmes à deux dimensions.

Dans le métal massif, la résistivité électrique trouve son origine dans l'interaction des électrons de conduction avec les oscillations du réseau (phonons), les défauts (lacunes, dislocations) et les impuretés. Ces imperfections du réseau cristallin limitent le libre parcours moyen des électrons de conduction. Alors que, pour des couches minces métalliques dont une des dimensions est du même ordre de grandeur que le libre parcours moyen, l'interaction électrons-surface va jouer un rôle non négligeable dans la valeur de la résistivité électrique.

Ce chapitre consacré à l'étude des propriétés électriques ($R_{\square}$ et ρ) de nos systèmes (Ni/substrats et Ni/Cu/substrats) préparés par évaporation sous vide chauffée par effet Joule. Rappelons que les propriétés électriques des couches minces dépendent fortement des conditions et de la méthode de préparation. Elles dépendent aussi des propriétés structurales telles que l'épaisseur, la taille des grains, les défauts cristallins, la distance intercristallites des couches et la nature du substrat. Dans la première partie de ce chapitre, nous étudions l'effet de l'épaisseur, de la taille moyenne des grains et du substrat sur le comportement de la résistance carrée, $R_{\square}$ et de la résistivité, ρ, du système Ni/substrats. Ensuite dans la deuxième partie, nous étudions l'effet des mêmes paramètres sur le système Ni/Cu/substrats.

Nous présenterons dans ce chapitre le détail de la loi de Mattiessen, qui permet de séparer les différents paramètres qui contribuent à la résistivité électrique. La description et la discussion des résultats seront présentées selon la nature du système en deux parties (chaque partie présente un système). Nous consacrons aussi une partie de ce chapitre à l'étude des modèles simples utilisant une approche semi-classique permettant d'expliquer et d'interpréter de manière très satisfaisante l'ensemble des résultats expérimentaux que nous avons obtenus. On finira ce chapitre par une petite conclusion qui résume toutes les sections.

Notons que, l'expérience de mesure de la résistance carrée par la méthode des quatre pointes a été faite au niveau de CRTSE (Centre de Recherche en Technologie des Semi-conducteurs pour l'Energétique d'Alger).

II. Mesure de la résistance électrique

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

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

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

C_f est un coefficient sans dimension, il est considéré comme un facteur de forme. Il traduit la dispersion des lignes de courants entre les points du dispositif. C'est une caractéristique de la géométrie à deux dimensions. Si l'épaisseur de la couche est négligeable devant la moitié de la distance entre les pointes, b, (t << 2b) alors C_f = 4.53 [2].

V: est la tension en Volt (V).

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

En multipliant la valeur de la résistance carrée qu'on a obtenue à partir de la méthode des quatre pointes par l'épaisseur de la couche correspondante, on trouve la résistivité électrique. Elle est donnée par [3, 4] :

$$\rho_f = R_{\square} \cdot t \qquad \text{(IV.2).}$$

Où : ρ_f est la résistivité électrique de la couche en Ω.cm.

III. Loi de Mattiessen

La loi de Mattiessen est une loi empirique (1864). Elle montre que la résistivité d'une couche mince est la somme arithmétique simple des différentes contributions de toutes les sources de dispersion électronique [5]:

$$\rho = \sum_i \rho i \qquad \text{(IV.3).}$$

ρ_i est la résistivité due à chaque mécanisme de dispersion.

Pour les couches minces, la résistivité totale ρ_0 du matériau étudié est la somme de toutes les contributions. ρ_0 est donnée sous la forme suivante [6]:

$$\rho_0 = \rho_r + \rho_t \qquad \text{(IV.4).}$$

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

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

La résistivité résiduelle ρ_r est la somme des résistivités dues à chaque type de processus de diffusion des électrons de conduction: désordre magnétique, défaut et impureté. D'une manière générale, elle est donnée pour une couche mince continue par la relation suivante [7]:

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

- ρ_i est une résistivité due aux impuretés. Elle est indépendante de la température. L'origine de ces impuretés peut être dans notre cas dû aux différents gaz présents pendant l'évaporation (carbone, oxygène, ...) dans une atmosphère de ~ 5.10^{-6} mbar et aussi lors de la mesure de la résistivité.
- ρ_d est la résistivité due aux défauts intergranulaires, qui se forment généralement lors de la croissance cristalline et la présence des contraintes.
- ρ_m est la résistivité due au désordre magnétique. Pour les métaux de transition (ferromagnétiques), tel que le Ni, elle est fortement dépendante de la température. Cette résistivité résulte de la diffusion en désordre des spins des électrons de conduction par les électrons localisés dans un métal [7].
- ρ_g est la résistivité due à la diffusion des électrons aux joints de grains présents dans le film. Les joints de grains limitent le mouvement des électrons de conduction [8]. L'augmentation du nombre de joints de grains avec la diminution de la taille des grains conduit à une résistivité élevée. En fait on observe une résistivité élevée en comparaison avec celle du métal en volume, car dans le métal massif, les grains sont de l'ordre du micromètre [6].
- ρ_s est la résistivité due à la diffusion par la surface. Quand l'une des dimensions de la couche devient du même ordre de grandeur ou inférieure au libre parcours moyen de l'électron de conduction du massif, l'interaction électron-surface va jouer un rôle considérable dans la variation de la valeur de la résistivité du film. On prend comme exemple l'épaisseur. Si l'épaisseur de la couche est comparable au libre parcours moyen (l. p. m) des électrons de conduction dans le matériau massif, la diffusion par les deux bords fait augmenter la résistivité, par conséquent ρ_s augmente si l'épaisseur du film diminue.

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

- La méthode de préparation: la résistance dépend fortement de la température du substrat, de la vitesse de dépôt et de l'uniformité du courant. Notons que la quantité de gaz piégée lors de la formation des couches minces par évaporation est très faible par rapport la quantité piégée dans le système de pulvérisation, à cause de la pression élevée dans le pulvérisateur, ce qui donne une faible contribution des molécules piégées à la structure cristalline, donc au phénomène de conduction.
- Le processus de croissance: au départ, la croissance se fait par îlots qui se développent jusqu'à ce qu'ils entrent en contact et forment un réseau métallique, pour former à la fin une couche mince. Notons que la présence de défauts cristallins (les lacunes, les dislocations, les interstitielles) entre les colonnes de croissance, peut agir comme une barrière de potentiel [9] ce qui exige aux électrons la conduction par effet tunnel.

IV. Etude du système Ni/substrats

IV. 1. Etude de la résistance carrée

IV. 1. 1. Effet de l'épaisseur

Les valeurs de la résistance carrée de nos échantillons, à température ambiante, sont toutes finies pour le système Ni/substrats; ce qui confirme la continuité de nos couches minces de Ni. Dans le cas contraire, la résistance serait infinie.

La figure IV.1 représente l'évolution de la résistance carrée des couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre et de Si (111) en fonction de l'épaisseur.

Pour la série de Ni/verre, la résistance carrée diminue de façon monotone avec l'augmentation de l'épaisseur. La plus grande valeur de la résistance carrée est égale à 106.1 Ω correspond à une épaisseur de t= 9 nm. La diminution continue jusqu'à une valeur minimale égale à 1.03 Ω correspond à la plus grande épaisseur dans cette série (t= 163 nm). Les deux couches minces d'épaisseurs 42 nm et 50 nm ont des valeurs très proche 5. 91 Ω et 5.25 Ω, respectivement.

Dans un travail précédent [10, 11], nous avons préparé des couches minces de Ni par évaporation sous vide, pour une gamme d'épaisseurs varie entre 28 à 200 nm. Cette gamme présente des valeurs de la résistance carrée allant de 4.75 de 0.665 Ω pour t= 28 nm et t= 200 nm respectivement. Ces valeurs de la résistance sont similaires à nos valeurs pour les épaisseurs supérieures à 42 nm.

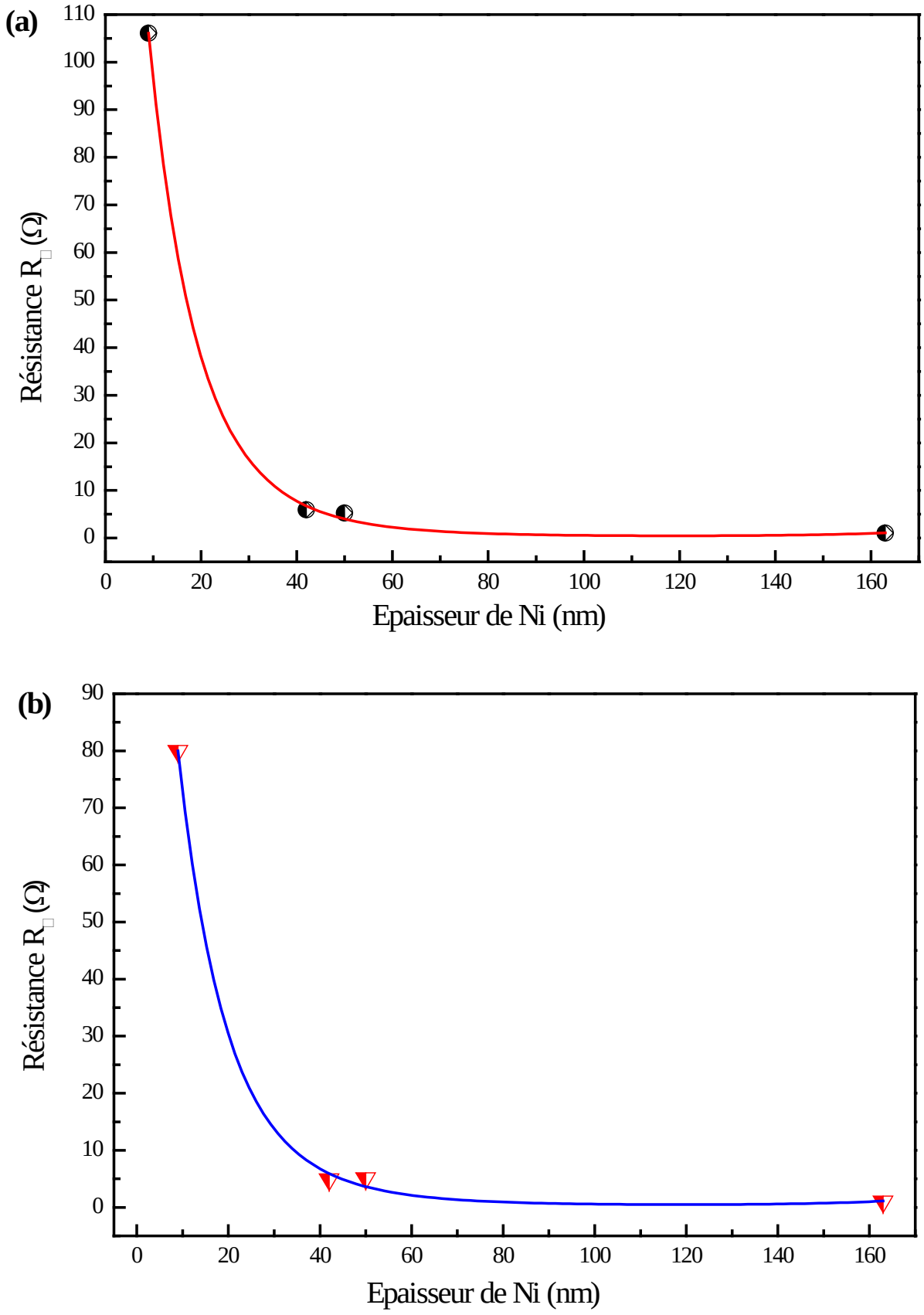


Fig. IV. 1. *Evolution de la résistance carrée $R_{\square}(\Omega)$ en fonction de l'épaisseur de la couche mince de Ni : (a) Ni/verre et (b) Ni/Si (111).*

C. Nacereddine et al. [12] ont trouvé des valeurs de la résistance carrée des couches minces de Ni/verre, préparées par évaporation sous vide, entre 14.837 Ω (à t= 31 nm) et 1.556 Ω (à t= 165 nm). Les couches minces de Ni/verre préparées par pulvérisation cathodique diode DC par B. Ghebouli et al. [3] présentent une décroissance monotone de résistance de $R_{\square}$= 51 Ω (à t= 47 nm) jusqu'à 3 Ω (t= 317 nm). Les résistances de nos couches sont donc comparables à celles trouvées par B. Ghebouli. On peut aussi comparer avec des travaux d'autres chercheurs, dans le même domaine à savoir L. Cheriet et al. [13] qui ont préparé des couches minces de Ni/verre, pour une épaisseur t= 14.5 nm, ont trouvé une résistance de $R_{\square}$= 100 Ω. Une autre comparaison avec les couches minces de Ni/verre déposées par IBS (pulvérisation par bombardement ionique) par Maaroof et al. [7], qui ont mesuré des résistances suivantes : 17.77 Ω et 11.2 Ω, pour les épaisseurs 30 nm et 50 nm, respectivement.

L'évolution de la résistance carrée dans la série Ni/Si (111) possède presque le même comportement de variation que la série de Ni/verre. La résistance carrée diminue d'une valeur maximale de la résistance égale à 80 Ω pour la plus faible épaisseur (9 nm) jusqu'à une valeur minimale égale à 1.1 Ω pour la plus grande valeur d'épaisseur (163 nm). Notons que, durant la diminution de la résistance avec l'augmentation de l'épaisseur, nous avons remarqué une légère augmentation de la résistance avec l'épaisseur de $R_{\square}$= 4.9 Ω pour une épaisseur de 42 nm jusqu'à $R_{\square}$= 5.12 Ω pour une épaisseur de 50 nm. Si on fait une petite comparaison entre ces deux séries, on voit que $R_{\square}$ de la série Ni/verre est supérieure à $R_{\square}$ de Ni/Si (111) dans la gamme d'épaisseurs inférieure à 50 nm.

Nos valeurs de la résistance carrée sont comparables à celles trouvées dans un travail précédent pour les films déposés sur les substrats de Si ($R_{\square}$ varie entre 3.414 Ω et 0.715 Ω, pour une gamme d'épaisseurs varie entre 28 à 200 nm) [10, 11]. D'autre part, dans la même gamme d'épaisseurs et pour le même substrat (Si), nos résultats sont très faibles par rapport à celles trouvées par B. Ghebouli et al. [3] ($R_{\square}$ varie entre et 300 et 12 Ω).

Les valeurs de la résistance carrée des séries Ni/Al_2O_3, Ni/mica et Ni/Cu sont représentées sur le tableau. IV.1. La série de Ni/Al_2O_3 montre une diminution monotone de la résistance carrée avec l'augmentation de l'épaisseur de Ni. La plus grande valeur de la résistance est égale à 25.93 Ω correspond à une épaisseur de 09 nm. Alors que la plus faible valeur mesurée de la résistance carrée est égale à 1.31 Ω enregistrée pour une épaisseur de 163 nm.

Pour la série de Ni/mica, les valeurs de la résistance carrée varient de façon aléatoire avec l'augmentation de l'épaisseur. La plus faible valeur de la résistance carrée dans cette série est égale à 1.19 Ω trouvée pour une épaisseur de t= 163 nm, alors que la plus grande

valeur est égale à 6.65 Ω correspond à une épaisseur de 42 nm. Nos résultats sont très inférieurs à celles trouvés par B. Ghebouli et al. [3] (Ni/mica préparées par pulvérisation DC), qui ont donné des valeurs supérieures à 10 Ω pour la même gamme d'épaisseurs que nous avons étudiée.

Les valeurs de la résistance carrée pour les couches minces de Ni/Cu sont très faibles par rapport à celles des autres séries. On remarque que les propriétés électriques des films de Ni sont fortement masquées par le substrat de Cu. On ne peut pas séparer la contribution du film de Ni de celle du substrat de Cu par la méthode des quatre pointes. Il est intéressant de remarquer que la résistance carrée $R_{\square}$, du système Ni/Cu est de l'ordre 0.23 à 0.39 mΩ. Ces valeurs sont proches de la valeur du substrat de Cu, i.e. la résistivité du système Ni/Cu est pratiquement dictée par celle du Cu. Ceci est fortement justifié en résonnant de la manière suivante :

Une couche mince de Ni qui recouvre parfaitement le substrat de Cu, au passage du courant, forme un système électrique qu'on peut représenter par deux résistances en parallèles R_{Ni} et $R_{substrat}$ (Fig. IV. 2).

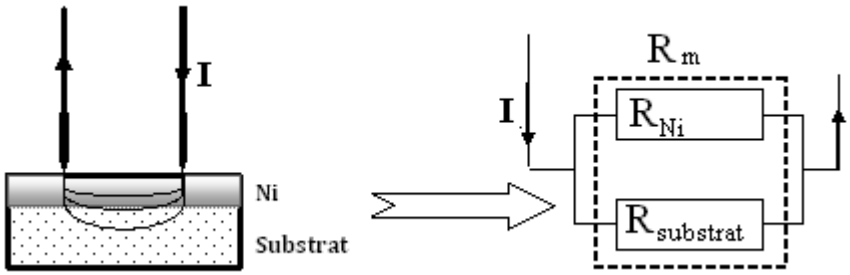


Fig. IV. 2. *Schéma représentant les différentes contributions à la résistance mesurée pour la série Ni/Cu.*

R_m est la résistance mesurée par la méthode des quatre pointes du système Ni/Cu, elle est donnée par :

$$\frac{1}{R_m} = \frac{1}{R_{Ni}} + \frac{1}{R_{substrat}} \qquad \text{(IV.6)}$$

donc :

$$\frac{1}{R_{substrat}} = \frac{1}{R_m} - \frac{1}{R_{Ni}} \qquad \text{(IV.7)}$$

R_{Ni} et $R_{substrat}$ représentent les résistances électriques de la couche de Ni et du substrat de Cu, respectivement.

Les valeurs de R_{Ni} peuvent être prises des résultats du système Ni/substrats (verre, Si (111), mica et Al_2O_3) car les couches de Ni ont les mêmes épaisseurs, et comme $R_{Ni} >> R_m$ (d'un ordre de mille fois), on aboutira à $R_{Cu} \approx Rm$. En effet, ce qu'on mesure par la méthode des quatre pointes n'est que la résistance du substrat de Cu. Ceci dit, cette méthode n'est pas indiquée pour la détermination de la résistivité électrique d'une couche conductrice sur un substrat conducteur aussi [8]. Notons que les valeurs que nous avons mesurées sont comparables à celles trouvées par C. Nacereddine et al. [12] (pour Ni/Cu) qui ont trouvé des valeurs de la résistance carrée de l'ordre de 0.2 mΩ.

Table. IV. 1. *Epaisseur de la couche mince de Ni et résistance carrée des séries Ni/mica, Ni/Al_2O_3 et Ni/Cu.*

t (nm)	Ni/mica	Ni/Al_2O_3	Ni/Cu
	$R_□$ (Ω/□)	$R_□$ (Ω/□)	$R_□$ (mΩ/□)
9	3,7	25,93	0.32
42	6,65	*	0.34
50	*	10,2	0.23
163	1,19	1,31	0.39

IV. 1. 2. Effet de la taille moyenne des grains

L'évolution de la résistance carrée en fonction de la taille moyenne des grains pour les couches minces de Ni du système Ni/substrats est montrée sur le tableau IV. 2.

Pour la série Ni/verre, nous avons remarqué une diminution monotone de la résistance carrée avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. Une valeur maximale de la résistance $R_□$= 106.1 Ω est notée pour une taille D= 4.4 nm (t= 9 nm), alors que une valeur minimale égale à 1.03 Ω correspond à une taille D= 13.7 nm (t= 163 nm).

Sur le même tableau, la série Ni/Si (111) présente une diminution progressive de la résistance carrée avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. La valeur maximale $R_□$= 80 Ω correspond à une taille moyenne D= 5 nm (t= 9 nm), alors que la valeur minimale $R_□$= 1.1 Ω est notée pour une taille moyenne égale 15 nm (t= 163 nm). Notons que cette série présente une légère augmentation de la résistance à D= 6.8 nm (t= 50 nm). Pour le reste des séries Ni/mica, Ni/Al_2O_3 et Ni/Cu, la résistance varie d'une manière aléatoire avec l'augmentation de la taille moyenne des grains, pour plus de détaille voir le tableau IV. 2.

Table. IV.2. *Résistance carrée et taille des grains de la couche mince de Ni du système Ni/substrats.*

Ni/verre	*D (nm)*	4.4	4.9	5.3	13.7
	$R_{\square}$ *(Ω/□)*	106.1	5.91	5.2	1.03
Ni/Si (111)	*D (nm)*	5	5.5	6.8	15
	$R_{\square}$ *(Ω/□)*	80	4.9	5.12	1.1
Ni/Cu	*D (nm)*	4.8	5.3	5.7	6
	$R_{\square}$ *(Ω/□)*	$3.9.\ 10^{-4}$	$2.3.\ 10^{-4}$	$3.4.\ 10^{-4}$	$3.2.\ 10^{-4}$
Ni/mica	*D (nm)*	5.6	6.1	8.5	*
	$R_{\square}$ *(Ω/□)*	3.7	6.6	1.2	*
Ni/Al_2O_3	*D (nm)*	4	6.6	14.2	*
	$R_{\square}$ *(Ω/□)*	10.2	25.9	1.3	*

IV. 1. 3. Discussion

La série des couches minces de Ni déposée sur les substrats de verre présente une légère augmentation dans les valeurs de la résistance carrée pour deux épaisseurs 42 et 50 nm. Alors que pour les mêmes épaisseurs, la série des couches minces de Ni/Si (111) montre une augmentation presque claire dans les valeurs de la résistance carrée. Ceci est due probablement à la contribution de la résistance du substrat semi-conducteur pour le cas de Si (111) ou à l'effet de la morphologie de la surface du film de Ni. Notons que, la rugosité de la surface joue un rôle important dans le phénomène de conduction. Pour les deux séries, $R_{\square}$ augmente avec la diminution de la vitesse de dépôt qui augmente à son tour la rugosité de la surface. G. Fischer et al. [14] montrent que plus la vitesse de dépôt diminue plus la rugosité de la surface augmente. D'un point de vue physique, la vitesse de dépôt peut influer sur la morphologie de la surface du film, ce qui influe à son tour sur les propriétés du matériau (exp: résistance), la diffusion et la mobilité des électrons [15]. D'autre part, la morphologie de la surface dépend de la surtension (densités de courant). Pour les faibles densités de courant qui correspondent à des faibles vitesses de dépôt (dans notre cas : un courant de 165 A et une vitesse de 0.25 Å/s, pour t= 50 nm), la rugosité de surface est importante. Alors que pour les fortes densités de courant qui correspondent à de grandes vitesses de dépôt (dans notre cas : un courant de 243A et une vitesse de 0.5 Å/s, pour t= 42 nm), la morphologie est moins rugueuse [16]. De façon similaire, d'autres facteurs peuvent affecter

la morphologie (la température, impuretés, l'état de la surface du substrat). La morphologie de la surface peut donc varier en fonction des conditions d'élaboration. Ces conditions d'élaboration ayant des conséquences sur les propriétés électriques de nos couches minces. Il est alors difficile d'avoir une variation parfaite de la résistance carrée avec l'épaisseur et de la taille des grains.

IV. 2. Etude de la résistivité électrique

IV. 2. 1. Effet de l'épaisseur

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

L'évolution de la résistivité électrique avec l'épaisseur de nos couches minces de Ni déposées sur les substrats de verre est montrée sur la figure IV. 3. Ces valeurs de la résistivité électrique sont calculées à partir de l'équation (IV. 2). Dans cette étude l'évolution de la résistivité électrique dépend non seulement de l'épaisseur mais aussi d'autres paramètres. On constate que la résistivité de nos couches minces de Ni/verre diminue globalement avec l'augmentation de l'épaisseur (si on prend en considération l'erreur sur les valeurs de la résistivité électrique). On remarque aussi dans la figure IV. 3. a, qu'une valeur maximale de $\rho = 95.5 \pm 3.7$ $\mu\Omega$.cm est enregistrée pour une épaisseur de 9 nm. Alors qu'une valeur minimale de la résistivité est égale à 16.8 ± 2.3 $\mu\Omega$.cm constaté à une épaisseur de 163 nm. Néanmoins, on remarque une légère augmentation de la résistivité pour l'épaisseur de 50 nm.

En comparaison avec nos études précédentes [10, 11], nous avons trouvé pour la série de Ni/verre, des valeurs de la résistivité égales à 19.10 $\mu\Omega$.cm (à t = 45 nm) et 16.25 $\mu\Omega$.cm (à t = 170 nm). Comparant aux résultats de ce travail, ces valeurs de la résistivité sont inférieures pour l'épaisseur de 42 (24.82 $\mu\Omega$.cm) et similaires pour l'épaisseur de 163 nm

(16.8 μΩ.cm). C. Nacereddine et al. [12] ont trouvé pour des films de Ni/verre, une valeur de la résistivité égale à 25.67 μΩ.cm à une épaisseur de 165 nm. Cette valeur est supérieure à celle que nous avons trouvée pour la même épaisseur 163 ± 5 nm (16.8 μΩ.cm). Aussi le travail de B. Ghebouli et al. [3] qui ont mesuré une valeur de la résistivité pour des couches de Ni/verre égale à 100 μΩ.cm (à t= 317 nm). Il serait bon aussi de mentionner que M. A Angadi et al. [17] ont fait une étude sur les couches minces de Ni/verre préparées par évaporation sous vide, ils ont trouvé une résistivité ρ= 16 μΩ.cm (pour t= 25 nm) et ρ= 19 μΩ.cm (à t= 40 nm). Cette dernière valeur de la résistivité est inférieure à celle que nous avons trouvée pour la même épaisseur (ρ = 24.82 μΩ.cm à t = 42 ± 3 nm). Par d'autres méthodes d'élaboration, S. Arief et al. [18] ont préparé par le possédé sol-gel (dip coating) des couches minces de Ni/verre. Les auteurs trouvent une résistivité égale à 16 μΩ.cm pour une épaisseur de 1 μm. Notons aussi que J. B. Yi et al. [19] montrent, pour les couches minces de Ni/verre préparées par pulvérisation magnétron, que la résistivité électrique varie d'une valeur maximale égale à 35 μΩ.cm pour une épaisseur t= 15 nm jusqu'à une valeur minimale égale à 10 μΩ.cm pour une épaisseur t= 400 nm, ces valeurs sont plus grandes que la valeur du Ni massif. Par contre, le travail de Y. Mikami et al. [20] présente une résistivité proche de celle de massif, elle est égale à 7.1 μΩ.cm.

L'évolution de la résistivité de nos couches minces de Ni déposées sur des substrats de Si (111) est pratiquement la même que celle de la série Ni/verre. La résistivité diminue en général avec l'augmentation de l'épaisseur. On note que la résistivité maximale dans cette série est égale à 72 ± 3.2 μΩ.cm correspond à une épaisseur de 9 nm, alors que la résistivité minimale est égale à 17.9 ± 2.2 μΩ.cm correspond à une épaisseur de 163 nm. D'autre part, cette série présente une augmentation de la résistivité (ρ= 25.6 μΩ.cm) pour l'épaisseur de 50 nm. Notons que pour les deux séries (Ni/verre et Ni/Si(111)), l'augmentation de la résistivité peut être un indice d'une légère oxydation de ces deux films ou due probablement à l'effet de la vitesse de dépôt ; les faibles vitesses de dépôt peuvent augmenter la rugosité de la surface [16], ie ; le nombre de défauts dans les couches minces [8].

Dans cette étude, nous avons observé que ρ (Ni/verre) est supérieure à ρ (Ni/Si(111)) dans la gamme des épaisseurs t < 50 nm, et l'inverse pour l'épaisseur de 163 nm. Les valeurs de la résistivité de nos couches minces dans les deux séries sont supérieures à la résistivité de Ni massif (6.9 μΩ.cm) [21]; ceci est probablement attribué à la densité élevée de défaut dans les couches minces [8].

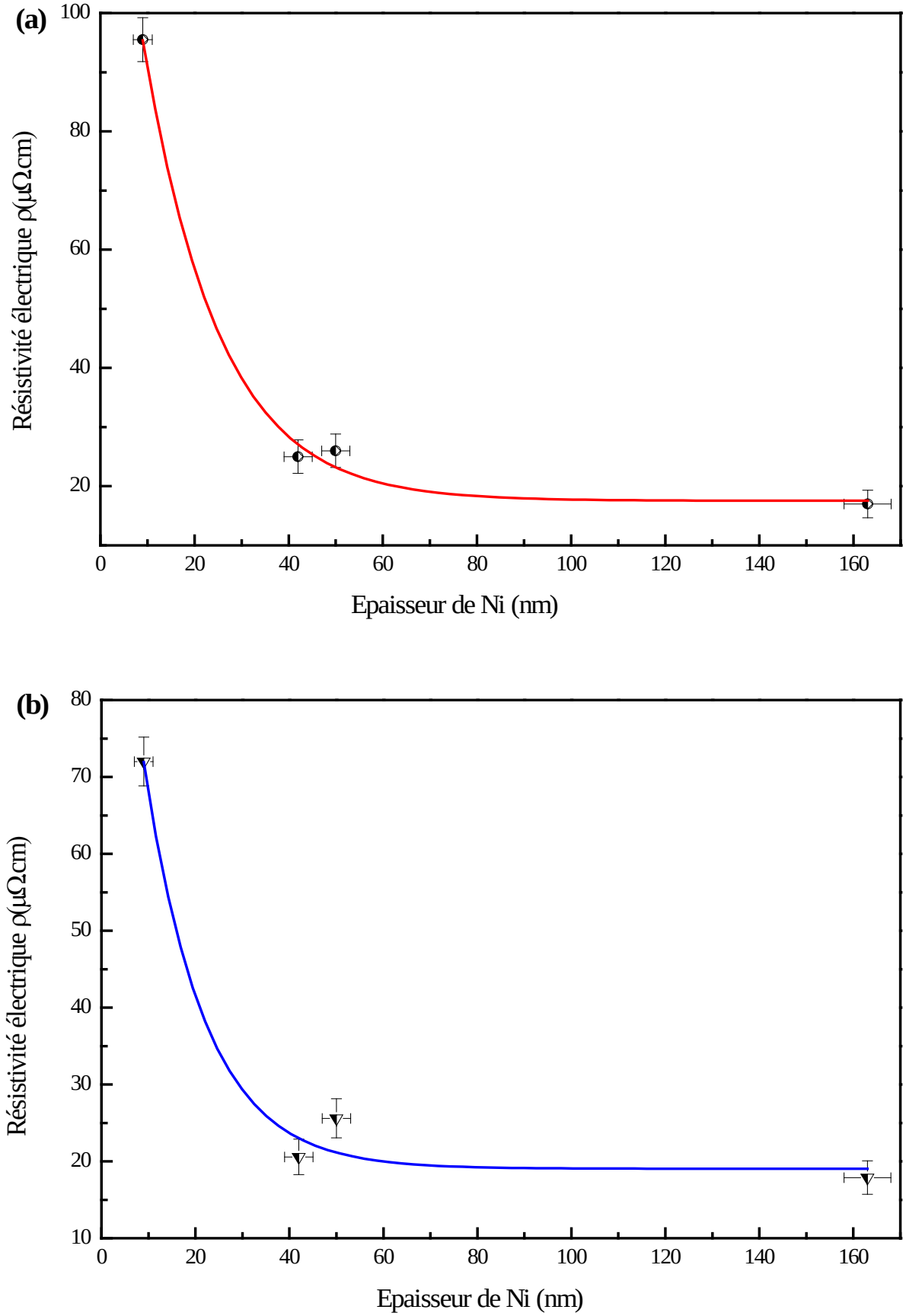


Fig. IV. 3. *Evolution de la résistivité ρ (μΩ.cm) en fonction de l'épaisseur de la couche mince de Ni : (a) Ni/verre et (b) Ni/Si (111).*

Comparant à nos résultats précédents pour le même substrat (Si) [10, 11], nous avons trouvé des valeurs de la résistivité varient entre 9.56 et 29.12 μΩ.cm pour des épaisseurs allant de 28 à 200 nm. Z. B. Guo et al. [22] ont trouvé une résistivité de 100 μΩ.cm pour un film d'épaisseur de t= 7 nm préparé par pulvérisation magnétron. D'autre part, V. Volkov et al. [23] montrent pour une gamme d'épaisseurs varie entre 1 et 10 nm, des valeurs de la résistivité égales à 30 μΩ.cm pour des films préparés par évaporation par bombardement électronique et 40 μΩ.cm pour des films préparés par pulvérisation radio fréquences. Y. Yang et al. [24] ont trouvé une résistivité de 57 μΩ.cm (à t= 280 nm) pour le système de $Ni/SiO_2/Si(100)$. Une valeur très grande a été trouvée par M. Yu et al. [25], ils ont trouvé une résistivité de 230 μΩ.cm à une épaisseur de 200 nm pour des couches minces de $Ni/SiO_2/Si$ préparées par pulvérisation magnétron D.C. Aussi, J. W. De Veries et al. [26] ont trouvé que pour des couches minces de Ni déposées par évaporation sous vide sur des substrats de Si, la résistivité varie entre 20 μΩ.cm et 12 μΩ.cm dans une gamme d'épaisseurs comprise entre 10 nm et 80 nm. Ces résultats sont comparables aux résultats de ce travail. Pour éviter au maximum les effets de température sur la résistivité, J.W. De Vries et al. [27] ont rapporté une résistivité résiduelle égale 3.27 μΩ.cm pour des couches minces de Ni sur Si à température T= 0 °K.

Pour la série de Ni/mica et Ni/Al_2O_3, la résistivité ρ varie de manière aléatoire avec l'épaisseur. La résistivité de la série Ni/mica varie entre 3.4 ± 0.95 μΩ.cm pour une épaisseur de 9 nm et 27.9 ± 2.8 μΩ.cm pour t = 42 nm. D'autre part, la résistivité de la série Ni/Al_2O_3 présente des valeurs entre 21.3 ± 1.7 μΩ.cm pour une épaisseur de 163 nm et 50.7 ± 1.3 μΩ.cm pour t = 50 nm. Alors que, les valeurs de la résistivité de la série de Ni/Cu sont très faibles à cause de l'effet du substrat de Cu.

Si on compare les valeurs de la résistivité électrique de ce système (Ni/substrats ; verre, Si(111), mica et Al_2O_3), on trouve que la série des films déposés sur les substrats de Al_2O_3 présentent la valeur la plus faible de la résistivité électrique ρ = 3.4 ± 0.95 μΩ.cm pour une épaisseur de t= 9 nm. Alors que pour la même épaisseur (t = 9 nm), la série des films déposés sur les substrats de verre présentent la plus grande valeur de la résistivité électrique, elle est égale à 95.5 ± 3.7 μΩ.cm. D'autre part, pour la plus grande épaisseur (t= 163 nm), la série des films déposés sur les substrats de verre présentent la plus faible valeur (ρ= 16.8 ± 2.3 μΩ.cm), tandis que la série des films déposés sur les substrats de Al_2O_3 montre la plus grande valeur de la résistivité électrique (ρ= 21.3 ± 1.7 μΩ.cm).

Table. IV. 3. *Epaisseur de la couche mince de Ni et résistivité des séries Ni/mica, Ni/Al_2O_3 et Ni/Cu.*

t (nm)	***Ni/mica***	***Ni/Al_2O_3***	***Ni/Cu***
	ρ (μΩ.cm)	ρ (μΩ.cm)	ρ (μΩ.cm)
9	3,4	23,3	0.00027
42	27,9	**	0,0014
50	**	50,7	0,0012
163	19,3	21,3	0,0064

IV. 2. 2. Effet de la taille moyenne des grains

L'évolution de la résistivité en fonction de la taille moyenne des grains pour les couches minces de Ni déposées sur les différents substrats est montrée sur le tableau IV. 4. Pour la série déposée sur les substrats de verre, on remarque que la résistivité diminue de façon monotone avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. Elle diminue de 95.5 μΩ.cm jusqu'à 16.8 μΩ.cm lorsque D augmente de 4.4 nm à 13.7 nm. Néanmoins, pour les deux épaisseurs 42 et 50 nm ; la résistivité est pratiquement constante. La diminution de la résistivité est liée au mécanisme de diffusion aux joints de grains. Le même comportement a été observé pour la série de Ni/Si (111). On remarque une diminution progressive de la résistivité avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. Cette série présente une légère augmentation de la résistivité pour les tailles D= 5.5 nm (t= 42 nm) et D= 6.8 nm (t= 50 nm).

Pour la série de Ni/Al_2O_3, la résistivité électrique diminue de façon monotone avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. On observe une valeur maximale de la résistivité électrique égale à 50.7 μΩ.cm notée pour une taille moyenne égale à 4 nm (t= 50 nm), alors qu'une valeur minimale égale à 21.3 μΩ.cm a été enregistrée une taille de 14.2 nm (t= 163 nm). Cette diminution est liée au mécanisme de diffusion aux joints de grains qui est peut être dominant dans cette gamme d'épaisseurs.

La série des couches minces déposées sur les substrats de mica montre une variation aléatoire de la résistivité électrique avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. Elle varie de ρ= 3.4 μΩ.cm pour D= 5.6 nm jusqu'à ρ= 27.9 μΩ.cm pour D= 6.1 nm. D'autre part, les valeurs de la résistivité des couches minces de Ni déposées sur des substrats de Cu sont très faibles. En effet, elles ont variée entre 0.0012 et 0.0064 μΩ.cm. On peut dire ici que l'effet du substrat de Cu contribue d'une façon importante dans les valeurs de la résistivité de nos couches minces.

Table. IV. 4. *Résistivité et taille des grains de la couche mince de Ni du système Ni/substrats.*

Ni/verre	*D (nm)*	4.4	4.9	5.3	13.7
	ρ (μΩ.cm)	95.5	24.8	26.2	16.8
Ni/Si (111)	*D (nm)*	5	5.5	6.8	15
	ρ (μΩ.cm)	72	20.6	25.6	17.9
Ni/Cu	*D (nm)*	4.8	5.3	5.7	6
	ρ (μΩ.cm)	0.0064	0.0012	0.0014	0.003
Ni/mica	*D (nm)*	5.6	6.1	8.5	*
	ρ (μΩ.cm)	3.4	27.9	19.3	*
Ni/Al_2O_3	*D (nm)*	4	6.6	14.2	*
	ρ (μΩ.cm)	50.7	23.3	21.3	*

IV. 2. 3. Discussion

A partir des résultats précédents, on peut dire que les propriétés électriques en particulier, sont sensibles aux conditions et aux méthodes de préparation. Plusieurs facteurs sont responsables du comportement de la résistivité, à savoir le mode de croissance, le nombre de défauts formé dans la couche mince, la différence entre les environnements de formation. Pour ce dernier facteur cité, dans le cas de l'évaporation sous vide, l'atmosphère environnante est un système raréfié. La quantité du gaz piégée lors de la formation de la couche sera nettement inférieure à celle piégée dans un système où règne un gaz inerte à pression élevée (élevée par rapport à la pression dans laquelle se fait l'évaporation), ce qui est le cas de la pulvérisation cathodique. Les molécules du gaz inerte piégées dans la structure cristalline du film ne contribuent pas au phénomène de conduction, d'où la résistivité élevée déjà mentionnée.

Lors de l'évolution de la résistivité électrique avec l'épaisseur, nous avons observé une légère augmentation de la résistivité électrique pour les films d'épaisseur de t= 50 nm. Ce comportement de la résistivité peut être dû probablement à une légère oxydation de ces films, à la contribution de l'effet supplémentaire des électrons de conduction dans le substrat semi-conducteur (pour le cas de Si) et il peut aussi être dû à l'effet de la rugosité de la surface du substrat qui conduit à la rugosité de la surface de la couche après le dépôt notamment pour les faibles épaisseurs. La rugosité de la surface est l'un des facteurs qui peut jouer un rôle important dans le phénomène de conduction. Pour le cas des couches minces, la rugosité de

la surface dépend fortement à la vitesse de dépôt. D'ailleurs, la vitesse de dépôt peut influencer la morphologie de la surface des couches minces. Les faibles vitesses de dépôt provoquent une augmentation du nombre des défauts cristallin dans la couche mince et par conséquent augmente la résistivité du film [8] et l'inverse pour le cas les grandes vitesses.

Dans notre cas, les épaisseurs 42 et 50 nm correspondent à des vitesses du dépôt différentes ; 0.50 et 0.25 Å/s, respectivement. Sur la Fig. IV. 3 (a et b), l'épaisseur qui présente la faible vitesse de dépôt possède la grande résistivité électrique. Ceci a été observé par G. Fischer et al. [14] et aussi par M. A. Angadi et al. [28]. Ils suggèrent que dans les couches minces déposées avec une grande vitesse de dépôt la densité de défaut est beaucoup plus faible que celle des couches déposées avec une petite vitesse. Des études ont montré aussi que pour les grandes vitesses de dépôt, il y a une formation d'îlots [8], ces îlots croissent probablement sous forme des colonnes parallèles, séparées par des petites lacunes qui sont aisément accessibles aux molécules de gaz (impuretés O) [9].

Pour le reste des séries (Ni/mica et Ni/ Al_2O_3), la variation est aléatoire surtout pour les substrats d'Al_2O_3 dans notre cas (Image par MEB, chapitre III). Il a été suggéré que le processus de croissance des couches minces de Ni avec des vitesses élevées, provoque une formation d'une couche amorphe très mince de Ni à l'interface et peut être aussi la présence d'une grande quantité de structure désordonnée [19], ce qui conduit à une augmentation de ρ. Il a été noté aussi que l'instabilité du courant électrique influencer la vitesse de dépôt, ce qui provoque la rugosité de la surface des couches minces. Cette rugosité de la surface conduit à une distribution non uniforme du matériau déposé sur le substrat [7]. De ce fait, dans les couches minces, on ne peut pas voir exactement la morphologie de la couche, car l'épaisseur des couches minces change autour d'une valeur moyenne, par conséquent les régions de plus faible épaisseur ont une grande contribution dans la résistivité [29].

Il est bien connu que la résistivité électrique des couches minces polycristallines peut varier en comparaison avec celle du massif [8]. Pour les couches minces métalliques d'épaisseur constante, la résistivité électrique peut varier de quelques ordres de grandeur, lorsque la taille moyenne des grains des couches change. Les couches minces ayant des petits grains montrent une résistivité élevée tandis que les couches avec des grands grains, la résistivité décroît exponentiellement jusqu'à une valeur proche du massif. Ceci peut être expliqué en termes de diffusion aux joints de grains en plus des centres de diffusion en massif [30]. D'autre part, la taille moyenne des grains est inversement proportionnelle au nombre de joints de grains. Généralement, lorsque la taille moyenne des grains augmente, le

nombre de joints de grains diminue. En effet, la diffusion des électrons de conduction diminue (le nombre de choc diminue), en conséquence la résistivité électrique logiquement diminue. Pour faire une étude plus poussée, sur les différents facteurs (diffusion à la surface et diffusion aux joints de grains) qui contribuent à la résistivité électrique, nous allons appliquer deux modèles théoriques à nos résultats expérimentaux.

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

IV. 3. Effet de la taille sur les propriétés électriques

Dans un matériau massif, la résistivité électrique est définie comme l'ensemble des interactions et des collisions des électrons de conduction avec les oscillations de réseau (phonons), les impuretés et les défauts (lacune, dislocation …). Un paramètre important qui permet d'expliquer certaines déviations des résultats expérimentaux est le libre parcours moyen qui est une mesure de la distance moyenne parcourue par l'électron entre deux collisions successives. La limitation du libre parcours des électrons de conduction entraîne une diminution du temps de relaxation (le libre parcours moyen diminue si le temps de relaxation diminue). Rappelons que lorsque l'épaisseur d'une couche métallique (ou la taille de ces grains) devient comparable avec le libre parcours moyen de l'électron de conduction, des limites géométriques seront imposées à son mouvement par les bords supérieurs et inférieurs du film (ou par les joints de grains); les effets physiques surgissant de cette limitation géométrique sont dits : les effets du "libre parcours moyen" ou les effets de la "taille" [8].

Au cours de ces dernières années, des modèles semi-classiques plus perfectionnés ont été développés pour expliquer les résultats expérimentaux des propriétés électriques des couches minces métalliques. En général, les études précédentes montrent que le comportement de la résistivité électrique des couches minces ne dépend pas seulement du mécanisme de diffusion des électrons par la surface (modèle Fuchs-Sondheimer), mais aussi du mécanisme de diffusion aux joints de grains (modèle Mayadas-Shatzkes) [31].

Nous citerons d'autres modèles qui sont développés à partir de celui de F.S et M.S : celui de Cottey [32] où la couche mince est identifiée à un matériau massif contenant un réseau de plans parallèles distants de l'épaisseur du film. Celui de Dimmich-Warkusz [33] (D-W) où les surfaces du film mince sont planes et parallèles, et les coefficients de réflexion spéculaire sont différents sur chacune des deux surfaces du film mince. Finalement, celui de Tellier [7] qui regroupe les effets de la diffusion à la surface et aux joints de grains. Dans ce chapitre on essayera de baser notre étude sur les modèles les plus adaptés à nos résultats expérimentaux.

IV. 3. 1. Diffusion des électrons à la surface

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

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

Le calcul de la résistivité d'un film métallique suivant ce modèle est donné par la relation suivante [8] :

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = \left[1 - \frac{3}{2}\frac{\lambda}{t}(1-p)\int_1^{\infty}\left(\frac{1}{a^3} - \frac{1}{a^5}\right)\frac{1-e^{-a.t/\lambda}}{1-p.e^{-a.t/\lambda}}da\right]^{-1} \qquad \text{(IV.8)}$$

ρ_f : la résistivité du film.

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

λ : le libre parcours moyen de l'électron de conduction dans le matériau massif; le libre parcours moyen de Ni à la température ambiante est λ= 11nm [8].

a : une variable d'intégration.

p : un paramètre complètement phénoménologique; p est la probabilité qu'un électron soit réfléchi à la surface d'un film mince de façon spéculaire et prend des valeurs de 0 à 1 ; p est une quantité mesurable [31]. Pour p = 0, on a une diffusion totale des électrons par la surface, (le phénomène dépend de la rugosité de la surface), ce qui donne une valeur maximale de ρ_f [14, 32].

Pour p = 1, on a la diffusion spéculaire des électrons de conduction dans laquelle on obtient que l'angle d'incidence soit égal à l'angle de réflexion pour des surfaces planes et rigides [14,

32]. Nous avons supposé que les deux faces du film sont équivalentes c.à.d. le même paramètre de spécularité, d'où Eq. IV.8 peut prendre la forme simplifiée suivante [8]:

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = 1 + \frac{3}{8}\frac{\lambda}{t}(1-p) \qquad \text{pour } t > \lambda \qquad \text{(IV.9)}$$

et

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = \frac{3}{4}\frac{1-p}{1+p}\frac{\lambda/t}{\ln(\lambda/t)+0.4228} \qquad \text{pour } t \ll \lambda \qquad \text{(IV.10)}$$

Les épaisseurs de nos couches minces sont supérieures au libre parcours moyen. Ceci correspond à la condition de l'équation (IV.9) qu'on peut mettre sous la forme suivante :

$$\rho_f.t = \rho_0.t + \frac{3}{8}\lambda.\rho_0.(1-p) \qquad \text{(IV.11)}$$

A partir de cette équation (IV. 11), on observe qu'il y a une dépendance linéaire entre (ρ **.** t) et (t) avec $0 \leq p \leq 1$, si les résistivités électriques de nos couches sont régies par le mécanisme de la diffusion par la surface.

La figure IV.5 (a et b) représente les points expérimentaux et les fits linéaires correspondants aux séries Ni/verre et Ni/Si(111) successivement (nous avons utilisé l'origine 8.5 pour tracer les fits). Pour les séries de Ni/mica et Ni/Al_2O_3 les fits ne sont pas bons (nous ne pouvons pas tirer les paramètres désirés qui sont la résistivité du matériau massif ρ_0 (la pente de ce fit) et la probabilité p.

Pour la série de Ni/verre (Fig. IV.5.a), le fit des points expérimentaux est une droite. Cette droite est donnée par l'équation suivante :

$$\rho_f.t = 1.219.10^{-12}t + 6.537.10^{-11} \qquad \text{(IV.12)}$$

A partir de l'équation (IV.12), on a la valeur de 12.19 μΩ.cm, comme pente de la droite. Cette pente correspond, suivant l'équation (IV.11), à la résistivité du matériau massif. La figure IV. 5. b représente le fit (droite) correspondant à la série Ni/Si (111). L'équation de cette droite est donnée par :

$$\rho_f.t = 1.450.10^{-12}t + 4.26.10^{-11} \qquad \text{(IV.13)}$$

De cette dernière équation, on peut tirer la valeur de la pente. Cette pente est égale à 14.50 μΩ.cm. Elle correspond à la résistivité du matériau massif. D'autre part, pour les deux séries, nous avons trouvé, à partir des fits (Fig. IV.4.a et Fig. IV.4.b), des valeurs de p inférieures à 0 (le p est calculé à partir de l'intersection de la droite de fit avec l'axe des ordonnés). Par conséquent le modèle F-S ne s'applique pas à nos résultats expérimentaux, ce

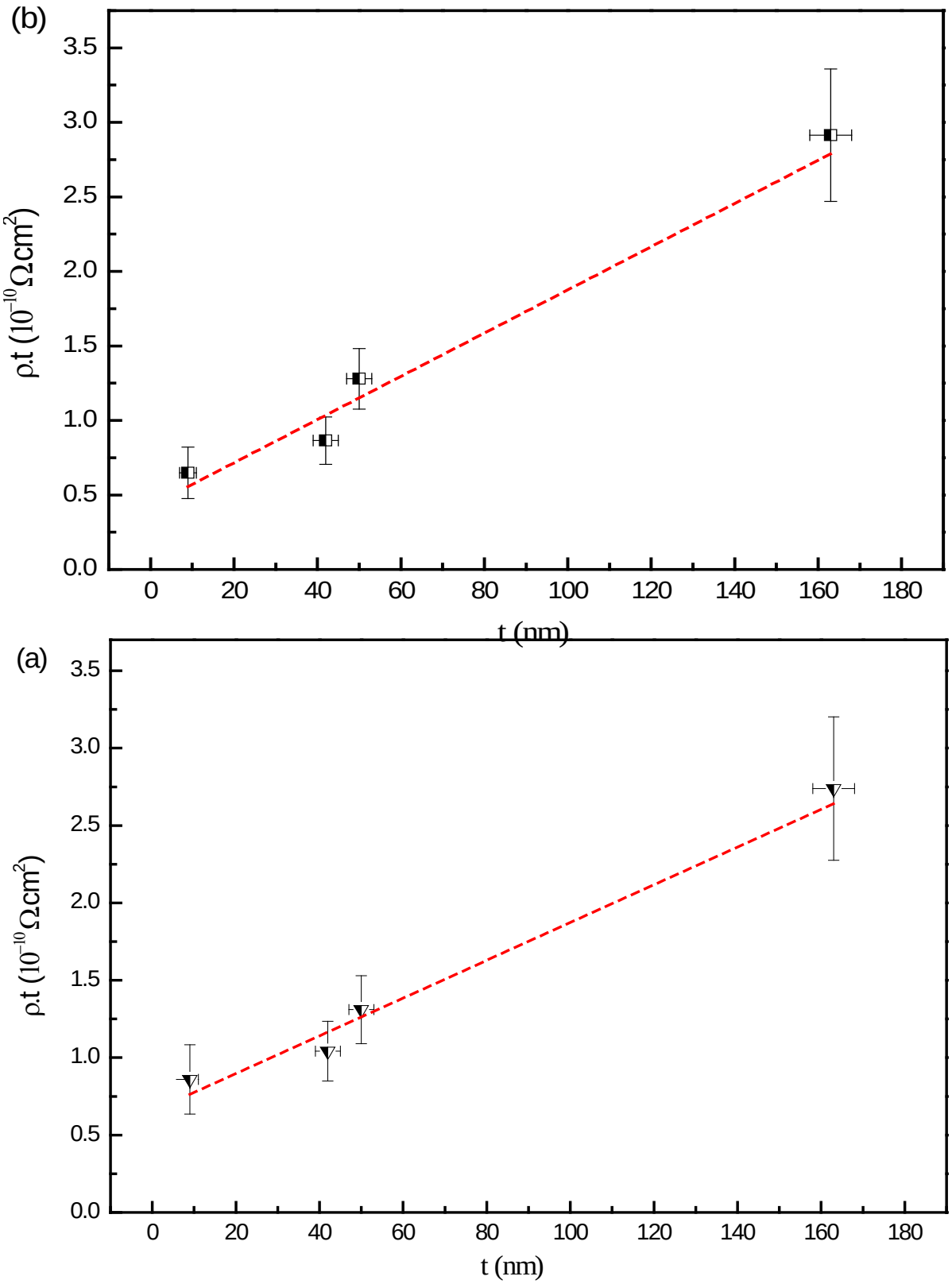


Fig. IV. 4. *Comparaison entre nos valeurs expérimentales et les prédictions de l'équation (IV.11) pour la série pour: (a) Ni/Verre, (b) Ni/Si (111).*

qui indique que la diffusion à la surface n'est pas le facteur dominant dans la résistivité électrique dans la gamme d'épaisseurs étudiée et pour les deux séries. En conséquence les valeurs de la résistivité que nous avons trouvées sont supérieures à celles de Ni massif, ce qui peut être lié à l'effet des différents types de contributions dans la résistivité de ces films minces. Rappelons qu'on peut donner ρ_0 par la relation [7]:

$$\rho_0 = \rho_t + \rho_i + \rho_d + \rho_m \qquad \text{(IV.14)}$$

A partir des équations (IV.12) et (IV.13) nous avons enregistré des valeurs ρ_0 égales à 12.19 et 14.50 μΩ.cm pour les séries de Ni/verre et Ni/Si(111), respectivement.

La valeur de ρ_0 (Ni/Si(111)) est comparable à celle trouvée par A. I. Maaroof et al. [7] pour des couches minces de Ni déposées par IBS, et à l'aide du modèle de Tellier qui tient en compte les deux effets de diffusion par la surface et par les joints de grains. Ils rapportent une valeur de la résistivité du corps massif ρ_0= 14.3 μΩ.cm à température ambiante dans laquelle ρ_t= 6.84 μΩ.cm [21] et le reste de ρ_0 est défini comme les contributions des défauts, des impuretés et du désordre magnétique. Des résultats similaires ont été trouvés par C. Scheck et al. [34] pour des couches minces de Ni/GaAs préparées par la méthode électrodéposition. En effet, ils ont trouvé une résistivité de 12.8 μΩ.cm dans une gamme d'épaisseurs varie entre 0 et 20 nm.

L'effet de la diffusion aux joints de grains est présenté dans le modèle de Mayadas et Shatzkes qu'on exposera dans la section suivante.

IV. 3. 2. Diffusion des électrons aux joints de grains

Mayadas et Shatzkes [31] proposent un modèle de conduction qui tient compte de la diffusion des électrons de conduction par les joints de grains présents dans les couches polycristallines. La résistivité d'une couche métallique est donnée suivant ce modèle par [31]:

$$\frac{\rho_f}{\rho_0} = \left[1 - \frac{3}{2}\alpha + 3\alpha^2 - 3\alpha^3 \ln\left(1 + \frac{1}{\alpha}\right)\right]^{-1} \qquad \text{(IV.15)}$$

avec:

$$\alpha = \frac{\lambda}{D}\frac{R}{1-R} \qquad \text{(IV.16)}$$

ρ_f : la résistivité électrique de la couche ;

ρ_0: la résistivité électrique du matériau massif (le Ni massif) ;

D : la taille moyenne des grains dans la couche ;

R : le coefficient de réflexion aux joints de grains ;

λ: le libre parcours moyen de l'électron de conduction du matériau massif ;

A partir des valeurs de la taille moyenne des grains trouvées dans le chapitre (III), nous avons calculé le coefficient de réflexion des films du système Ni/substrats (Table. IV.5). Dans la série déposée sur les substrats de verre, sauf l'échantillon de l'épaisseur de 9 nm qui présente la grande valeur dans cette série (R= 0.79), le coefficient de réflexion R augmente avec l'épaisseur de 0.46 à t= 42 nm jusqu'à 0.57 pour t= 163 nm. Le même comportement a été remarqué pour la série déposée sur le Si (111). En effet, le coefficient de réflexion augmente avec l'épaisseur de R= 0.43 (t= 42 nm) jusqu'à R= 0.62 (t= 163 nm), alors que l'échantillon de t= 9 nm présente un coefficient égal à 0.76. Pour la série de Ni/Al_2O_3, on remarque une augmentation progressive du coefficient de réflexion avec l'épaisseur de R= 0.52 (t= 9 nm) jusqu'à R= 0.67 (t= 163 nm). Cependant, dans la série Ni/mica, on a seulement deux valeurs du coefficient de réflexion, R= 0.56 pour t= 42 nm et R= 0.51 pour t= 163 nm.

En comparant à nos résultats précédents [10, 11], nous avons trouvé dans une gamme d'épaisseurs de 28 à 200 nm, des valeurs du coefficient de réflexion allant de 0.37 à 0.49 et de 0.18 à 0.67 pour les séries de Ni/verre et Ni/Si (100) respectivement. D'autres valeurs ont été rapportées par C. Nacereddine et al. [12], qui ont trouvé des valeurs du coefficient de réflexion R comprises entre 0.45 et 0.75, pour des couches minces de Ni/verre préparées par évaporation sous vide, pour des épaisseurs 31 < t < 165 nm, ces valeurs de R sont plus grandes que nos valeurs. Aussi, on peut citer les valeurs du coefficient R trouvées par V. Stary et al. [35] pour les couches minces de Ni déposées par évaporation par faisceau électronique sur des substrats de mica et pour une épaisseur t= 4 nm. Ces valeurs sont comprises entre 0.3 et 0.7, après un traitement thermique. Notons aussi que M. A. Angadi et al. [17] ont calculé un coefficient de réflexion constant R= 0.18 pour les couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre dans une gamme d'épaisseurs 25 < t < 70 nm.

Table. IV.5. *Coefficient de réflexion (R) et épaisseur de la couches mince de Ni du système Ni/substrats.*

t (nm)	***Ni/verre***	***Ni/Si (111)***	***Ni/Al_2O_3***	***Ni/mica***
09	0.79	0.76	0.52	*
42	0.46	0.43	*	0.56
50	0.50	0.56	0.64	*
163	0.57	0.62	0.67	0.51

Certaines études montrent que le coefficient de réflexion diminue de façon monotone avec l'épaisseur, ce qui n'est pas le cas pour les résultats de ce travail. Cette différence peut être liée à plusieurs facteurs: changement des propriétés chimiques des joints de grains (ie : concentration des impuretés – oxygène incorporé dans les joints de grains) ou des propriétés géométriques (ie : le désordre de la matière entre les grains) la concentration des défauts ponctuels et l'influence des impuretés durant la préparation, ce qui peut parfois conduire à une création d'une couche amorphe influe sur la variation du coefficient de réflexion.

V. Etude du système Ni/Cu/substrats

Pour le système Ni/Cu/substrats (verre, Si (111), mica, Cu et CuZn), les propriétés électriques des films de Ni sont fortement masquées par la sous-couche de Cu (Table. IV. 6). On ne peut pas séparer la contribution du film de Ni de celle de la sous-couche de Cu par la méthode des quatre pointes.

Il est intéressant de remarquer que la résistance carrée ($R_{\square}$) des séries Ni/Cu/verre, Ni/Cu/Si(111) et Ni/Cu/mica est de l'ordre 0.27 à 1.94 Ω. Alors que pour les séries Ni/Cu/Cu et Ni/Cu/CuZn, la résistance est de l'ordre de 0.32 à 0.51 mΩ. Les valeurs de la résistance carrée des trois premières séries sont très faibles, mais sont aussi supérieures à celles des deux dernières séries. Ceci est probablement dû à la contribution de l'effet de la sous-couche de Cu pour les bicouches déposées sur les substrats de verre, Si(111) et mica, et à l'effet des deux contributions du substrat et de la sous-couche de Cu au même temps pour les bicouches déposées sur le Cu et le CuZn. On peut dire dans ce cas, que la résistivité des séries déposées sur verre, Si (111) et mica est pratiquement dictée par sous-couche de Cu. Cependant, dans le reste des séries (Ni/Cu/Cu et Ni/Cu/CuZn), la valeur de la résistivité est presque imposée par le substrat (Cu et CuZn). Ceci peut être justifié en résonnant de la manière suivante:

Une couche mince de Ni recouvre parfaitement une couche de Cu, ces deux dernières recouvrent un substrat. Au passage du courant, il se forme un système électrique qu'on peut représenter par trois résistances en parallèles R_{Ni}, R_{Cu} et $R_{substrat}$ (Fig. IV.5). R_m est la résistance du système Ni/Cu/substrats mesurée par la méthode des quatre pointes, elle est donnée par :

$$\frac{1}{R_m} = \frac{1}{R_{Ni}} + \frac{1}{R_{Cu}} + \frac{1}{R_{substrat}} \qquad \text{(IV. 17)}$$

donc :

$$\frac{1}{R_{Cu}} = \frac{1}{R_m} - \frac{1}{R_{Ni}} - \frac{1}{R_{substrat}} \qquad \text{(IV. 18)}$$

$R_{Ni,}$ R_{Cu} et $R_{substrat}$ sont les résistances électriques de la couche de Ni, la sous-couche de Cu et le substrat, respectivement.

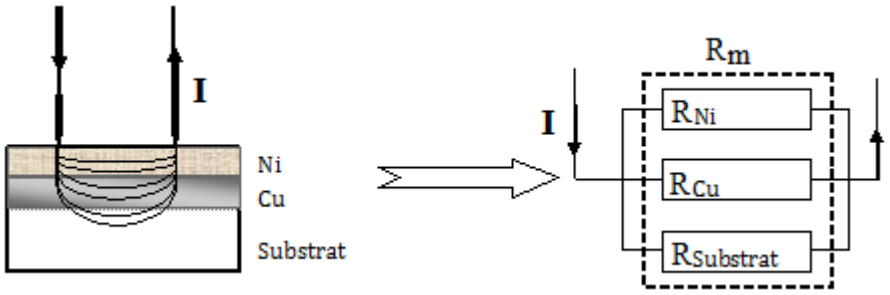


Fig. IV. 5. *Schéma représentant les différentes contributions à la résistance mesurée pour le système Ni/Cu/substrats.*

Comme on a vu dans le système Ni/substrat et pour la même épaisseur de la couche de Ni, la résistance mesurée est très supérieure à celle trouvée pour le système Ni/Cu/Substrats (par exemple t≈ 8 ± 1 nm). Donc la résistance de la couche de Ni est très supérieure à la résistance totale mesurée du système (R_{Ni} >> R_m). Ceci nous permet de dire que la résistance du système est imposée par la somme des deux contributions de la sous-couche conductrice et du substrat pour les deux séries déposées sur le Cu et de CuZn. Alors que pour le reste des séries (pour les substrats non conducteurs), la résistance du système est dictée par la sous-couche de Cu, ainsi on aboutira à ($R_{Cu} \approx R_m$).

Table. IV. 6. *Résistance carrée, résistivité et épaisseur de la couche mince de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

Epaisseur		***4 nm***	***6 nm***	***8 nm***	***14 nm***	***24 nm***	***67 nm***
Ni/Cu/verre	$R_{\square}$ *(Ω)*	0.64	1.71	0.73	0.41	0.27	0.39
	ρ (μΩ.cm)	0.25	1.02	0.58	0.57	0.66	2.61
Ni/Cu/Si	$R_{\square}$ *(Ω)*	0.69	1.94	0.81	*	0.34	0.39
	ρ (μΩ.cm)	0.28	1.16	0.65	*	0.81	2.62
Ni/Cu/mica	$R_{\square}$ *(Ω)*	*	1.53	0.37	0.25	0.37	0.44
	ρ (μΩ.cm)	*	0.92	0.29	0.34	0.89	2.95
Ni/Cu/Cu	$R_{\square}$ *(Ω)*	3.5 E-4	3.2 E-4	3.3 E-4	5.1 E-4	3.9 E-4	3.9 E-4
	ρ (μΩ.cm)	1.4 E-4	1.9 E-4	2.6 E-4	7.1 E-4	9.5 E-4	2.6 E-3
Ni/Cu/CuZn	$R_{\square}$ *(Ω)*	3.6 E-4	4.3 E-4	4.7 E-4	3.5 E-4	3.2 E-4	3.5 E-4
	ρ (μΩ.cm)	1.4 E-4	2.5 E-4	3.7 E-4	4.8 E-4	7.7 E-4	2.4 E-3

VI. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons étudié les propriétés électriques des systèmes Ni/substrats (verre, Si (111), mica, Al_2O_3 et Cu) et Ni/Cu/Substrats (verre, Si (111), mica, Cu et CuZn). Nous avons préparé nos échantillons par évaporation sous vide, avec chauffage par effet Joule. Nous avons étudié l'évolution de la résistance carrée et de la résistivité en fonction de l'épaisseur et de la taille des grains. Ainsi, nous avons étudié l'effet de la taille sur les propriétés électriques (surface et joints de grains).

Les résistances carrées de nos couches minces sont toutes finies, donc la continuité de nos couches est assurée. Pour le système de Ni/substrats, on observe une diminution de la résistance carrée avec l'augmentation de l'épaisseur pour les deux séries Ni/verre et Ni/Si (111) de 106.1 à 1.03 Ω et de 80 à 1.1 Ω, respectivement. Alors qu'une variation aléatoire a été observée pour le reste des séries. Le même comportement de la résistance carrée a été observé en fonction de la taille moyenne des grains pour la série de Ni/verre et Ni/Si (111), i.e. $R_{\square}$ diminue progressivement avec D. La résistance carrée de Ni/mica varie de façon aléatoire avec D. Par contre, $R_{\square}$ diminue de façon monotone avec D pour la série de Ni/Al_2O_3. Il est bien de noter que la résistance et la résistivité de la série de Ni/Cu et du système Ni/Cu/substrats sont très faibles à cause de l'effet de Cu. Pour les séries de Ni/verre et de Ni/Si (111), l'évolution de la résistivité présente globalement une diminution avec l'augmentation de l'épaisseur. En effet, ρ diminue d'une valeur de 95.5 jusqu'à 16.8 μΩ.cm et de 72 jusqu'à 17.9 μΩ.cm pour Ni/verre et Ni/Si (111), respectivement. Le même comportement (diminution) a été observé en fonction de la taille moyenne des grains. Par contre, une variation aléatoire de ρ avec de l'épaisseur et la taille moyenne des grains a été observé pour les séries de Ni/mica. Alors que pour Ni/Al_2O_3, on note une variation aléatoire avec l'épaisseur et une diminution monotone de ρ avec D. Les modèles de Fuchs-Sondheimer et de Mayadas-Shatzkes qu'on a utilisés dans cette étude prouvent que l'effet de la diffusion aux joints de grains a une grande contribution dans la résistivité. On note par contre une contribution négligeable de l'effet de diffusion par la surface dans cette gamme d'épaisseurs. De plus on a pu évaluer le coefficient de réflexion aux joints de grains R pour nos couches.

Références bibliographiques

[01] A. Vappaille, R. Castagné, *Dispositifs et circuits intégrés semiconducteurs*, Bordas. Paris, 1990.

[02] D. David et R. Caplain, *Méthodes usuelles de caractérisation des surfaces*, édition EYROLLES, 1988.

[03] B. Ghebouli, A. Layadi and L. Kerkache, Eur. Phys. J. AP. 3 (1998) 35-39.

[04] A. Kusy, Thin Solid Films 43 (1977) 243-250.

[05] E. Broitman, P. Alonso, R. Zimmerman, Thin Solid Films 277 (1996) 192-195.

[06] M. Gerl et J-P. Issi, *Physique des matériaux*, PPUR. Lausanne, 1997.

[07] A. I. Maaroof and B. L. Evans, J. Appl. Phys. 76 (1994) 1047-1054.

[08] K. L. Chopra, *Thin Film phenomena*, Mc Graw- Hill, New York, 1969.

[09] N. A. Surplice, J. Muller and B. Singh, Thin Solid Films 28 (1975) 179-187.

[10] M. Hemmous, A. Layadi, A. Guittoum, A. Bourzami, A. Benabbas. Microelectronics. J. 39 (2008) 1545 – 154 9.

[11] M. Hemmous, *mémoire de Magister*, UFA de Sétif 2007.

[12] C. Nacereddine, A. Layadi, A. Guittoum, S.-M. Cherif, T. Chauveau, D. Billet, J. Ben Youssef, A. Bourzami, M.-H. Bourahli. Mater. Sci. Eng. B 136 (2007) 197–202.

[13] L. Cheriet, H. H. Helbig, and S. Arajs, Phy. Rev. B 39 (1989) 9828-9830.

[14] G. Fischer, H. Hoffmann, J. Vancea, Phy. Rev. B 22 (1980) 6065-6073.

[15] S. Singh, S. Basu. Surf. Coat. Tech. 201 (2006) 952 – 957.

[16] R. Winand, Electrochim. Acta. 39 (1994) 1091-1105.

[17] M. A. Angadi and L. A. Udachan, Thin Solid Films 79 (1981) 149-153.

[18] S. Arief, T. Terazawa, T. Ban, Y. Ohya, Y. Takahashi, Mater. Sci. Eng. B100 (2003) 132-135.

[19] J. B. Yi, Y. Z. Zhou, J. Ding, G. M. Chow, Z. L. Dong, T. White, XingYu Gao, A. T.S. Wee, X.J. Yud. J. Magn. Magn. Mater. 284 (2004) 303–311.

[20] Y. Mikami, K. Yamada, A. Ohnari, T. Degawa, T. Migita, T. Tanaka, K. Kawabata, H. Kajioka. Surf. Coat. Tech. 133-134 (2000) 295-300.

[21] D.G. Fink, D. Christiansen, *Electronics Engineers' Handbook, 3rd*, McGraw-Hill, New York, USA, 1989.

[22] Z. B. Guo, W.B. Mi, Q. Zhang, B. Zhang, R.O. Aboljadayel, X.X. Zhang. Sol. Stat. Commun. 152 (2012) 220–224.

[23] V. Volkov, V. Levashov, V. Matveev, L. Matveeva, I. Khodos, Yu Kasumov. Thin Solid Films 519 (2011) 4329–4333.

[24] Y. Yang, H. Qiu, X. Chen, M. Yu. Appl. Surf. Sci. 255 (2009) 6226–6231.

[25] M. Yu, H. Qiu, X. Chen, P. Wu, Y. Tian. Thin Solid Films 516 (2008) 7903–7909.

[26] J. W. C. DE Vries, Thin Solid Films 150 (1987) 209-215.

[27] J. W. C. DE Vries, Thin Solid Films 167 (1988) 25-32.

[28] M. A. Angadi et L. A. Udachan, Thin Solid Films 78 (1981) 299- 302.

[29] D. Dayal, P. Rudolf and P. Wibmann, Thin Solid Films 79(1981) 193-199.

[30] M. Vopsaroiu, M. J. Thwaites, G. V. Fe rnandez, S. Lepadatu, K. O'Grady. J. Optoelectron. Adv. M. Vol. 7, No. 5, (2005) 2713 – 2720.

[31] A. F. Mayadas and M. Shatzkes, Phy. Rev. B 1 (1970) 1382-1389.

[32] A. A. Cottey, Thin Solid Films 1 (1967/68) 297-307.

[33] R. Dimmich and F. Warkusz, Thin Solid Films 109 (1983) 103-114.

[34] C. Scheck, P. Evans, G. Zangari, R. Schad. Appl. Phys. Lett., Vol. 82, No. 17 (2003).

[35] V. Stary, K. SefCik, Vacuum 31 (1981) 345-349.

Chapitre V

Etude des propriétés magnétiques

I. Introduction

Les propriétés physiques des couches minces ferromagnétiques telles que les couches de Ni sont connues depuis longtemps et sont utilisées dans beaucoup d'applications. Nous avons utilisé pour la description des propriétés magnétiques de nos couches minces le VSM (magnétomètre à échantillon vibrant) et le magnétomètre à effet Kerr. L'objectif de cette étude à travers ce chapitre est de corréler les effets des paramètres structuraux (épaisseur et taille des grains) et aussi l'effet de la sous-couche de Cu sur les propriétés magnétiques (champ coercitif (Hc), facteur squarness (S) et champ de saturation (Hs)) des couches minces de Ni. Les courbes d'aimantation en champ parallèle obtenues pour les différentes épaisseurs et différents substrats ont été enregistrées pour un champ magnétique appliqué variant de -10 à 10 kOe et de -0.5 à 0.5 kOe pour les mesures par VSM et effet Kerr, respectivement. Cette étude est structurée en deux parties : (A) étude par VSM et discussion des résultats obtenus pour les deux systèmes et (B) étude par effet Kerr et discussion des résultats obtenus pour les deux systèmes. On clôtura ce chapitre par une conclusion qui résume tous les résultats obtenus. Par ailleurs, nous remercions vivement le laboratoire qui nous a permis de réaliser ces expériences: LEMAC, IEMN CNRS 8520, Université Lille, France.

II. Etude par magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)

II. 1. Etude du système Ni/substrats

Les mesures des propriétés magnétiques par VSM ont été effectuées pour toutes les séries. On constate que les courbes d'aimantation possèdent globalement la même forme pour tous les films qui ont la même épaisseur et déposés sur différents substrats. D'autre part, pour la même épaisseur, nous avons remarqué que les différents paramètres magnétiques (Hc, S et Hs) varient avec le substrat. Par ailleurs, le fait que les courbes d'aimantation de quelques épaisseurs ne présentent presque pas d'hystérésis est le signe de la bonne qualité cristalline de ces échantillons [1]. En effet, lorsque la couche mince ne présente pas de microstructure forte susceptible de bloquer significativement le déplacement des parois, la coercivité est réduite. Lors de l'application d'un champ magnétique extérieur dans le plan d'une couche mince, les parois se déplacent et donc les moments magnétiques des domaines se réorientent. En effet, la forme des courbes d'aimantation peut changer avec la variation de l'épaisseur. Ainsi le champ coercitif, le champ de saturation et le facteur squarness varient avec l'épaisseur de Ni.

À partir des courbes d'aimantation, nous avons étudié l'évolution des paramètres magnétiques (Hc, S et Hs) en fonction de l'épaisseur et de la taille moyenne des grains.

La figure V.1 représente des exemples des courbes d'aimantation obtenues en champ parallèle sur les couches minces du système Ni/substrats (substrats : verre, Si (111), mica, Cu et Al_2O_3) pour une épaisseur de 50 nm. On remarque sur la figure V.1, que la valeur du champ coercitif des films déposés sur le substrat de verre est inférieure à celle des autres films déposés sur les substrats de Si (111), Cu, mica et Al_2O_3. Il est intéressant de noter P. Kumar et al. [2] trouvent la même remarque pour la même épaisseur (50 nm) pour des couches de Ni déposées sur le verre, Si et le MgO.

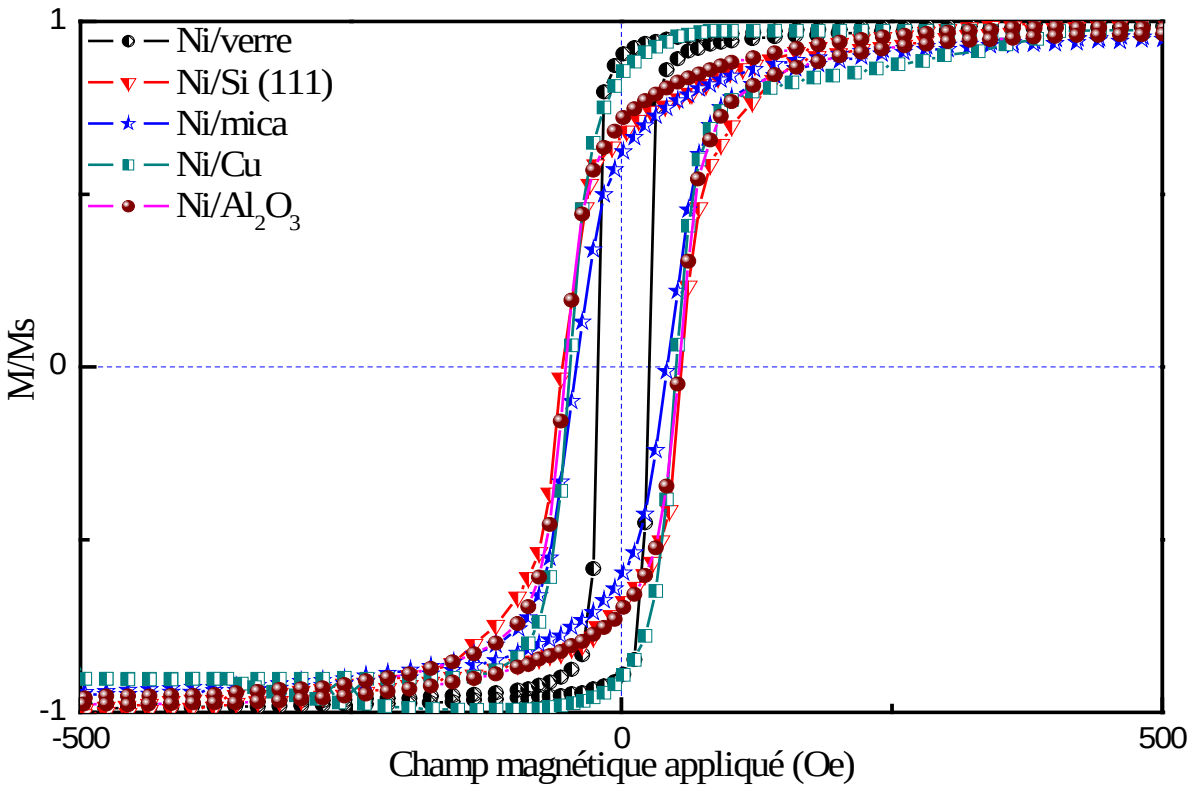


Fig. V. 1. *Courbes d'aimantation en géométrie parallèle des couches de Ni élaborées sur différents substrats pour une épaisseur de 50 nm.*

II. 1. 1. Champ coercitif

II. 1. 1. 1. Effet de l'épaisseur

L'évolution du champ coercitif des couches minces du système Ni/substrats est représentée sur la figure V. 2. Nous avons remarqué que, à l'exception de la série Ni/Al_2O_3, le champ coercitif augmente de façon monotone avec l'épaisseur de la couche de Ni,

indépendamment de type du substrat. En effet, pour la série déposée sur les substrats de verre, le champ coercitif augmente de 4 Oe pour une épaisseur de t= 9 nm jusqu'à 138 Oe pour t= 163 nm. Nous avons enregistré aussi une augmentation du champ coercitif de 3.6 Oe à t= 9 nm jusqu'à 153 Oe à t= 163 nm pour la série de Ni/Si (111). Pour la série déposée sur le mica (Cu), le champ coercitif augmente de 1.5 Oe (3.5 Oe) jusqu'à 115 Oe (96 Oe) pour les épaisseurs 9 nm et 163 nm, respectivement. D'autre part, l'évolution du champ coercitif avec l'épaisseur pour la série Ni/Al_2O_3 présente un minimum égal 53 Oe pour une épaisseur de t= 50 nm. Globalement, nous avons trouvé que : (i) pour la plus faible épaisseur (9 nm), la plus grande valeur de Hc (151Oe) correspond à la série de Ni/Al_2O_3 par contre la plus faible valeur (1.5 Oe) correspond à la série de Ni/mica. (ii) Les séries de Ni/verre, Ni/Si(111) et Ni/Cu ont la même valeur du champ coercitif (Hc ~ 4 Oe) pour une épaisseur de 9 nm. (iii) Pour la plus grande épaisseur (163 nm), la série de Ni/Cu présente la plus faible valeur du champ coercitif (Hc = 96 Oe) et la série Ni/Si (111) montre la plus grande valeur du champ coercitif (153 Oe).

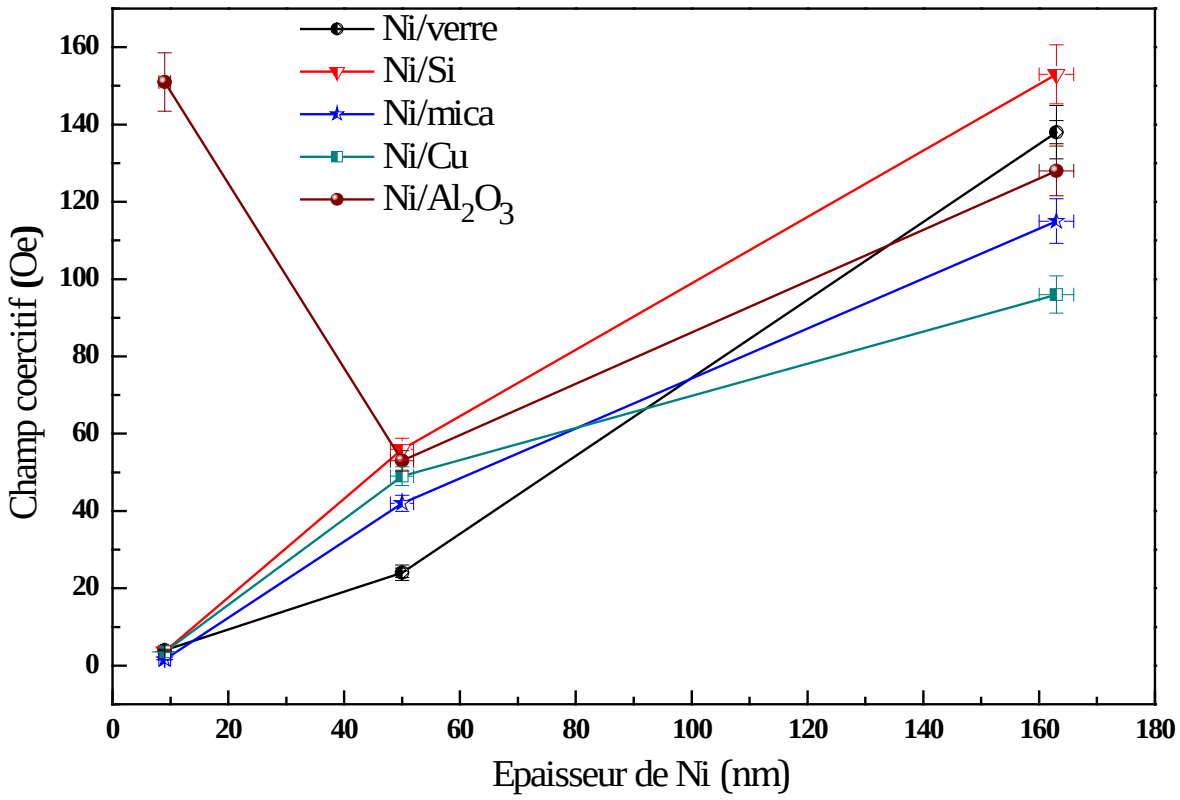


Fig. V. 2. *Evolution du champ coercitif Hc (Oe) mesuré par VSM en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/substrats.*

Généralement, l'évolution du champ coercitif en fonction de l'épaisseur est une augmentation quasi linéaire. Ce qui indique que les couches minces de Ni perdent de leurs douceurs. 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 des défauts comme les joints de grains qui apparaissent avec la morphologie granulaire dans les couches de Ni qui peuvent accrocher les parois ; le champ magnétique nécessaire pour les décrocher n'en sera que plus important, d'où une augmentation du champ coercitif. Aussi, ceci peut être attribué à d'autres phénomènes responsables des valeurs du champ coercitif, par exemple : les impuretés (carbone, oxygène, ...), le désordre de la matière entre les grains, etc…

Il est intéressant de noter que le comportement de Hc (augmentation) en fonction de l'épaisseur a été reporté dans la littérature par M. S. Miller et al. [3] pour les couches minces de Ni/Si pour une gamme d'épaisseurs varie de 30 à 150 nm. Les auteurs trouvent que le champ coercitif augmente de 2 à 290 Oe. Cette augmentation est due à l'oxydation dans la limite des grains qui résulte du faible vide durant l'évaporation. Notons aussi que nos résultats sont comparables à ceux trouvés dans la littérature par C. Nacereddine et al. [4] qui ont trouvé des valeurs du H_C variant de 30 à 146 Oe pour Ni/verre, et de 33 à 147 Oe pour Ni/Cu, dans une gamme d'épaisseurs de 31 à 165 nm. G. Zou et al. [5] ont préparé des couches minces de Ni déposées par la pulvérisation magnétron DC dans une gamme d'épaisseurs changées de 80 à 260 nm. Ces films présentent un champ coercitif varie de 72.8 à 200 Oe et de 25 à 33 Oe pour les films déposés sur les substrats Al_2O_3 et SiO_2/Si, respectivement. Aussi, J. D. Lee et al. [6] présentent des valeurs de H_C entre 49.5 et 86 Oe pour des couches minces de Ni/Si. Pour le même type de substrat, Y. Tang et al. [7] ont trouvé des valeurs de H_C varient entre 58 Oe et 88Oe. Il est intéressant de signaler que d'autres auteurs trouvent des valeurs très grandes par rapport à nos valeurs comme J. B. Shi et al. [8], qui ont trouvé une valeur de Hc= 197 Oe (pour t= 60 nm) et Hc= 404 Oe (pour t= 30 nm) pour des couches minces de Ni/Al_2O_3. J. B. Yi et al. [9] ont obtenu des valeurs de Hc entre 160 à 700 Oe pour des couches minces de Ni déposées sur des substrats de verre dans une gamme d'épaisseurs variant entre 15 et 50 nm. Pour les couches de Ni/mica préparées par ablation laser, S. Amoruso et al. [10] ont mesuré un champ égal à 250 Oe.

II. 1. 1. 2. Effet de la taille moyenne des grains

Comme il est bien connu, les propriétés magnétiques sont très liées aux paramètres structuraux (par exemple la taille moyenne des grains) et la variation de ces paramètres influe

sur les résultats obtenus. Nous avons choisi la taille moyenne des grains car elle rend mieux compte des effets de la topographie en champ magnétique parallèle. L'évolution du champ coercitif des couches de Ni en fonction de la taille moyenne des grains est montrée dans le tableau V. 1. On constate que pour les séries déposées sur les substrats de verre, Si (111) et de mica, le champ coercitif augmente à mesure que la taille des grains augmente. Numériquement, pour la série déposée sur les substrats de verre, le champ coercitif augmente de 4 Oe pour D= 4.4 nm jusqu'à 138 Oe pour une taille de 13.7 nm. Alors que pour la série de Ni/Si (111), on trouve un comportement similaire à celui observé pour les couches de Ni sur verre ; Hc augmente de 3.6 Oe (pour D= 5 nm) jusqu'à 153 Oe (pour D= 15 nm). La série déposée sur mica montre la plus faible valeur du champ coercitif (1.5 Oe) pour une taille de grains égale à 5.6 nm, accompagnée par une augmentation jusqu'à 115 Oe pour une taille de grains égale à 8.5 nm. Un comportement complètement différent a été trouvé pour les couches minces déposées sur le Cu. Ainsi, l'évolution de la coercivité avec la taille des grains présente une diminution monotone de 96 Oe pour D= 4.8 nm jusqu'à 3.5 Oe pour D= 6 nm. Une variation aléatoire a été remarquée pour la série déposée sur Al_2O_3, l'évolution de la coercivité avec la taille des grains présente un maximum à D= 6.6 nm correspondant à un champ égal 151 Oe.

Table. V. 1. *Taille des grains <D (nm)> et champ coercitif Hc (Oe) de la couche mince de Ni du système Ni/substrats.*

Système Ni/substrats									
Ni/verre		*Ni/Si (111)*		*Ni/mica*		*Ni/Cu*		*Ni/Al_2O_3*	
D	*Hc*	*D*	*Hc*	*D*	*Hc*	*D*	*Hc*	*D*	*Hc*
4.4	4	5	3.6	5.6	1.5	4.8	96	4	53
5.3	24	6.8	56	7.4	42	5.3	49	6.6	151
13.7	138	15	153	8.5	115	6	3.5	14.1	128

II. 1. 2. Le facteur squarness

II. 1. 2. 1. Effet de l'épaisseur

A partir des courbes d'aimantation en champ parallèle, nous avons accès à la mesure du facteur squarness S (Mr/Ms) des films de Ni en fonction de l'épaisseur. La figure V. 3 illustre l'évolution du facteur squarness S en fonction de l'épaisseur. Nous avons remarqué

qu'à mesure que l'épaisseur augmente, S des couches minces de Ni déposées sur le Cu, Al_2O_3 et le mica diminue progressivement. En effet, les couches minces déposées sur le Cu présentent une diminution de 0.85 pour une épaisseur de 9 nm jusqu'à 0.36 pour t= 163 nm. La même remarque a été trouvée pour les couches minces déposées sur le mica, on observe une diminution du squarness de 0.69 (pour t= 9 nm) jusqu'à 0.36 (pour t= 163 nm). Aussi pour les couches minces déposées sur Al_2O_3, le facteur squarness diminue de 0.83 jusqu'à 0.35 lorsque t augmente de 9 à 163 nm, respectivement. D'autre part, le facteur squarness des films déposés sur verre et Si (111) montre une évolution différente. Cette évolution présente un maximum égal à S = 0.90 et S= 0.67 à une épaisseur de 50 nm pour Ni/verre et Ni/Si (111), respectivement.

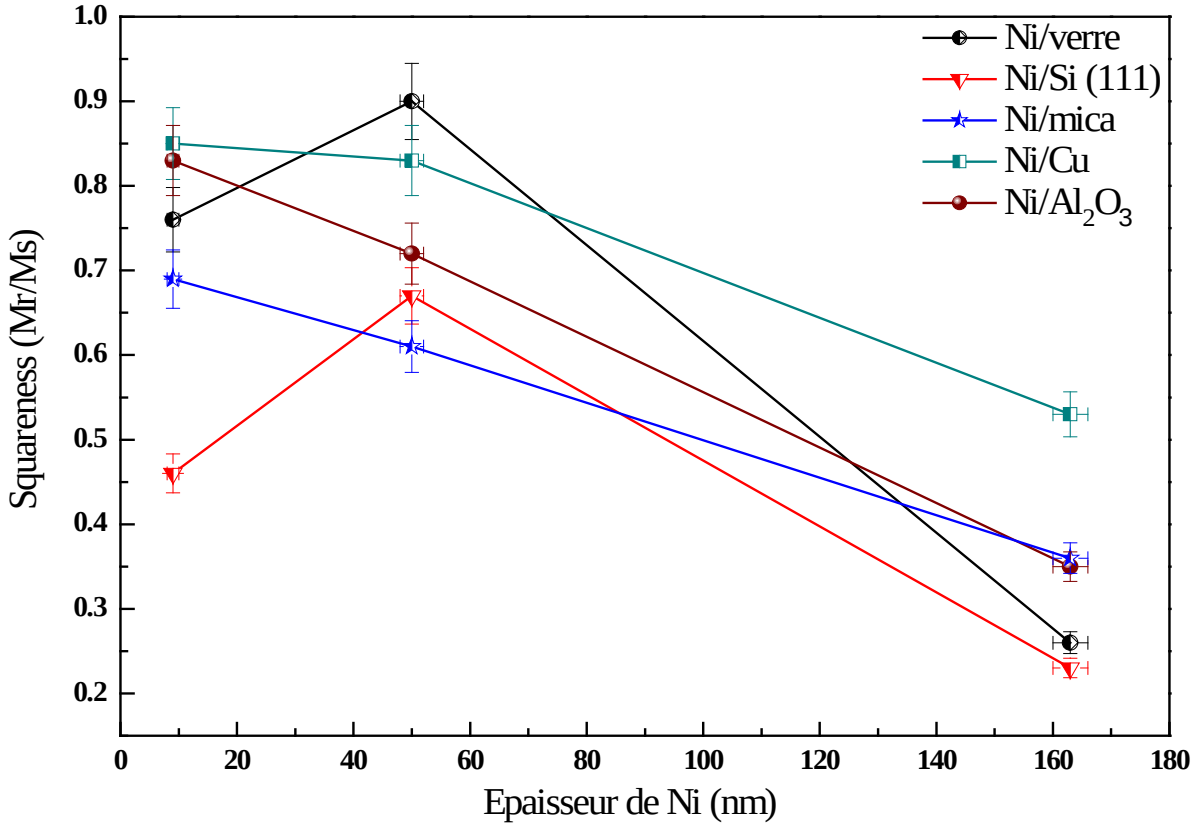


Fig. V. 3. *Evolution du facteur squarness S (Mr/Ms) mesuré par VSM en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/substrats.*

A titre de comparaison, on peut citer les travaux de C. Nacereddine et al. [4], qui ont préparé des couches minces de Ni par évaporation sous vide dans une gamme d'épaisseurs de 31 à 165 nm, cette gamme présente des valeurs de S allant de 0.246 à 0.862 et de 0.323 à

0.0807 pour Ni/verre et Ni/Cu, respectivement. Ces valeurs sont similaires à celles de la série Ni/verre et inférieures à celles de la série Ni/Cu. Ainsi que J. D. Lee et al. [6], qui ont trouvé pour les couches minces de Ni/Si préparées par électrodéposition, des valeurs de S entre 0.75 et 0.09. Ces résultats sont relativement comparables aux résultats que nous avons trouvés pour la même série. Notons que S. Amoruso et al. [10], ont élaboré des couches minces de Ni/mica par ablation laser. Les auteurs ont obtenu une valeur de S égale à 0.38. On peut également citer d'autres auteurs qui présentent des valeurs très faibles par rapport à nos résultats. G. Zou et al. [5] ont obtenu des valeurs du squarness allant de 0.12 à 0.24 et de 0.06 à 0.08 pour les couches minces de Ni/Al_2O_3 et $Ni/SiO_2/Si$, respectivement. Les couches minces de Ni déposées sur les substrats de Al_2O_3 préparées par J. B. Shi et al. [8] montrent des valeurs de S égales à 0.09 pour t= 60 nm et 0.23 pour une épaisseur de 30 nm.

II. 1. 2. 2. Effet de la taille moyenne des grains

Le tableau V. 2 montre que le facteur squarness S évolue différemment d'un substrat (série) à un autre en fonction de la taille des grains. En effet, sur les substrats de mica (Cu), S diminue (augmente) avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. Numériquement, S diminue (augmente) 0.69 (0.53) à une taille de 4.4 nm (4.8 nm) jusqu'à 0.36 (0.85) à une taille de 8.5 nm (6 nm) pour la série déposée sur mica (Cu). Pour la série des films déposés sur le Si (111), S présente un maximum à 0.67 pour une taille moyenne des grains égale à 6.8 nm. Les couches de Ni déposées sur le verre et Al_2O_3 présentent le même comportement que celui de la série Ni/Si (111). En effet, S passe par un maximum égal à 0.90 (0.83) pour D = 5.3 nm (6.6 nm) pour la série des couches minces déposées sur verre (Al_2O_3). On peut penser que ce comportement de S est le fait d'une dispersion de l'anisotropie planaire qui dépend de la taille moyenne des grains.

Table. V. 2. *Le facteur squarness S et la taille des grains <D (nm)> du film de Ni du système de Ni/substrats.*

Système Ni/substrats									
Ni/verre		*Ni/Si (111)*		*Ni/mica*		*Ni/Cu*		*Ni/Al_2O_3*	
D	*S*	*D*	*S*	*D*	*S*	*D*	*S*	*D*	*S*
4,4	0.76	5	0.46	5,6	0.69	4,8	0.53	4	0.72
5,3	0.90	6,8	0.67	7,4	0.61	5,3	0.83	6.6	0.83
13,7	0.26	15	0.23	8,5	0.36	6	0.85	14.1	0.35

II. 1. 3. Champ de saturation

II. 1. 3. 1. Effet de l'épaisseur

Quel que soit le processus de propagation des parois magnétiques, lorsqu'on applique un champ magnétique sur un échantillon, l'aimantation à saturation (M_{sat}) est atteinte pour un certain champ, appelé champ de saturation Hs. L'évolution du champ de saturation du système Ni/substrats en fonction de l'épaisseur de la couche mince de Ni est présentée sur la figure V. 4. Cette figure montre que le champ de saturation augmente progressivement avec l'épaisseur, quel que soit le substrat. Pour les films déposés sur verre, le champ de saturation augmente de 0.7 KOe jusqu'à 2.25 KOe pour des épaisseurs allant de 9 à 163 nm. Pour la série déposée sur mica, le champ de saturation augmente de 0.28 KOe (pour t= 9 nm) jusqu'à 1.48 KOe (pour t= 163 nm). Le même comportement a été observé pour la série déposée sur Si (111), de sorte que Hc augmente de 0.78 KOe pour t= 9 nm jusqu'à 2.4 KOe pour t= 163 nm. D'autre part, les valeurs du champ de saturation enregistrées pour les séries de Ni/Cu et de Ni/Al_2O_3 sont en général inférieures à celles des autres séries. Ainsi, le champ de saturation augmente de 0.22 KOe (0.25 KOe) à t = 9 nm jusqu'à 1.55 KOe (0.405 KOe) à t = 163 nm pour la série Ni/ Al_2O_3 (Ni/Cu).

Si on fait une comparaison entre les résultats des séries déposées sur le verre, Si (111) et Al_2O_3, on trouve clairement que Hs (Ni/Si) > Hs (Ni/verre) > Hs (Ni/Al_2O_3). Pour la plus faible épaisseur (t= 9 nm), la série déposée sur Al_2O_3 présente la plus faible valeur du champ de saturation (0.22 KOe) et la série déposée sur Si (111) donne la plus grande valeur (0.78 KOe). Alors que pour la plus grande épaisseur (163 nm), la série de Ni/Si (111) montre la plus grande valeur (2.4 KOe) et la série de Ni/Cu présente la plus faible valeur (0.405 KOe).

Généralement, lorsque l'épaisseur augmente, les parois des domaines deviennent plus mobiles et la valeur du champ de saturation diminue; le processus de retournement de l'aimantation est rapide [11]. Ce qui n'est pas constaté dans notre cas. On peut penser que l'augmentation du champ de saturation avec l'épaisseur pourrait être le fait du découplage des grains (morphologie granulaire à mesure que l'épaisseur augmente). Les parois ne peuvent plus se propager de grains en grains, mais doivent nucléer dans chaque grain. D'autre part, cette augmentation peut être aussi due à l'effet de l'augmentation du nombre des défauts susceptibles de gêner la mobilité des parois de domaines.

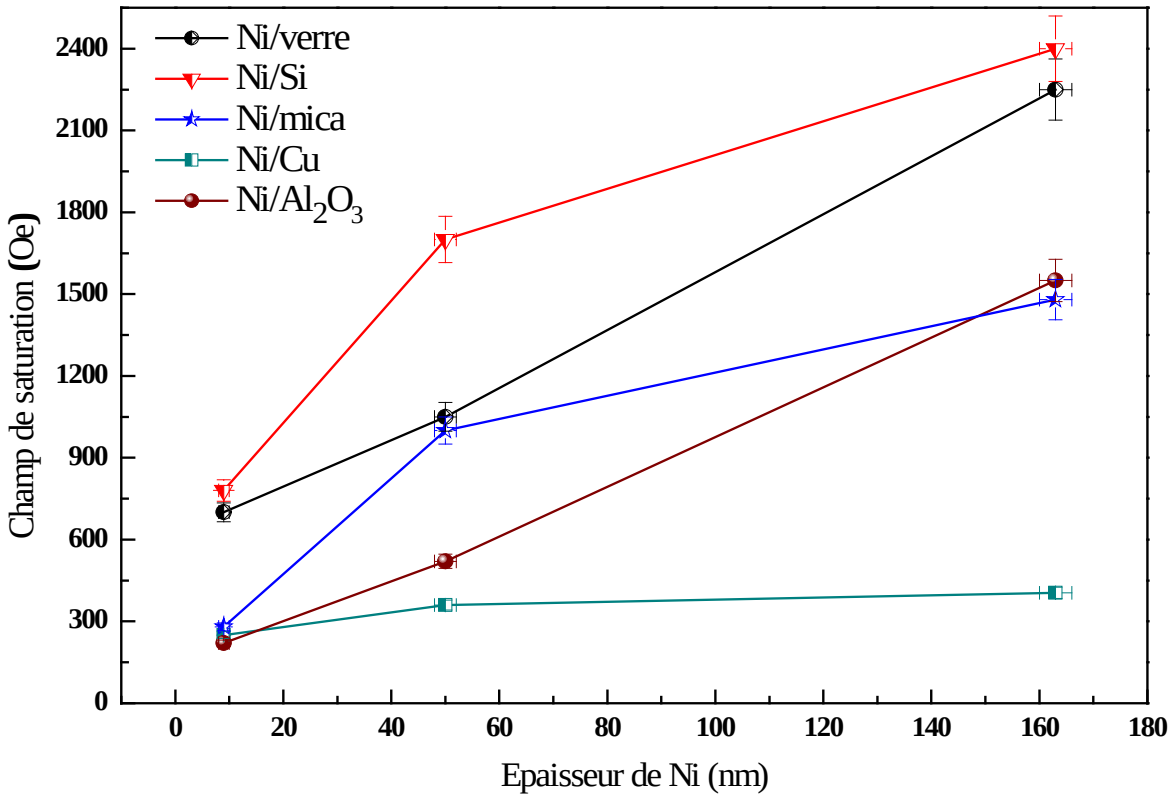


Fig. V. 4. *Evolution du champ de saturation Hs (Oe) mesuré par VSM en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/substrats.*

Notons que des résultats similaires ont été observés pour des couches minces du Ni/verre et de Ni/Cu préparées par C. Nacereddine et al. [4]. Ils ont trouvé des valeurs du champ de saturation variant entre 0.1 KOe et 1.5 KOe pour une gamme d'épaisseurs de 31 à 165 nm. D'autres auteurs montrent des valeurs du champ de saturation grandes comme les travaux de S. Amoruso et al. [10]. Ils ont trouvé des valeurs du champ de saturation de l'ordre de 10.5 KOe pour la série de Ni/mica préparée par ablation laser.

II. 1. 3. 2. Effet de la taille moyenne des grains

L'augmentation de la taille moyenne des grains entraine une augmentation du champ de saturation des couches de Ni déposées sur les substrats de verre, Si (111) et mica (Table V. 3). L'évolution du champ de saturation présente une augmentation monotone d'une valeur de 0.7 KOe (D= 4.4 nm) jusqu'à une valeur de 2.25 KOe (D= 13.7 nm) et de 0.78 KOe (D= 5 nm) jusqu'à 2.4 KOe (D= 15 nm) pour Ni/verre et Ni/Si (111) respectivement. La série Ni/mica montre une augmentation du champ de saturation de 0.28 KOe (D= 5.6 nm) jusqu'à 1.48 KOe (D= 8.5 nm). En ce qui concerne la série des films de Ni déposés sur le Cu, on remarque que le champ de saturation diminue de façon monotone avec l'augmentation de la

taille moyenne des grains. Il décroit de 0.405 KOe pour D= 4.8 nm jusqu'à 0.25 KOe pour D= 6 nm. Alors que la série des échantillons déposés sur les substrats de Al_2O_3 montre un minimum égal à 0.22 KOe pour une taille des grains égale à 6.6 nm.

La cinétique du processus de retournement de l'aimantation est donc sensible à la taille moyenne des grains et au substrat. En effet, lorsque la taille moyenne des grains augmente, le champ de saturation augmente sur les substrats de verre, Si (111) et mica; on peut associer cette augmentation du champ de saturation parallèle à un ralentissement du processus de retournement de l'aimantation. Le retournement de l'aimantation est plus lent pour des couches de Ni sur Al_2O_3 dont la taille moyenne des grains dépasse 6.6 nm. D'autre part, la taille moyenne des grains peut influencer le champ de saturation différemment comme c'est le cas pour les couches de Ni déposées sur Cu où le champ de saturation diminue tandis que la taille moyenne des grains augmente.

Table. V. 3. *Champ de saturation Hs (KOe) et la taille des grains <D (nm)> de la couche mince de Ni du système Ni/substrats.*

Système Ni/substrats									
Ni/verre		*Ni/Si (111)*		*Ni/mica*		*Ni/Cu*		*Ni/Al_2O_3*	
D	*Hs*	*D*	*Hs*	*D*	*Hs*	*D*	*Hs*	*D*	*Hs*
4,4	0.7	5	0.78	5,6	0.28	4,8	0.405	4	0.52
5,3	1.05	6,8	1.7	7,4	01	5,3	0.36	6.6	0.22
13,7	2.25	15	2.4	8,5	1.48	6	0.25	14.1	1.55

II. 2. Etude du système Ni/Cu/substrats

L'étude des bicouches métalliques a suscité un vif intérêt dans la communauté scientifique, car les bicouches possèdent des propriétés magnétiques liées à leur caractère bidimensionnel et stratifié n'existant pas dans un matériau à l'état massif [12, 13]. C'est pourquoi, nous avons choisi ici de suivre l'évolution des propriétés magnétiques (Hc, S et Hs) d'une couche de Ni unique en fonction de son épaisseur (t) et la taille moyenne des grains <D>. En plus de ces facteurs (t et D), nous avons essayé de faire une étude de l'effet de la couche de Cu qui possède une épaisseur constante (52 nm) sur les propriétés magnétiques des couches de Ni (système Ni/Cu/substrats). Pour étudier l'effet de la sous-couche de Cu sur les paramètres magnétiques, nous avons effectué des mesures de cycles d'hystérésis à l'aide d'un VSM.

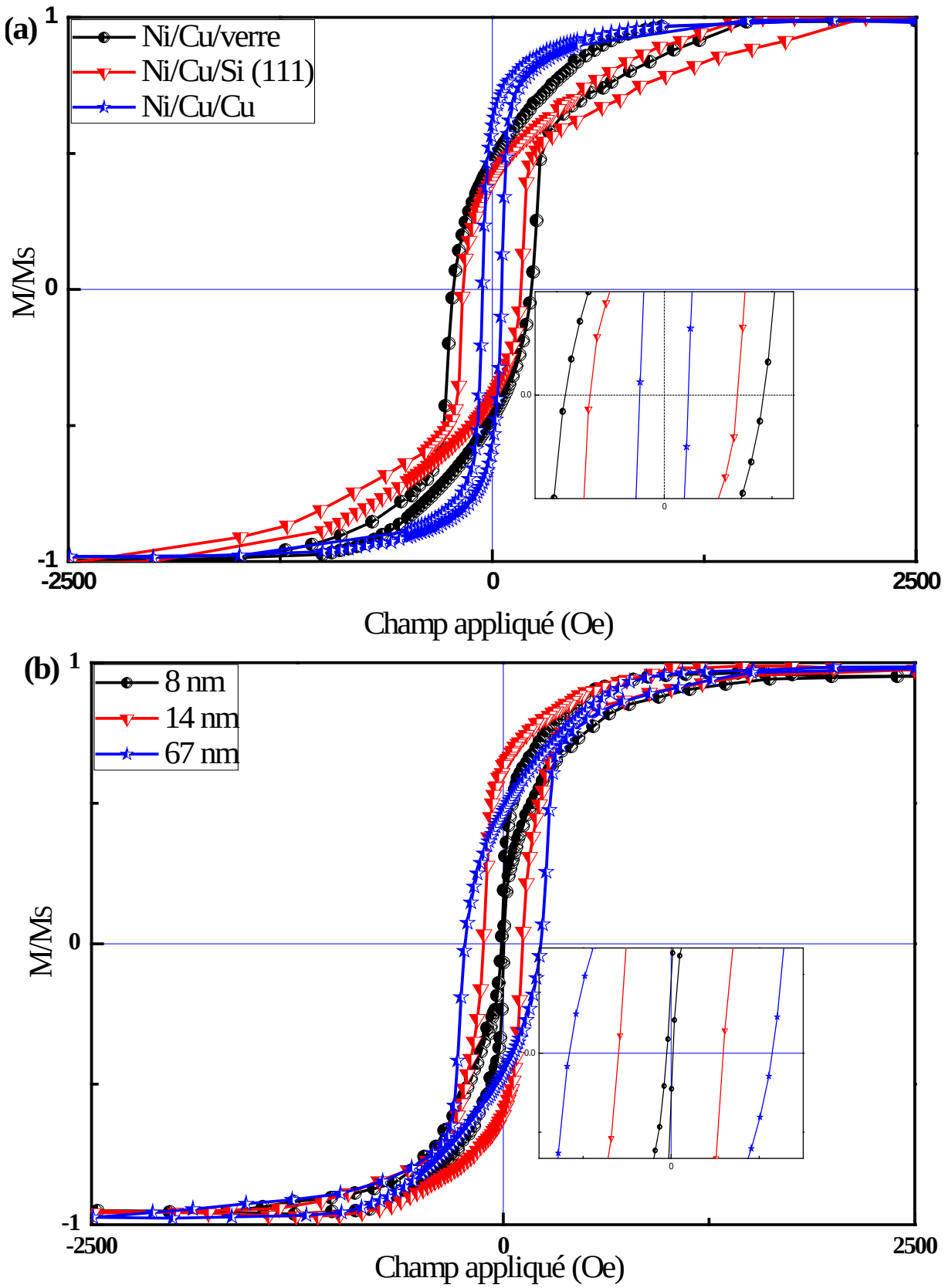


Fig. V.5. *Cycles d'hystérésis de : (a) Ni/Cu/substrats (verre, Si (111) et Cu) à t = 67 nm (effet de la sous-couche de Cu et du substrat) et (b) Ni/Cu/verre avec t = 8, 14 et 67 nm (effet de sous-couche de Cu et de l'épaisseur).*

Nous montrons quelques exemples de cycle d'hystérésis des couches mince de Ni du système Ni/Cu/substrats mesurés à température ambiante sur la figure V.5. L'effet de la sous-couche de Cu et du substrat pour la même épaisseur est clair sur la figure V.5.a. Aussi, l'effet de sous-couche de Cu et de l'épaisseur pour le même substrat est montré sur la figure V.5.b. On remarque qu'il est nécessaire d'appliquer un champ magnétique un peu plus grand pour saturer les échantillons du système Ni/Cu/substrats par rapport au système Ni/substrats.

II. 2. 1. Champ coercitif

II. 2. 1. 1. Effet de l'épaisseur

La figure V.6 représente l'évolution du champ coercitif des bicouches Ni/Cu (52 nm) sur des substrats de verre, Si, mica, Cu et CuZn pour une gamme d'épaisseurs de Ni variant de 4 à 67 nm. Le comportement du champ coercitif des couches de Ni est le même pour les séries déposées sur le verre, Si (111) et mica. Sur le verre, le champ coercitif présente un minimum égal à 5.7 Oe (à t= 8 nm) puis augmente d'une manière monotone avec l'épaisseur jusqu'à 230 Oe (à t= 67 nm). La même évolution a été observée pour les bicouches déposées sur le Si (111), un minimum égal à 08 Oe (t= 8 nm) et une augmentation jusqu'à 171 Oe (à t= 67 nm). Sur le mica, le champ coercitif augmente avec l'épaisseur de 03 Oe (à t= 8 nm) jusqu'à 168 Oe (à t= 67 nm). L'augmentation du champ coercitif avec l'épaisseur indique que les couches minces de Ni dans ces trois séries perdent progressivement leurs douceurs.

Sur le CuZn, le comportement est différent; l'évolution du champ coercitif avec l'épaisseur de la couche mince de Ni présente un maximum égal à 150 Oe pour t= 08 nm ; à mesure que l'épaisseur augmente, le champ coercitif diminue de façon monotone pour atteindre sa valeur minimale (Hc= 79 Oe) pour une épaisseur t= 67nm. Par contre, la série des bicouches de Ni/Cu déposées sur les substrats de Cu montre une variation aléatoire du champ coercitif avec l'augmentation de l'épaisseur de 31 Oe jusqu'à 107 Oe. Dans tous les cas, la série Ni/Cu/verre présente les plus grandes valeurs du champ coercitif pour la plus faible épaisseur (Hc= 127 Oe à t= 4 nm) et pour la plus grande épaisseur (Hc= 230 Oe à t= 67 nm).

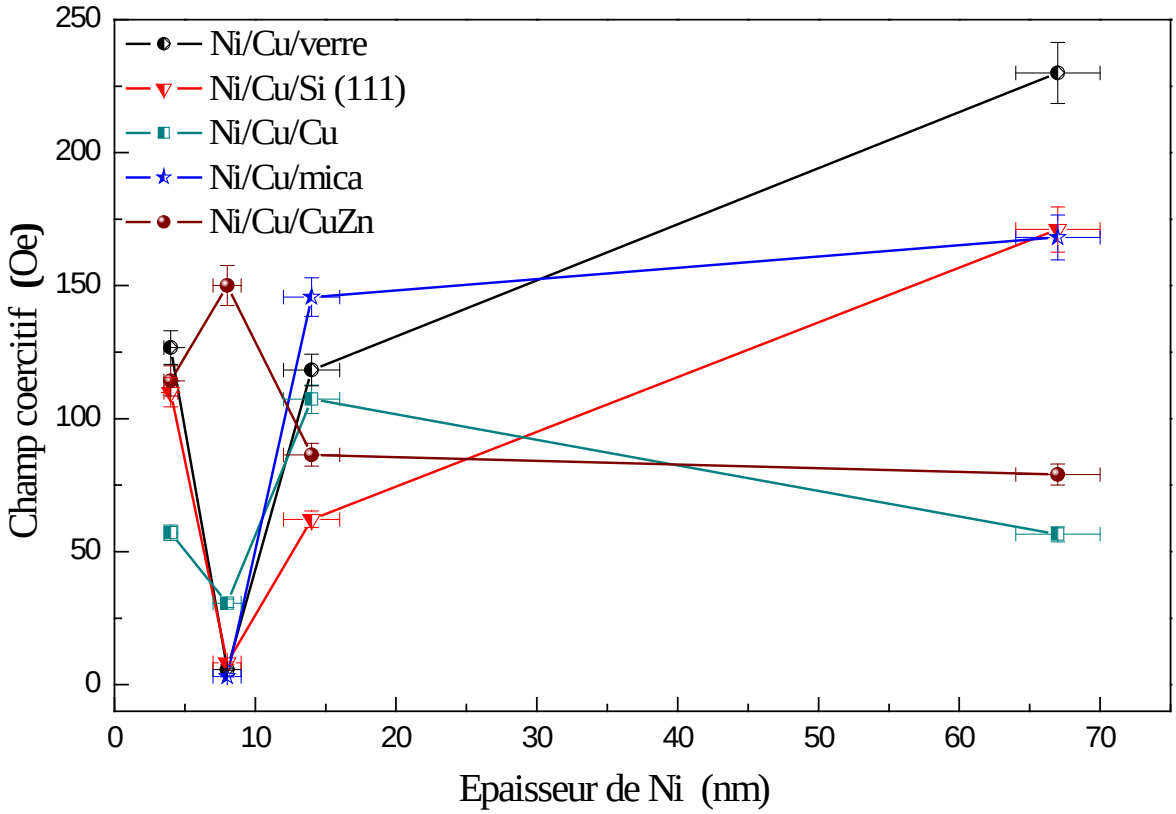


Fig. V.6. *Evolution du champ coercitif Hc (Oe) mesuré par VSM en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

II. 2. 1. 2. Effet de la taille moyenne des grains

L'étude de l'effet de la taille moyenne des grains sur le champ coercitif du système Ni/Cu/substrats est montrée dans le tableau V. 4. L'évolution du champ coercitif avec la taille moyenne des grains est différente pour les des cinq séries des couches de Ni. On constate que pour les bicouches déposées sur le verre et Si (111), le champ coercitif possède le même comportement. L'évolution de la coercivité avec la taille des grains présente un minimum pour la même épaisseur (t= 08 nm qui possède une faible vitesse de dépôt) à 5.7 Oe (pour D = 5.7 nm) et 8 Oe (pour D= 6.6 nm) pour les séries déposées sur verre et Si (111), respectivement. Au-delà de cette épaisseur, on remarque un comportement similaire pour les deux substrats, i.e. une augmentation de Hc à mesure que la taille de grains augmente jusqu'à une valeur maximale égale à 230 Oe (D= 14.1 nm) pour Ni/Cu/verre et 171 Oe (D= 13 nm) pour Ni/Cu/Si (111). Le comportement des bicouches déposées sur Cu et CuZn est différent de celui observé pour le verre et Si (111). En effet, le champ coercitif montre un maximum (minimum) à 150 Oe (à 31 Oe) correspondant à une taille de grain égale à 6.6 nm (5.6 nm) pour la série déposée sur les substrats de CuZn (Cu). Le maximum (minimum) correspond à

l'épaisseur 08 nm qui présente la plus faible vitesse de dépôt ; au-delà de ce maximum (minimum), le champ coercitif diminue (augmente) progressivement jusqu'à une valeur minimale (constante) égale à 79 Oe (57 Oe) pour la série déposée sur CuZn (Cu). Pour la série déposée sur le mica, le champ coercitif varie aléatoirement avec la taille moyenne des grains, cette série présente un minimum à 3 Oe (pour D=7.4 nm) et toujours pour la même épaisseur t= 08 nm.

Table. V. 4. *Champ coercitif Hc(Oe) et la taille des grains D (nm) de la couche mince de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

Système Ni/Cu/substrats									
Ni/Cu/verre		*Ni/Cu/Si (111)*		*Ni/Cu/mica*		*Ni/Cu/Cu*		*Ni/Cu/CuZn*	
D	*Hc*	*D*	*Hc*	*D*	*Hc*	*D*	*Hc*	*D*	*Hc*
3,4	127	5,6	62	6.2	146	5.3	107	5.4	114
5,6	5,7	6,6	08	7.4	03	5.6	31	6.6	150
6,6	118	10	110	10.3	168	6.1	57	7.2	86
14,1	230	13	171	*	*	12.8	57	14.3	79

II. 2. 2. Le facteur squarness

II. 2. 2. 1. Effet de l'épaisseur

On peut voir sur la figure V.7 que l'évolution du facteur squarness S est différente d'une série à une autre. L'évolution de S des bicouches déposées sur les substrats de verre présente une augmentation en fonction de l'épaisseur jusqu'à un maximum égal à 0.61 pour une épaisseur de 14 nm, ensuite il décroît à 0.48 pour la plus grande épaisseur de cette série (67 nm). Le facteur squarness des bicouches déposées sur les substrats de Si (111) varie de 0.10 jusqu'à 0.45 de façon aléatoire avec l'augmentation de l'épaisseur. Sur la même figure, S des bicouches déposées sur les substrats de Cu, CuZn et mica présente la même évolution en fonction de l'épaisseur. En effet, S présente une augmentation monotone avec l'épaisseur t. La série déposée sur CuZn présente une augmentation quasi-linéaire de S de 0.15 pour une épaisseur de 4 nm jusqu'à 0.67 pour une épaisseur de 67 nm. La même remarque a été observée pour les bicouches déposées sur mica, S augmente de 0.11 à t = 8 nm jusqu'à 0.46 pour t = 67 nm. Finalement, la série de Ni/Cu/Cu présente une augmentation monotone de S

avec l'épaisseur à partir d'une valeur minimale égale à 0.08 pour une épaisseur de 4 nm jusqu'à une valeur maximale égale à 0.67 pour t = 67 nm.

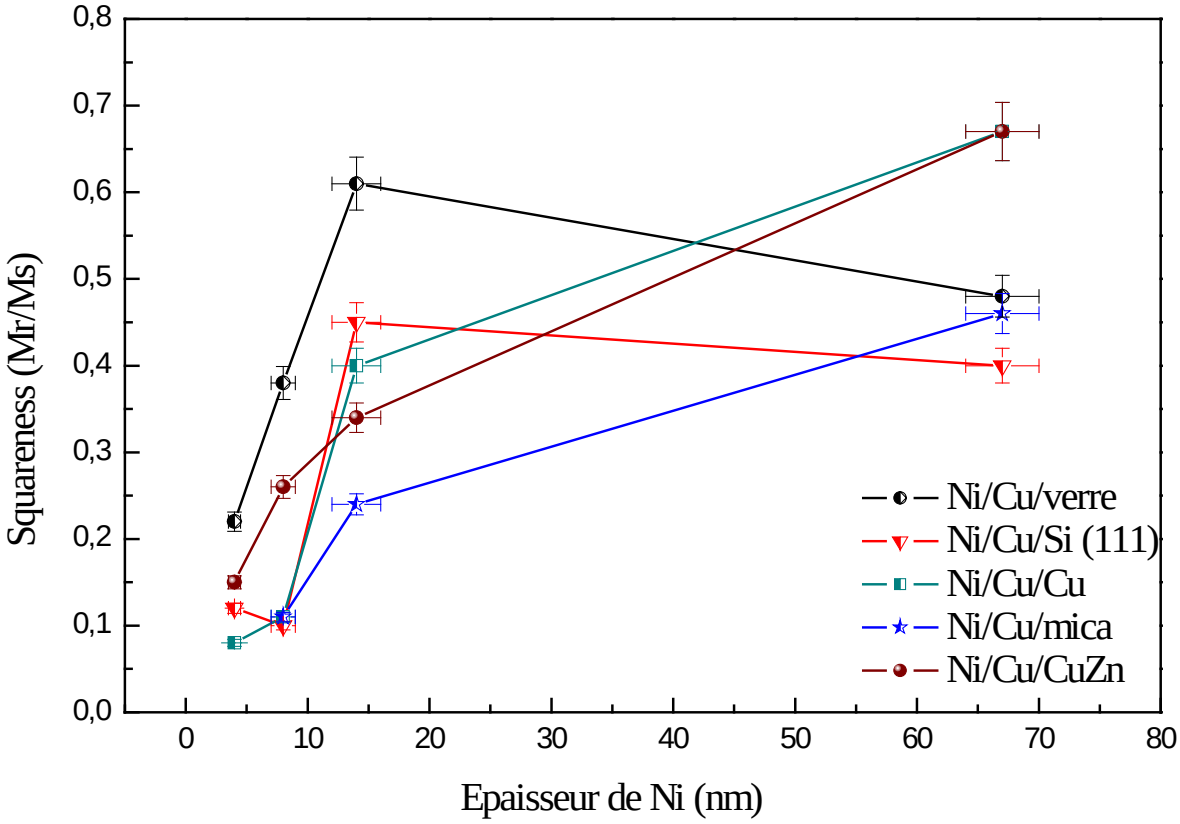


Fig. V. 7. *Evolution du facteur squarness S (Mr/Ms) mesuré par VSM en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

II. 2. 2. 2. Effet de la taille moyenne des grains

Le tableau V. 5 correspond à l'évolution de S avec la taille moyenne des grains de la couche de Ni pour le système Ni/Cu/substrats. On remarque sur tableau que S des bicouches déposées sur les substrats de CuZn présente une évolution quasi-linéaire avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. En effet, S augmente de 0.15 pour une taille moyenne de 5.4 nm jusqu'à 0.67 pour D= 14.3 nm. Un comportement similaire à celui des bicouches déposées sur CuZn a été trouvé pour les bicouches déposées sur les substrats de verre, mais avec une petite diminution pour la plus grande épaisseur. En effet, S augmente de 0.22 pour une taille moyenne égale 3.4 nm jusqu'à 0.61 à D = 6.6 nm. Pour la série déposée sur les substrats de mica, S varie de 0.11 à 0.46. L'évolution du facteur squarness S des bicouches déposées sur le Cu et Si (111) présente le même comportement, une diminution accompagnée par une augmentation. Concernant les bicouches déposées Si (111), S diminue puis augmente de

façon progressive pour atteindre une valeur maximale égale à 0.40 pour une taille de grains égale à 13 nm. Alors que pour les bicouches déposées sur Cu, nous avons remarqué une diminution suivie par une augmentation avec la taille moyenne des grains jusqu'à une valeur maximale égale à 0.67 qui correspond à une taille des grains égale à 12.8 nm.

Table. V. 5. *Le facteur squarness S et la taille des grains D (nm) de la couche mince de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

Système Ni/Cu/substrats									
Ni/Cu/verre		*Ni/Cu/Si (111)*		*Ni/Cu/mica*		*Ni/Cu/Cu*		*Ni/Cu/CuZn*	
D	*S*	*D*	*S*	*D*	*S*	*D*	*S*	*D*	*S*
3,4	0,22	5,6	0,45	6.2	0.24	5,3	0,40	5,4	0,15
5,6	0,38	6,6	0,10	7.4	0.11	5,6	0.11	6,6	0,26
6,6	0,61	10	0,12	10.3	0.46	6,1	0.08	7,2	0,34
14,1	0,48	13	0,40	*	*	12.8	0.67	14.3	0.67

II. 2. 3. Champ de saturation

II. 2. 3. 1. Effet de l'épaisseur

L'évolution du champ de saturation en fonction de l'épaisseur et du substrat est montrée sur la figure V. 8. Le comportement du champ de saturation avec l'augmentation de l'épaisseur est différent d'un substrat à un autre. Le champ de saturation augmente de façon progressive avec l'épaisseur pour les bicouches déposées sur le verre et sur le mica. Le champ de saturation de la série de Ni/Cu/verre augmente de 1.5 KOe jusqu'à 2.5 KOe pour des épaisseurs de 4 et 67 nm, respectivement. Pour la série de Ni/Cu/mica, le champ de saturation augmente de 0.52 KOe pour une épaisseur de 8 nm jusqu'à 1.48 KOe pour une épaisseur de 67 nm. Pour le reste des séries (les bicouches déposées sur Si (111), Cu, CuZn), l'évolution du champ de saturation avec l'épaisseur est radicalement différente de celle observée pour les deux autres séries (verre et mica). Le champ de saturation diminue à mesure que l'épaisseur de la couche de Ni augmente. Le champ de saturation des bicouches déposées sur le Si (111) est supérieur à celui des bicouches déposées sur Cu et CuZn. Hs diminue de 3.2 KOe (t= 04 nm) à 2.2 KOe (t= 67 nm) pour les bicouches Ni/Cu/Si (111). Le champ de saturation diminue de 2.2 KOe (t= 4 nm) jusqu'à 1.27 KOe (t= 67 nm) et de 2.3 KOe (t= 4 nm) jusqu'à 1.1 KOe (t= 67 nm) pour les séries de Ni/Cu/Cu et Ni/Cu/CuZn, respectivement.

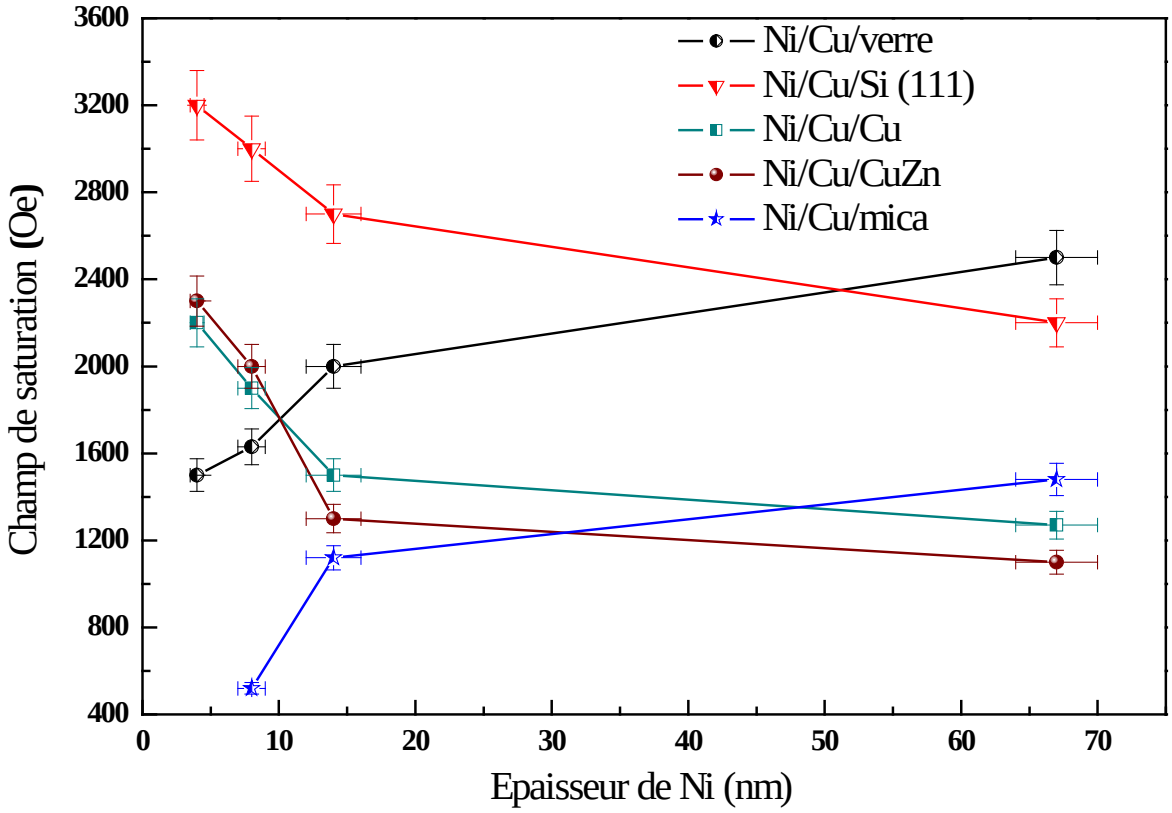


Fig. V.8. *Evolution du champ de saturation Hs (Oe) mesuré par VSM en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

Quand on fait une comparaison entre les valeurs du champ de saturation pour le système Ni/Cu/substrats on voit que : (i) Pour la plus faible épaisseur de la couche de Ni (t= 04 nm), Hs (Ni/Cu/Si) présente la plus grande valeur (Hs = 3.2 KOe) et Hs (Ni/Cu/verre) la plus petite (Hs= 1.5 KOe). Par contre, pour la plus grande valeur de l'épaisseur de la couche de Ni (t= 67 nm), Hs (Ni/Cu/verre) présente la plus grande valeur (Hs= 2.5 KOe) et Hs (Ni/Cu/CuZn) présente la plus petite valeur (Hs = 1.1 KOe).

II. 2. 3. 2. Effet de la taille moyenne des grains

L'évolution du champ de saturation Hs en fonction de la taille moyenne des grains D est représentée dans le tableau V.6. On observe le même comportement pour les bicouches déposées sur Si (111) et Cu, une augmentation puis Hs une diminution. En effet, le champ de saturation augmente progressivement de 2.7 KOe (1.5 KOe) pour une taille de 5.6 nm (5.3 nm) jusqu'à 3.2 KOe (2.2 KOe) pour une taille de 10 nm (6.1 nm) pour les bicouches déposées sur Si (Cu). D'autre part, nous avons remarqué que pour les bicouches déposées sur

verre, le champ de saturation augmente de façon monotone avec la taille moyenne des grains. Numériquement, il augmente de 1.5 KOe pour une taille de 3.4 nm jusqu'à 2.5 KOe pour D= 14.1 nm. Un comportement complètement inverse a été observé pour les bicouches déposées sur CuZn. En effet, le champ de saturation diminue de façon monotone avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. Il diminue de 2.3 KOe à D= 5.4 nm jusqu'à 1.1 KOe pour une taille égale à 14.3 nm. Pour la série déposée sur les substrats de mica, le champ de saturation varie aléatoirement avec l'augmentation de la taille moyenne des grains.

Table. V. 6. *Champ de saturation Hs (KOe) et la taille des grains <D (nm)> de la couche mince de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

Système Ni/Cu/substrats									
Ni/Cu/verre		*Ni/Cu/Si (111)*		*Ni/Cu/mica*		*Ni/Cu/Cu*		*Ni/Cu/CuZn*	
D	*Hs*	*D*	*Hs*	*D*	*Hs*	*D*	*Hs*	*D*	*Hs*
3,4	1.5	5,6	2.7	6.2	1.12	5.3	1.5	5.4	2.3
5,6	1.63	6,6	3	7.4	0.52	5.6	1.9	6.6	2
6,6	2	10	3.2	10.3	1.48	6.1	2.2	7.2	1.3
14,1	2.5	13	2.2	*	*	12.8	1.27	14.3	1.1

II. 3. Discussion et comparaison

Un des résultats intéressants obtenus pendant la caractérisation magnétique par VSM des couches minces de Ni en champ parallèle pour les deux systèmes est l'augmentation du champ coercitif avec l'augmentation de l'épaisseur de la couche mince de Ni pour les deux systèmes (tous les substrats). Cette dépendance peut être reliée aux champs de nucléation et de propagation des parois et / ou à la dispersion de l'anisotropie. Ces effets dépendent d'une manière générale de la composition de l'échantillon [14]. Dans notre cas, pour les conditions d'élaboration des couches minces de Ni du premier système, seul le substrat change. Ainsi, nous pouvons émettre comme hypothèse que le comportement du champ coercitif des couches minces de Ni sur les différents substrats en champ parallèle est dû à l'effet de ce substrat. D'autre part, dans le deuxième système, nous avons deux changements (substrat et épaisseur de la sous-couche de Cu). Ainsi, probablement l'augmentation du champ coercitif avec l'épaisseur est due à la contribution des deux effets : le substrat et la couche de Cu. Ce dernier effet apparaît clairement sur nos échantillons si on fait une comparaison entre les deux systèmes. En effet, les valeurs du champ coercitif du système Ni/substrats sont supérieures à

celles du système Ni/Cu/substrats, à l'exception de l'échantillon avec t= 8 nm qui présente la plus faible vitesse d'évaporation dans le deuxième système, ceci peut être une contribution supplémentaire dans le comportement du champ coercitif. Cependant, dans littérature, il n'y a pas de lois de variation précise pour décrire cette dépendance entre le substrat et la coercivité de la couche mince ferromagnétique. Le processus de retournement étant corrélé au champ nécessaire pour déplacer les parois de domaine, il faut tenir compte de la modification de l'énergie des parois afin de déterminer la loi de variation de la dépendance du champ coercitif avec l'épaisseur des couches minces.

Pour une épaisseur donnée, la série des couches de Ni sur le verre du premier système présentent la valeur du facteur squarness S la plus élevée (Mr/Ms = 0.90 pour une épaisseur de 50 nm), ce qui indique que pour ce substrat, la direction de l'axe de facile aimantation est majoritairement planaire. Il semblerait au vu de ces résultats que c'est le substrat qui influence les propriétés magnétiques des couches minces de Ni en champ parallèle dans la mesure où, dans les mêmes conditions d'élaboration, on observe des comportements magnétiques différents en fonction de l'épaisseur. Si on compare les valeurs de S entre les deux systèmes que nous avons étudiés, on remarque que les valeurs de S du système Ni/substrats sont supérieures à celles du système Ni/Cu /substrats pour une gamme d'épaisseurs inférieure à 67 nm.

À l'exception des séries de Ni/Cu/verre et Ni/Cu/mica qui présentent une augmentation monotone du champ de saturation avec l'épaisseur, le reste des séries montrent le même comportement, i.e. une diminution monotone du champ de saturation avec l'augmentation de l'épaisseur. Concernent la comparaison entre les deux systèmes, on remarque que le champ de saturation du deuxième système est supérieur à celui du premier. Cette remarque est valable pour une gamme d'épaisseur inférieure à 67 nm.

Le comportement du champ coercitif avec la taille moyenne des grains dans notre travail semble suivre le modèle de L. Néel. [15] (voir le chapitre I) pour la série des couches déposées sur Cu. Dans ce modèle, le calcul du champ coercitif est effectué pour les petits grains multi-domaine cubique de côté D, et conduit à une relation inversement proportionnelle entre le champ coercitif et la taille moyenne des grains. En effet, le champ coercitif diminue avec l'augmentation de la taille moyenne des grains dans la série Ni/Cu.

Par contre, les séries déposées sur le verre, Si (111) et le mica, montrent que la coercivité augmente de façon monotone avec la taille moyenne des grains. Ce qui est en accord avec le modèle de H. Hoffmann [16-19] (voir le chapitre I). Ce modèle développe une

relation proportionnelle entre le champ coercitif, la taille moyenne des grains et l'épaisseur. Notons que selon le modèle de H. Hoffmann, et pour les couches minces dans le cas de la taille moyenne des grains est inférieure à l'épaisseur de la couche mince ($D \leq t$), comme expliqué dans le chapitre I (pages 17-18), le champ coercitif augmente avec la taille moyenne des grains.

III. Etude des propriétés magnétiques par effet Kerr

III. 1. Etude du système Ni/substrats

Les méthodes magnétoptiques possèdent plusieurs avantages (le principe de fonctionnement est détaillé dans le chapitre II). Parmi ces avantages, on cite : (i) la facilité d'alignement de l'échantillon, (ii) la rapidité de la mesure, (iii) un bon rapport signal/bruit et une grande sensibilité. Cependant, avec les montages expérimentaux dont nous avons pu disposer, les études par ces méthodes sont restreintes aux faibles valeurs du champ extérieur. Dans notre étude, nous nous sommes intéressés au courbes d'hystérésis obtenues par effet Kerr dans la configuration longitudinale des couches minces de Ni et des bicouches de Ni/Cu sur différents substrats et pour différentes épaisseurs.

Sur la figure V. 9, nous montrons des cycles d'hystérésis de Ni sur : (i) différents substrats (verre, Si (111), mica et Cu) ayant la même épaisseur (t= 50 nm) [Fig. V.9.a] et (ii) des épaisseurs différentes (9, 42, 50 est 163 nm) pour le même substrat [Fig. V.9.b]. Fig. V.9.a et Fig. V. 9.b montrent donc l'effet du substrat et de l'épaisseur respectivement.

L'analyse de ces courbes permet de déterminer l'évolution des paramètres magnétiques (Hc, Hs et S). Des différences importantes sont notables dans cette configuration ; la forme du cycle d'hystérésis change en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni. En effet, pour une couche de t= 163 nm, on observe un cycle de forme différente de celle des cycles pour les faibles épaisseurs, les cycles deviennent de plus en plus étroits (diminution du champ coercitif) avec la diminution de l'épaisseur. Il semble que la forme spécifique du cycle se forme progressivement avec l'augmentation de l'épaisseur du film. Par ailleurs, il est nécessaire d'appliquer un champ magnétique de plus en plus important afin d'assurer la saturation. Ce résultat indique qu'il est de plus en plus difficile de saturer le film lorsque l'épaisseur de la couche augmente. Pour la même épaisseur, l'effet du substrat sur l'évolution des paramètres magnétiques est très clair. Alors que sur la forme des cycles (l'énergie dépensée) l'effet est pratiquement négligeable.

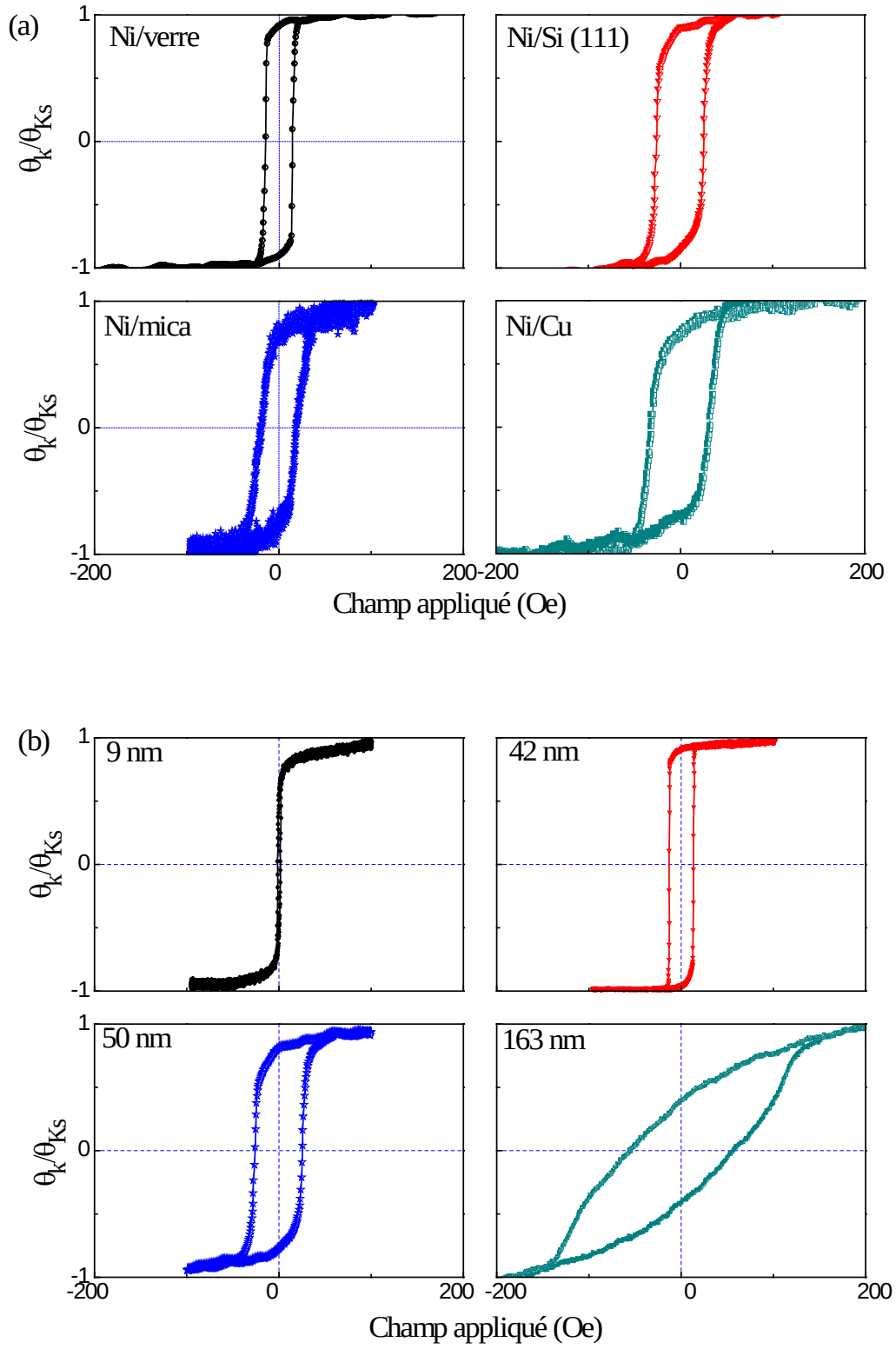


Fig .V. 9. *Cycles d'hystérésis, θ_k/θ_{Ks} en fonction de H pour : (a) effet du substrat (verre, Si (111), mica et Cu) et (b) effet de l'épaisseur (9, 42, 50 et 163 nm) pour la série de Ni/Si (111).*

III. 1. 1. Champ coercitif

III. 1. 1. 1. Effet de l'épaisseur

Nous allons étudier dans ce paragraphe l'évolution du champ coercitif des couches de Ni sur verre, Si (111), mica et Cu mesuré par effet Kerr. Notons que pour la série déposée sur Al_2O_3, on n'a pas pu mesurer le champ coercitif pour toute la série, sauf l'échantillon d'épaisseur t= 50 nm qui présente un champ coercitif égal 27 Oe, un champ de saturation égal 123 Oe et un facteur squarness égal 0.82.

Sur la figure V. 10, nous remarquons que le comportement du champ coercitif est le même pour les séries Ni/verre et Ni/Si (111). En effet, nous avons observé une augmentation monotone du champ coercitif avec l'épaisseur. La série déposée sur verre montre une augmentation linaire de Hc= 02 Oe pour une épaisseur de 9 nm jusqu'à 54 Oe pour t= 163 nm. Les mêmes valeurs du champ coercitif ont été trouvées pour la série déposée sur Si (111), à part l'échantillon d'épaisseur 50 nm qui présente une valeur de 26 Oe différente de celle de la série Ni/verre (15 Oe).

Pour les couches minces déposées sur mica et sur Cu, le champ coercitif présente un minimum qui correspond à une épaisseur de 50 nm. Ce minimum est égal à 32 Oe et 19 Oe pour Ni/Cu et Ni/mica, respectivement. La comparaison des valeurs du champ coercitif pour une épaisseur donnée (par exemple t= 50 nm), nous permet de les classer comme suit : Hc(Cu) > Hc(Si) > Hc (mica) > Hc (verre). Pour la plus grande épaisseur (t= 163 nm), la série déposée sur mica présente la plus grande valeur de champ coercitif (65 Oe) et la série déposée sur verre montre encore la plus faible valeur (Hc= 54 Oe). L'effet de l'épaisseur sur la douceur magnétique de nos couches minces de Ni est très clair pour les couches déposées sur verre et Si (111). Ainsi, le champ coercitif augmente avec l'épaisseur. Ceci est dû probablement à une augmentation de la densité d'énergie des parois. Suite à la présence des défauts (comme les joints de grains qui apparaissent avec la morphologie granulaire) à la surface des couches de Ni qui peuvent accrocher les parois, le champ magnétique nécessaire pour les décrocher n'en sera que plus important, d'où une augmentation du champ coercitif. Ce comportement peut aussi être attribué à d'autres phénomènes responsables des valeurs du champ coercitif, comme par exemples l'oxydation, le désordre. Donc, les défauts et les impuretés sont responsables des grandes valeurs du champ coercitif [20]. Notons que nos résultats sont comparables aux résultats trouvés par S. Z. Wu et al. [21] pour des couches minces de Ni/Cu. On peut citer aussi les couches minces de Ni/verre et de Ni/mica protégées

par Au, préparées par J. Pflaum et al. [22] qui ont mesuré des valeurs du champ coercitif variant entre 195 Oe et 75 Oe pour Ni/mica et 38 Oe (à t= 50 nm) pour Ni/verre. On note aussi que les couches minces de Ni/verre préparées par E. E. Shalyguina et al. [23] présentent des valeurs du champ coercitif inferieures ou égales à 10 Oe, pour une gamme d'épaisseurs allant de 50 à 200 nm.

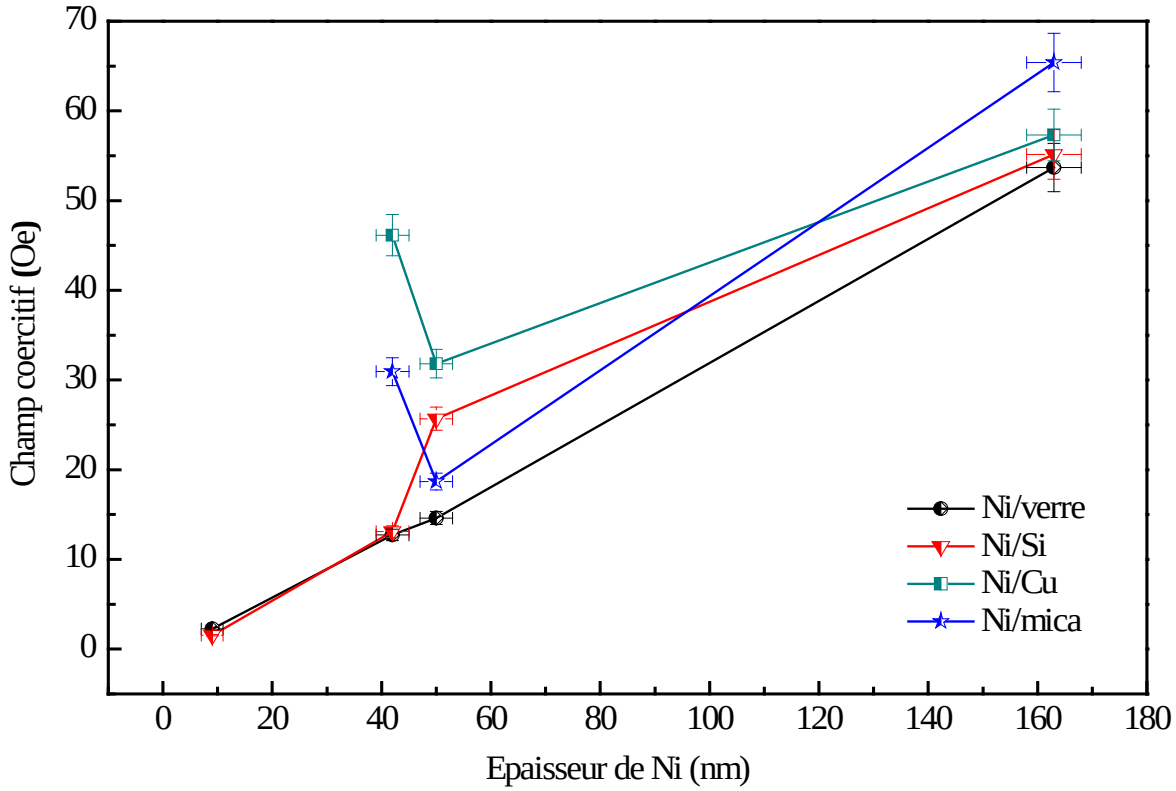


Fig. V. 10. *Evolution du champ coercitif Hc (Oe) mesuré par effet Kerr en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/substrats.*

III. 1. 1. 2. Effet de la taille moyenne des grains

Dans ce paragraphe nous nous intéressons à l'étude de l'évolution du champ coercitif en fonction de la taille moyenne des grains. La figure V. 11 illustre l'évolution du champ coercitif des couches de Ni/substrats (verre, Si (111), mica et Cu). On constate que pour les séries de Ni/verre et Ni/Si (111), le champ coercitif Hc augmente à mesure que la taille des grains D augmente. Sur le verre, Hc augmente de 02 Oe jusqu'à 54 Oe lorsque D varie de 4.4 nm à 13.7 nm. Alors que pour la série déposée sur Si (111), Hc augmente de 2 Oe (D= 5 nm) jusqu'à 55 Oe (D= 15 nm). Pour les séries de Ni/mica et Ni/Cu, l'évolution de Hc en fonction de D présente un minimum. Ce minimum est égal à 32 Oe (19 Oe) pour une taille de grains

égale à 5.3 nm (7.4 nm) pour la série déposée sur Cu (mica). Notons que pour l'échantillon de la série déposée sur l'alumine, le champ coercitif est égal 27 Oe et correspond à D= 4 nm.

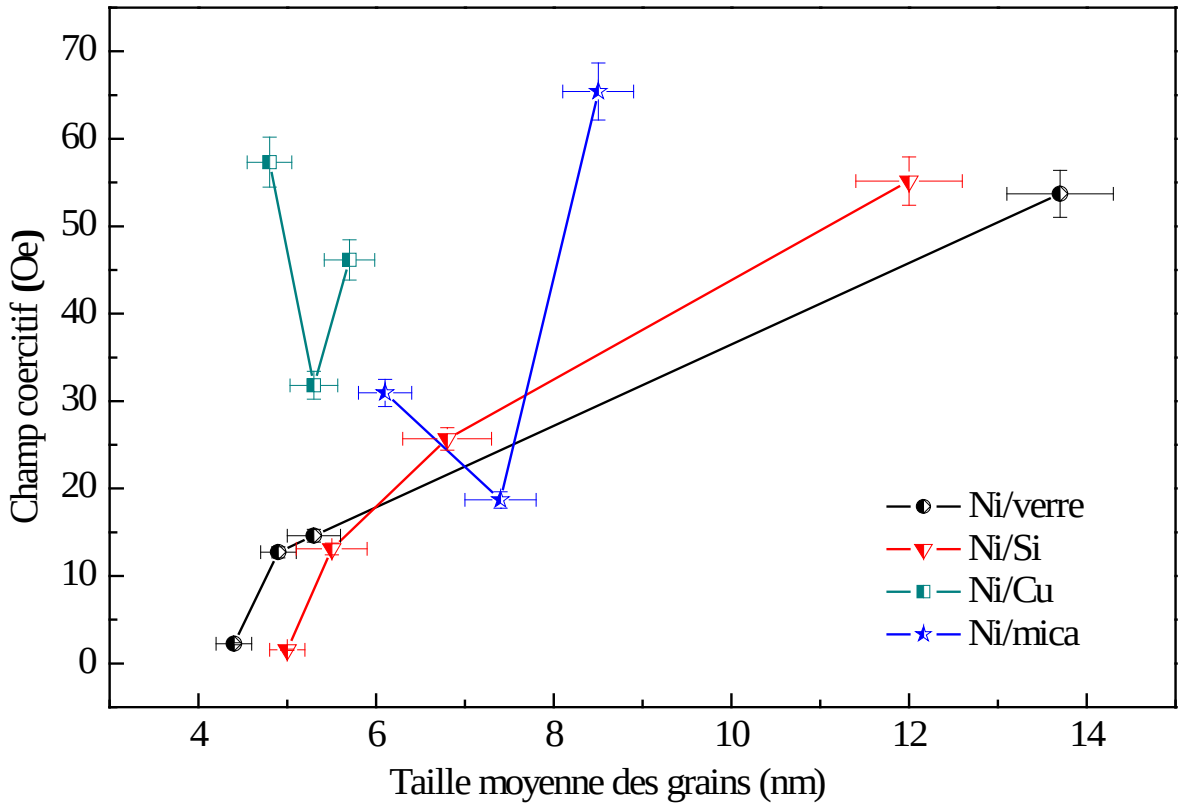


Fig. V. 11. *Evolution du champ coercitif Hc (Oe) mesuré par effet Kerr en fonction de la taille moyenne des grains de la couche de Ni du système Ni/substrats.*

III. 1. 2. Le facteur squarness

III. 1. 2. 1. Effet de l'épaisseur

Les valeurs du facteur squarness S ($\theta_{kr}/\theta_{ksat}$) relatives à nos échantillons du système Ni/substrats ont été calculées à partir des cycles hystérésis mesurés par effet Kerr, et sont présentées sur la figure V. 12. Le facteur squarness des séries déposées sur Cu et sur mica présente le même comportement ; S diminue progressivement avec l'augmentation de l'épaisseur, S diminue de 0.87 jusqu'à 0.45 pour la série de Ni/Cu et de 0.89 jusqu'à 0.67 pour la série de Ni/mica lorsque l'épaisseur augmente de 42 à 163 nm. Cependant les valeurs de S de la série déposée sur mica sont supérieures à celles de la série déposée sur Cu. Les autres séries montrent des évolutions différentes d'un substrat à un autre. Pour la série déposée sur verre, S présente une augmentation monotone pour les trois premières épaisseurs

puis une diminution jusqu'à S = 0.51 pour t = 163 nm. Pour la série déposée sur le Si (111), on observe une augmentation jusqu'à S = 0.91 qui correspond à t= 42 nm puis une diminution jusqu'à une valeur de S égale à 0.45 pour t = 163 nm.

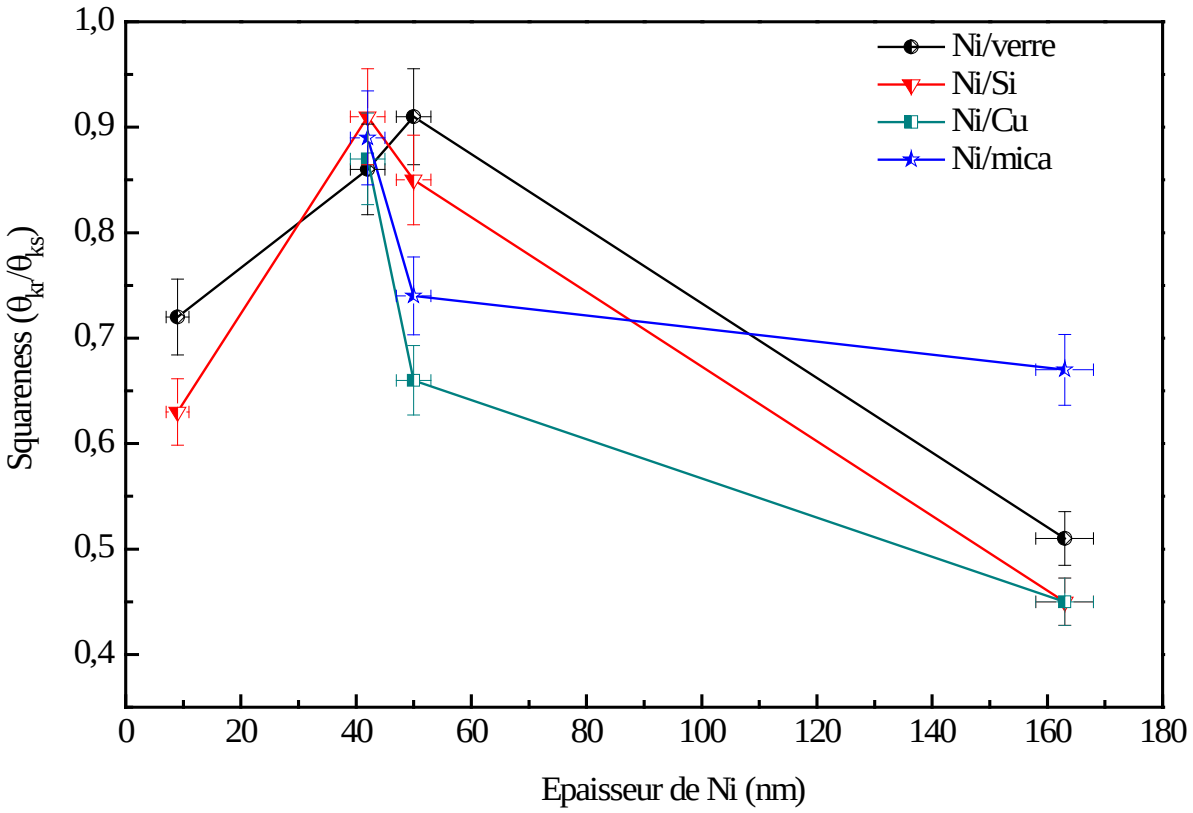


Fig. V. 12. *Evolution du facteur squarness S (θ_{Kr}/θ_{Ks}) mesuré par effet Kerr en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/substrats.*

III. 1. 2. 2. Effet de la taille moyenne des grains

Nous avons représenté sur le tableau V. 7 l'évolution du facteur squarness S avec la taille moyenne des grains D de nos couches minces de Ni. Cette évolution est différente d'une série (substrat) à une autre. Pour la série déposée sur Cu, S augmente de façon monotone avec D jusqu'à S= 0.87 qui correspond à une taille égale à 5.7 nm. Un comportement inverse a été observé pour la série de Ni/mica, où il y a une diminution de S jusqu'à 0.67 pour une taille égale à 8.5 nm. L'échantillon de Ni (50 nm)/Al_2O_3 présente une valeur de S égale à 0.82 pour D= 4 nm. D'autre part, pour les couches déposées sur le verre, S augmente jusqu'à un maximum égal à 0.91 correspondant à D = 5.3 nm, au de-là de cette taille, S diminue jusqu'à 0.51. Pour la série de Ni/Si (111), on observe une augmentation puis une diminution jusqu'à atteint une valeur minimale égale à 0.45 pour la plus grande taille de grains (D= 15 nm).

Table. V. 7. *Taille moyenne des grains D (nm) et facteur squarness S de la couche mince de Ni du système Ni/substrats.*

Système Ni/substrats							
Ni/verre		***Ni/Si (111)***		***Ni/Cu***		***Ni/mica***	
D (nm)	*S*	*D (nm)*	*S*	*D (nm)*	*S*	*D (nm)*	*S*
4,4	0,72	5	0,63	4,8	0,45	6,1	0,89
4,9	0,86	5,5	0,91	5,3	0,66	7,4	0,74
5,3	0,91	6,8	0,85	5,7	0,87	8,5	0,67
13,7	0,51	15	0,45	*	*	*	*

III. 1. 3. Champ de saturation

III. 1. 3. 1. Effet de l'épaisseur

L'évolution du champ de saturation Hs des couches minces de Ni déposées sur les différentes substrats (verre, Si (111), mica et Cu) est montrée sur la figure V. 13. Le champ de saturation augmente de façon monotone avec l'épaisseur indépendamment de type du substrat. Numériquement, pour les films déposés sur les substrats de verre, Hs augmente de 50 jusqu'à 130 Oe pour des épaisseurs allant de 9 à 163 nm. La série déposée sur le Si (111) montre des valeurs de Hs supérieures à celles de Ni/verre, elles varient de 62 Oe (pour t= 9 nm) jusqu'à 160 Oe (pour t= 163 nm). Les valeurs du champ de saturation de la série déposée sur Cu sont les plus grandes dans ce système (Ni/substrats), Hs de cette série augmente de 110 Oe (pour t= 9 nm) jusqu'à 185 Oe (pour t= 163 nm). D'autre part, les valeurs de Hs enregistrées pour la série de Ni/mica sont les plus faibles comparativement à celles des autres séries, ainsi le champ de saturation augmente de 41 (t= 42 nm) jusqu'à 130 Oe (t= 163 nm). On remarque que l'effet du substrat et de l'épaisseur est très clair sur le comportement de Hs.

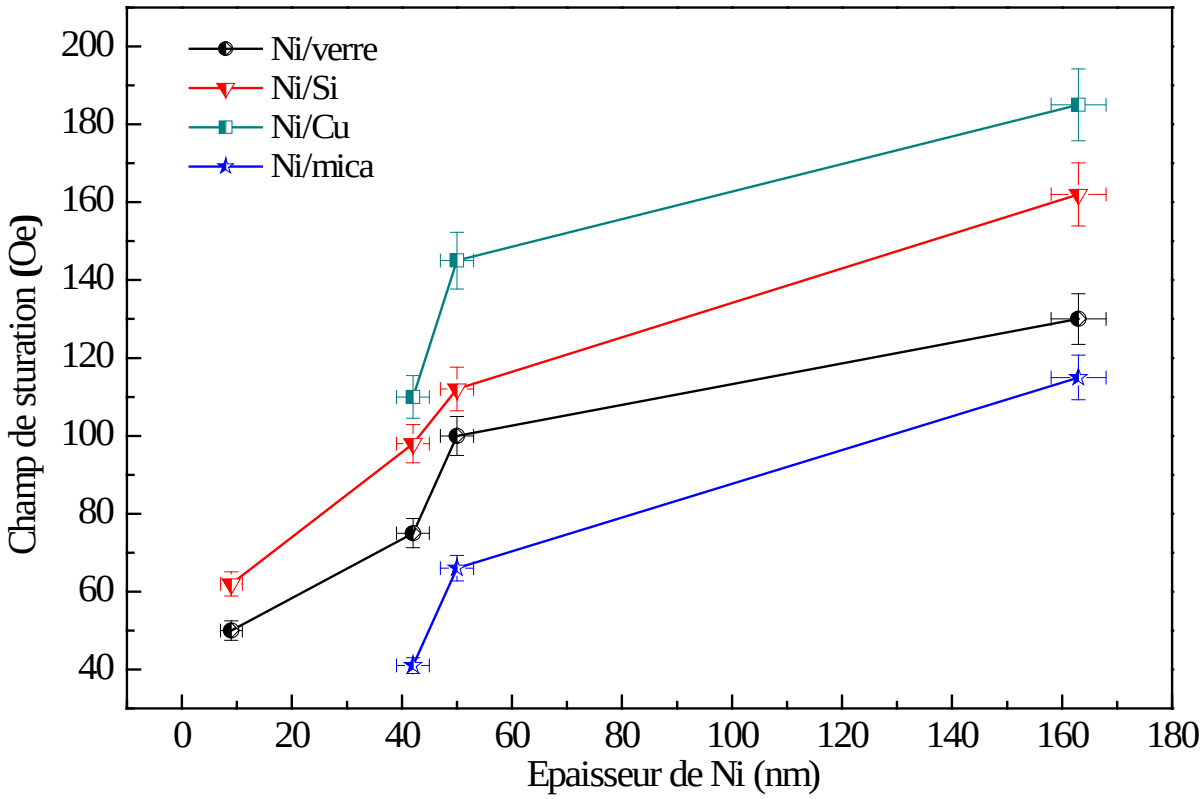


Fig. V.13. *Evolution du champ de saturation Hs (Oe) mesuré par effet Kerr en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/substrats.*

III. 1. 3. 2. Effet de la taille moyenne des grains

A partir de la figure V. 14, on peut voir l'évolution du champ de saturation en fonction de la taille moyenne des grains des couches minces de Ni déposées sur le verre, Si (111), mica et Cu. Pour ce dernier, on voit une diminution monotone du champ de saturation avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. Il décroit de 185 Oe (pour D= 4.8 nm) jusqu'à 110 Oe (pour D= 5.7 nm). Les autres séries possèdent le même comportement avec la taille des grains, une augmentation monotone de Hs avec D. En effet, pour les films déposés sur les substrats de verre, on remarque que Hs augmente de façon monotone jusqu'à une valeur maximale égale 130 Oe correspondant à D= 13.7 nm. L'évolution du champ de saturation pour la série déposée sur Si (111) montre une augmentation progressive de 62 Oe pour D= 05 nm jusqu'à 162 Oe pour D= 15 nm. Pour la série déposée sur le mica, l'évolution du champ de saturation présente une augmentation quasi-linéaire de 41 Oe (pour D= 6.1 nm) jusqu'à 130 Oe (pour D= 8.5 nm). Dans ce système, l'échantillon Ni (50nm)/Al_2O_3 possède un champ de saturation égal à 142 Oe correspondant à une taille moyenne de grains égale à 4 nm.

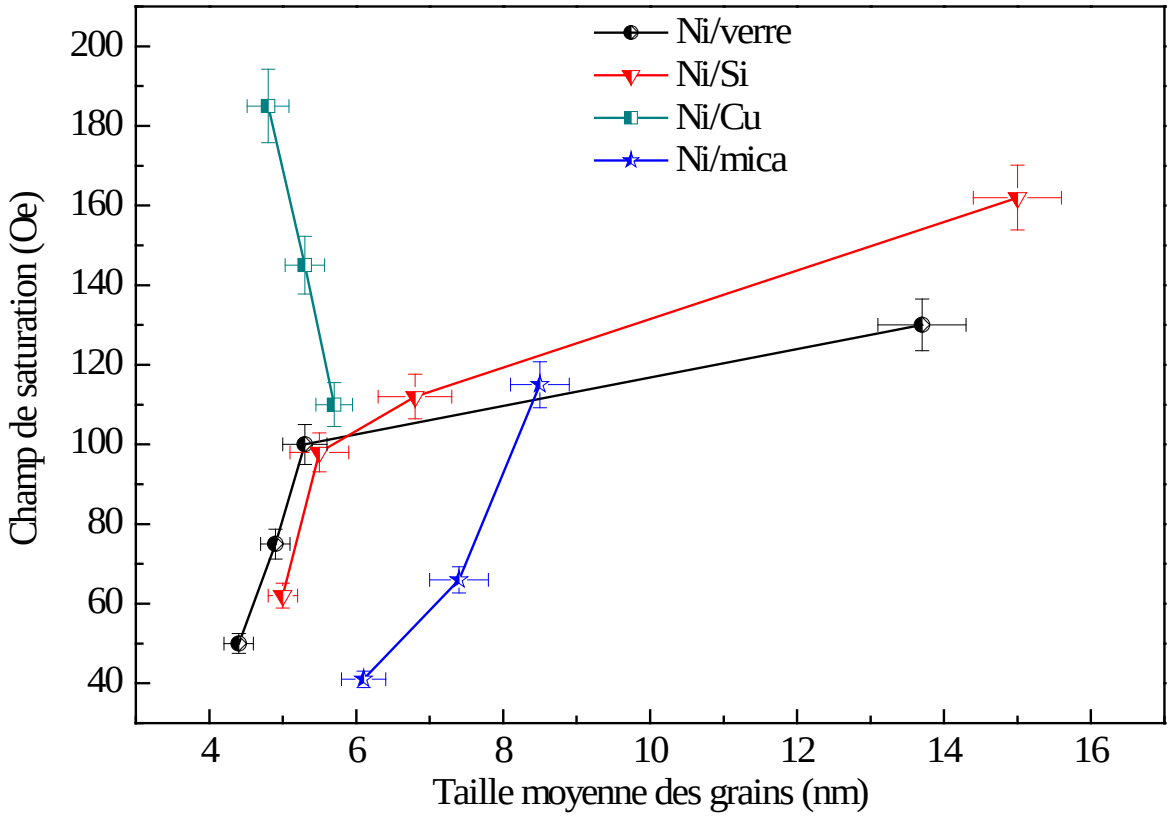


Fig. V. 14. *Evolution du champ de saturation mesuré par effet Kerr en fonction de la taille moyenne des grains de la couche de Ni du système Ni/substrats.*

III. 2. Etude du système Ni/Cu/substrats

Dans cette section, nous avons utilisé l'effet Kerr en configuration longitudinale pour caractériser les films de Ni (avec la présence de la sous-couche de Cu) pour le système Ni/Cu/substrats (substrats : verre, Si (111), mica, Cu et CuZn). Cette caractérisation nous a permis de déterminer les différents paramètres magnétiques (Hc, S et Hs) à partir des cycles d'hystérésis. L'étude de l'évolution de ces paramètres a été faite dans une gamme d'épaisseurs variant de 8 nm jusqu'à 67 nm pour les couches minces de Ni et pour deux épaisseurs de la sous-couche de Cu (52 nm et 90 nm).

Nous montrons sur la figure V. 15 une comparaison entre les cycles d'hystérésis pour voir l'effet du substrat (verre, Si, mica et Cu) avec une épaisseur fixe t= 24 nm [Fig. V. 15.a] et l'effet de l'épaisseur (8, 14, 24 et 67 nm) pour la série de Ni/Cu/Si (111) [Fig. V. 15.b]. L'effet de l'épaisseur et du substrat est clair sur la forme du cycle (énergie dépensée) et sur le comportement des paramètres magnétiques (Hc, S et Hs).

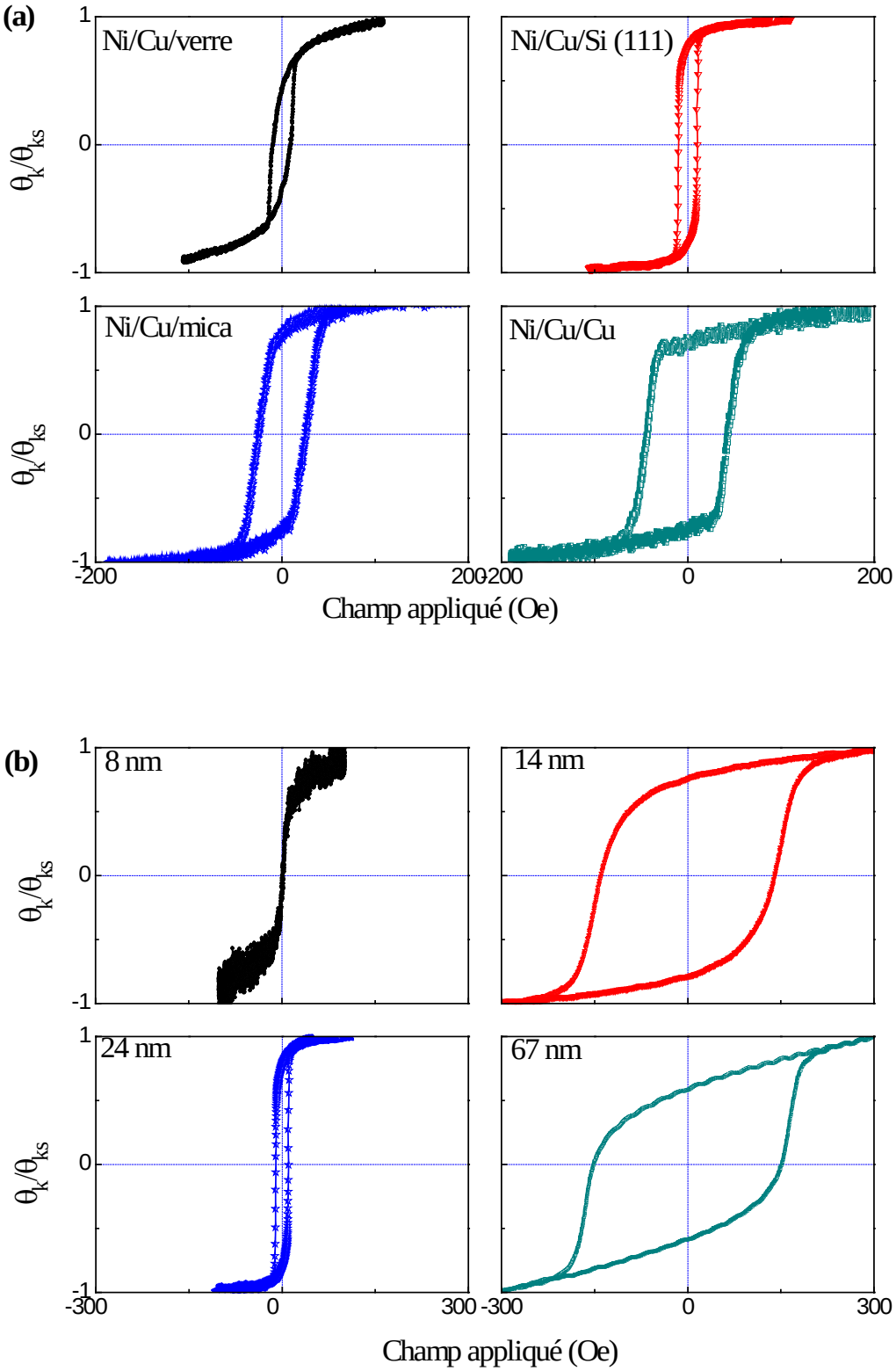


Fig .V. 15. *Cycles d'hystérésis, θ_K/θ_{Ks} en fonction de H pour : (a) effet du substrat (verre, Si, mica et Cu) avec t= 24 nm et (b) effet de l'épaisseur (8, 14, 24 et 67 nm) pour la série de Ni/Si (111).*

III. 2. 1. Champ coercitif

III. 2. 1. 1. Effet de l'épaisseur

Sur la figure V. 16, nous exposons l'évolution du champ coercitif du système Ni/Cu/substrats. L'évolution du champ coercitif possède le même comportement pour les deux séries des bicouches déposées sur le verre et Si (111). En effet, le champ coercitif augmente globalement à mesure que l'épaisseur de la couche de Ni augmente. Ceci avec la présence d'un minimum correspondant à l'échantillon d'épaisseur de Ni égale à 24 nm. Notons que ce dernier (échantillon) présente une épaisseur de la sous-couche de Cu égale à 90 nm et différente de celles des autres bicouches qui est égale à 52 nm. Numériquement, le champ coercitif augmente de 02 Oe (01 Oe) pour une épaisseur de 08 nm jusqu'à 77 Oe (151 Oe) pour une épaisseur de 67 nm pour la série des bicouches déposées sur verre (Si). Pour la série des bicouches déposées sur le mica, le champ coercitif Hc augmente de façon linéaire avec l'épaisseur jusqu'à atteindre une valeur maximale égale à 77 Oe pour une épaisseur de 67 nm. Les bicouches déposées sur les substrats de CuZn montrent un comportement pratiquement inverse à celui de Ni/Cu/mica ; Hc diminue jusqu'à une valeur minimale égale 31 Oe qui correspond à la plus grande épaisseur (67 nm). Le champ coercitif de Ni/Cu/Cu présente un minimum correspondant à 43 Oe pour une épaisseur de 24 nm pour la couche mince de Ni et de 90 nm pour Cu.

Pour une épaisseur donnée (par exemple 67nm), les bicouches déposées sur Si (111) présentent la plus grande valeur de Hc (151 Oe), alors que la plus faible valeur est observée dans la série déposée sur le CuZn (31 Oe). D'autre part, pour la plus faible épaisseur (08 nm), les bicouches déposées sur le verre, Si (111) et mica montrent la même valeur du champ coercitif (~ 2 Oe).

Le comportement du champ coercitif avec l'épaisseur de la série des bicouches déposées sur Si est similaire à celui trouvé par H. M. Hwang et al. [24]. Pour le système de Cu/Ni (t=2.5 - 6.5nm)/Cu/Si, les auteurs trouvent une augmentation rapide du champ coercitif de 75 jusqu'à 225 Oe, augmentation qui peut être due à l'augmentation de la densité des dislocations [25]. B. Schirmer et al. [26] trouvent une valeur du champ coercitif égale à 8.8 Oe pour des multicouches de Ni/Cu. Cette valeur est inférieure à celle mesurée dans ce travail. Aussi, G. Gubbiotti et al. [27] ont trouvé des valeurs du champ coercitif égales à 65 et 135 Oe pour des épaisseurs de 3 et 6 nm.

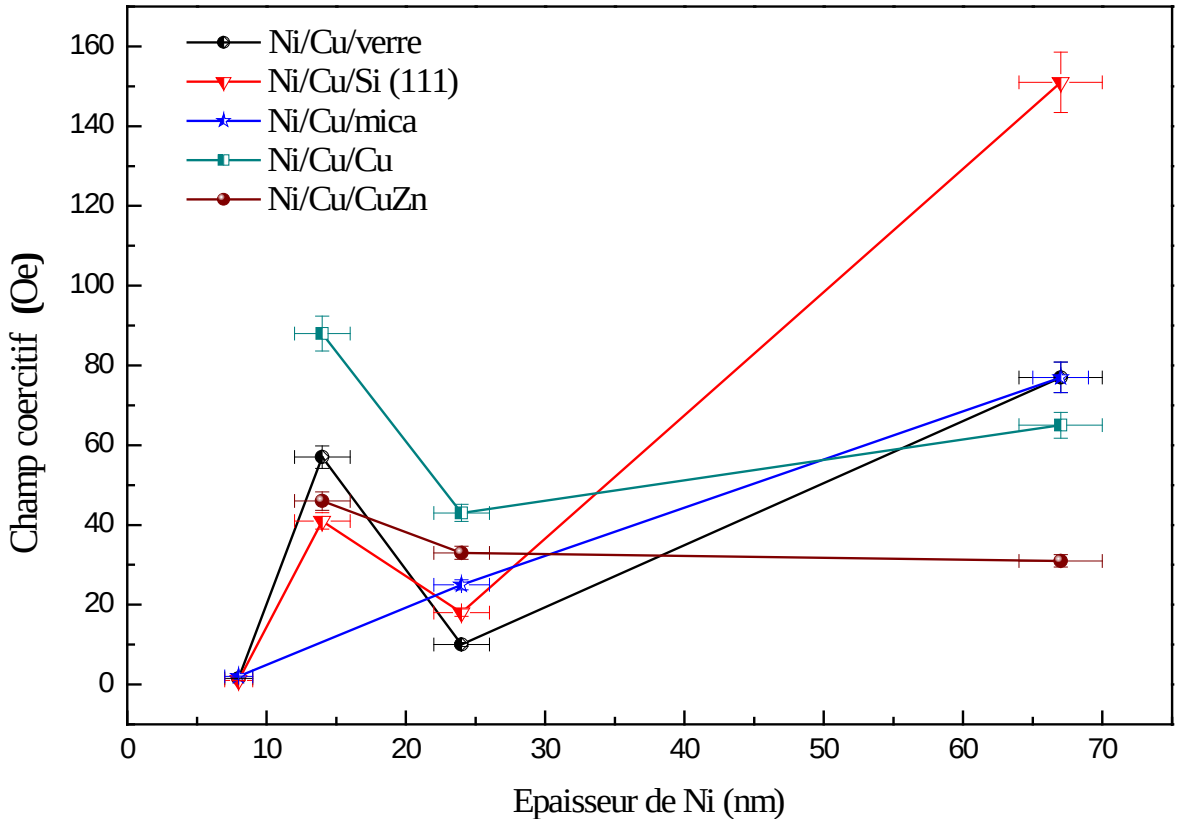


Fig. V. 16. *Evolution du champ coercitif Hc (Oe) mesuré par effet Kerr en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

III. 2. 1. 2. Effet de la taille moyenne des grains

Dans le tableau V. 8, nous montrons la variation du champ coercitif Hc mesuré par effet Kerr avec la taille moyenne des grains D pour le système de Ni/Cu/substrats. L'évolution du champ coercitif des bicouches Ni/Cu avec la taille moyenne des grains est différente d'un substrat à un autre. On constate que pour les bicouches déposées sur les substrats de CuZn, Hc diminue de façon monotone avec l'augmentation de D ; il décroit de 76 Oe pour une taille de 7.2 nm jusqu'à 31 Oe pour une taille 14.3 nm. Le même comportement a été remarqué pour les bicouches déposées sur le Si (111), une diminution progressive du champ coercitif jusqu'à Hc = 01 Oe pour une taille des grains égale à 6.6 nm. Pour les bicouches déposées sur les substrats de verre, à l'exception de l'échantillon qui présente la plus grande épaisseur de Cu (90 nm), Hc augmente progressivement avec D ; il augmente de 02 Oe jusqu'à 77 Oe pour des tailles de grains allant de 5.6 à 14.1 nm. Pour la série des bicouches déposées sur les substrats de Cu (mica), l'évolution de la coercivité avec

la taille des grains présente un minimum à Hc= 43 Oe (02 Oe) pour une taille des grains égale 5.9 nm (7.4 nm).

Table. V. 8. *Taille des grains <D (nm)> et champ coercitif Hc (Oe) de la couche mince de Ni du système Ni/ substrats.*

Système Ni/Cu/substrats									
Ni/Cu/verre		*Ni/Cu/Si (111)*		*Ni/Cu/mica*		*Ni/Cu/Cu*		*Ni/Cu/CuZn*	
D	*Hc*	*D*	*Hc*	*D*	*Hc*	*D*	*Hc*	*D*	*Hc*
5,6	02	5,6	41	5,8	25	5,3	88	7,2	76
6,6	57	6,2	18	7,4	02	5,9	43	8,2	33
8	10	6,6	01	10,3	77	12,8	65	14,3	31
14,1	77	13	151	*	*	*	*	*	*

III. 2. 2. Le facteur squarness

III. 2. 2. 1. Effet de l'épaisseur

La figure V.17 illustre l'évolution du facteur squarness S en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni pour les différents substrats. Pour les bicouches déposées sur les substrats de verre, S augmente progressivement avec l'épaisseur jusqu'à une valeur maximale égale à 0.77 pour une épaisseur de 67 nm. Un comportement semblable à ce dernier a été trouvé pour les bicouches déposées sur le Si (111) dans la gamme des faibles épaisseurs (pour t inférieure à 24 nm), avec des valeurs supérieures à celles trouvées pour les bicouches déposées sur le verre. Ainsi, S augmente de 0.60 pour une épaisseur de 8 nm jusqu'à S= 0.81 pour une épaisseur de 24 nm. Pour les bicouches déposées sur les substrats de Cu et de CuZn, S possède la même évolution : une diminution monotone avec l'augmentation de l'épaisseur. En effet, pour la série des bicouches déposées sur Cu (CuZn), S décroit de 0.81 (0.85) pour une épaisseur égale 14 nm jusqu'à 0.63 (0.67) pour une épaisseur égale à 67 nm. Finalement, le facteur squarness de la série de Ni/Cu/mica varie entre 0.51 et 0.76.

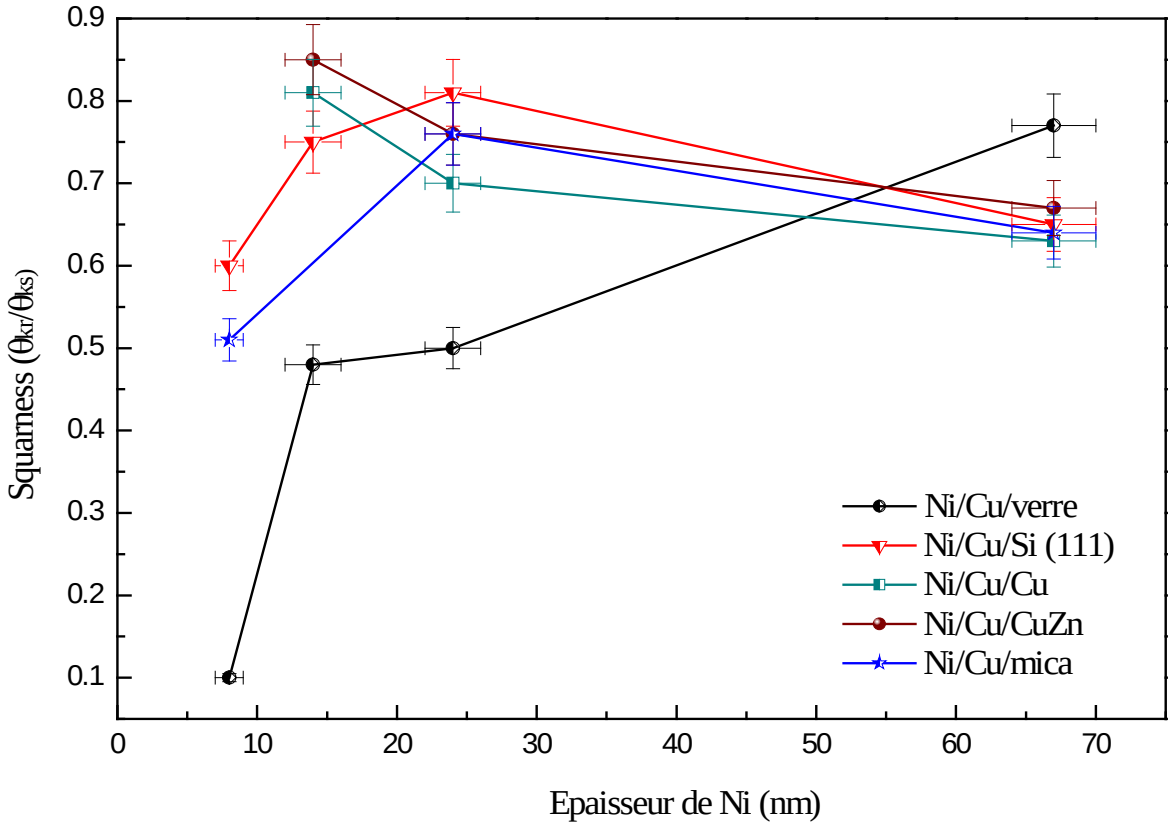


Fig. V. 17. *Evolution du facteur squarness S (θ_{Kr}/θ_{Ks}) mesuré par effet Kerr en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du le système Ni/Cu/substrats.*

III. 2. 2. 2. Effet de la taille moyenne des grains

La variation de S des bicouches déposées sur les substrats de verre, Si (111), mica, Cu et CuZn avec la taille moyenne des grains D est montrée dans le tableau V. 9. Pour la série Ni/Cu/verre, S augmente progressivement avec D jusqu' à une valeur maximale égale 0.77 pour D égale à 14.1 nm. Le facteur squarness de la série des bicouches déposées sur le Si (111) possède des valeurs plus grandes ; S varie entre 0.60 et 0.81 pour des tailles variant entre 5.6 nm et 13 nm. On remarque aussi que l'évolution du squarness des bicouches déposées sur le mica présente un minimum à 0.51 pour une D égale à 7.4 nm. Pour l'évolution de S des bicouches déposées sur les substrats de Cu et CuZn, nous avons trouvé une diminution monotone avec l'augmentation de la taille moyenne des grains. Ainsi, pour la série des bicouches de Ni/Cu/Cu (Ni/Cu/CuZn), S décroit de 0.81 (0.85) pour une taille égale 5.3 nm (7.2 nm) jusqu'à 0.63 (0.67) pour une taille égale à 12.8 nm (14.3 nm).

Table. V. 9. *Taille des grains <D (nm)> et facteur squarness S de la couche mince de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

Système Ni/Cu/substrats									
Ni/Cu/verre		*Ni/Cu/Si (111)*		*Ni/Cu/mica*		*Ni/Cu/Cu*		*Ni/Cu/CuZn*	
D	*S*	*D*	*S*	*D*	*S*	*D*	*S*	*D*	*S*
5,6	0,1	5,6	0,75	5,8	0,76	5,3	0,81	7,2	0,85
6,6	0,48	6,2	0,81	7,4	0,51	5,9	0,70	8,2	0,76
8	0,50	6,6	0,60	10,3	0,64	12,8	0,63	14,3	0,67
14,1	0,77	13	0,65	*	*	*		*	*

III. 2. 3. Champ de saturation

III. 2. 3. 1. Effet de l'épaisseur

La figure V.18 représente l'évolution du champ de saturation Hs des bicouches Ni/Cu en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni et du substrat. Nous remarquons sur cette figure que les bicouches déposées sur les substrats de verre et de Si (111) possèdent un comportement similaire, Hs augmente globalement avec l'épaisseur. En effet, pour les bicouches déposées sur verre (Si), Hs augmente de 32 Oe (25 Oe) pour t= 8 nm jusqu'à 320 Oe (220 Oe) à t= 67 nm. Il est bien de noter que cette évolution présente un minimum correspondant à l'échantillon d'épaisseur de 24 nm de Ni (90 nm de Cu). On peut voir clairement que le champ de saturation de la série Ni/Cu/verre est supérieur à celui de la série Ni/Cu/Si (111). Nous avons observé aussi que les bicouches déposées sur le Cu et mica possèdent le même comportement : une augmentation quasi-linéaire avec l'épaisseur ; Hs des bicouches déposées sur le Cu (mica) augmente de 120 Oe (25 Oe) pour une épaisseur de 14 nm (08nm) jusqu'à 225 Oe (220 Oe) pour à la plus grande épaisseur (67 nm). Pour la série déposée sur le CuZn, Hs diminue de façon monotone avec l'épaisseur jusqu'à une valeur minimale égale à 91 Oe pour t= 67 nm.

Si on fait une comparaison entre les valeurs du champ de saturation de ce système, on trouve que : (i) Les bicouches déposées sur verre montrent les plus grandes valeurs de Hs, soit pour la plus faible (08 nm) ou pour la plus grande épaisseur (67 nm). (ii) Les bicouches déposées sur le mica et Si (111) montrent les mêmes valeurs pour la plus faible épaisseur (25 Oe pour t= 08 nm) et pour la plus grande épaisseur (220 Oe pour t= 67 nm).

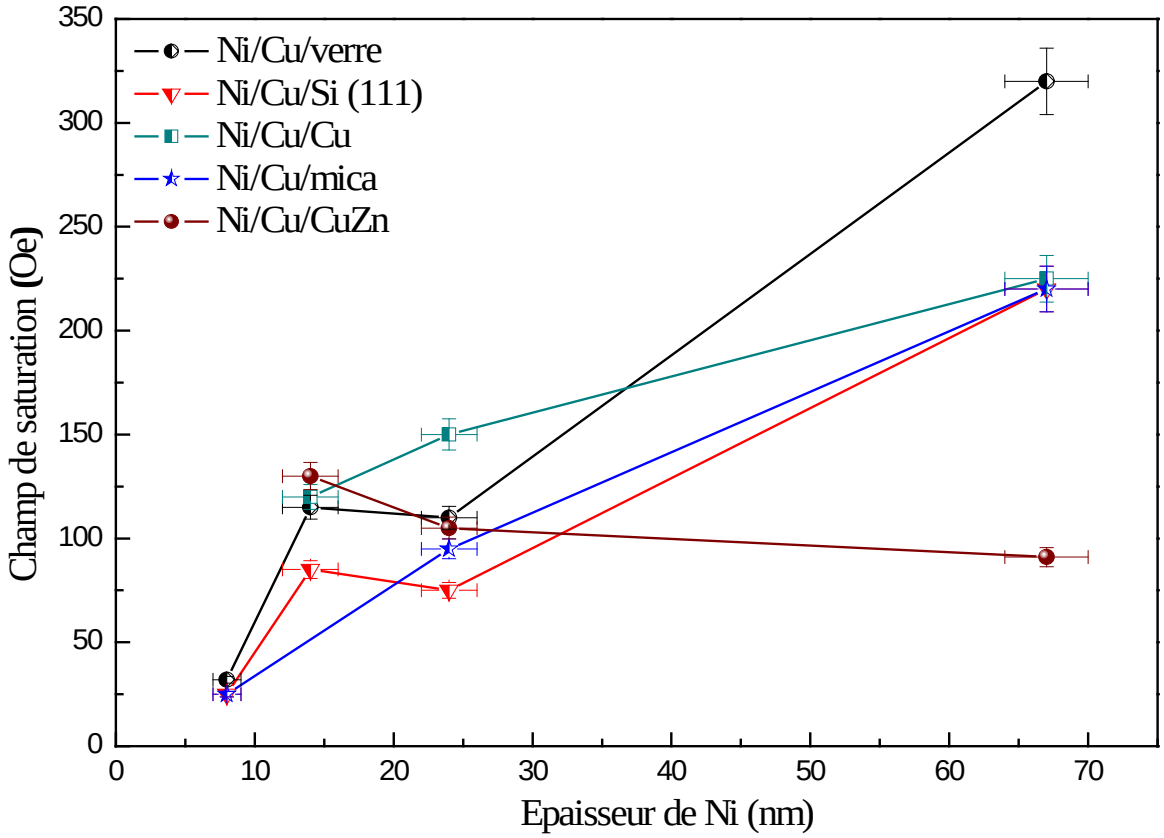


Fig. V. 18. *Evolution du champ de saturation Hs (Oe) mesuré par effet Kerr en fonction de l'épaisseur de la couche de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

III. 2. 3. 2. Effet de la taille moyenne des grains

La variation du champ de saturation avec la taille moyenne des grains pour les bicouches du système Ni/Cu/Substrats est représentée dans le tableau V. 10. Pour la série déposée sur le verre, le champ de saturation augmente avec la taille moyenne des grains, avec néanmoins un minimum à 110 Oe pour une taille de D= 08 nm (t= 24 nm). Les bicouches déposées sur Si (111) montrent une diminution monotone jusqu'à un champ égal à 25 Oe pour D= 6.6 nm ensuite une augmentation à 220 Oe pour D= 13 nm. Le champ de saturation de la série déposée sur le mica présente un minimum à Hs= 25 Oe pour une taille de 7.4 nm. Nous avons remarqué aussi que l'évolution de champ de saturation avec la taille moyenne des grains des séries déposées sur les substrats de Cu et CuZn possèdent deux comportements différents. Pour la série déposée sur les substrats de Cu, le champ de saturation augmente progressivement avec la taille des grains pour atteindre un champ maximum égal à 225 Oe pour une taille de 12.8 nm. Alors que pour les bicouches déposées sur les substrats de CuZn,

le champ de saturation diminue de façon monotone avec l'augmentation de la taille moyenne des grains jusqu'à 91 Oe pour D= 14.3 nm.

Table. V.10. *Taille des grains <D (nm)> et champ de saturation Hs(Oe) de la couche mince de Ni du système Ni/Cu/substrats.*

Système Ni/Cu/substrats									
Ni/Cu/verre		*Ni/Cu/Si (111)*		*Ni/Cu/mica*		*Ni/Cu/Cu*		*Ni/Cu/CuZn*	
D	*Hs*	*D*	*Hs*	*D*	*Hs*	*D*	*Hs*	*D*	*Hs*
5,6	32	5,6	85	5,8	95	5,3	120	7,2	130
6,6	115	6,2	75	7,4	25	5,9	150	8,2	105
8	110	6,6	25	10,3	220	12,8	225	14,3	91
14,1	320	13	220	*	*	*	*	*	*

III. 3. Discussion et comparaison

La variation des paramètres magnétiques (champ coercitif Hc, facteur squarness S et champ de saturation Hs) mesurées par effet Kerr avec l'épaisseur et la taille moyenne des grains présente une évolution différente avec et sans la sous-couche de Cu. Bien que cette caractérisation (basée sur l'effet Kerr) traite principalement le magnétisme de surface plus que du volume, la contribution de la sous-couche de Cu (qui est en sandwich entre le substrat et la couche de Ni) n'est pas négligeable; la sous-couche de Cu influe sur la morphologie de la surface de Ni (voir Chapitre III) et par conséquent influe sur le magnétisme de la surface.

L'évolution du champ coercitif dans cette étude présente le même comportement (augmentation de Hc avec t) sans et avec la sous-couche de Cu pour les films déposés sur les substrats de verre et Si (111) dans les deux systèmes. Cependant, la sous-couche de Cu influencer les valeurs de Hc ; à l'exception de l'échantillon t= 8 ± 1 nm qui présente une valeur constante de Hc (~ 02 Oe) dans les deux systèmes, les valeurs de Hc pour les séries déposées sur verre, Si (111) et Cu du premier système sont supérieures à celles du deuxième système. L'épaisseur de t= 67 nm de la série Ni/Cu/Si (111) présente la plus grande valeur de Hc (151 Oe) dans cette étude. Hc de la série de Ni/Cu/CuZn diminue progressivement avec t et D. Hc des films déposés sur verre et Si (111) du premier système augmente avec D.

Les valeurs du facteur squarness S des films déposés sur verre du premier système sont supérieures à celles du deuxième système (pour t inférieure à 67 nm). Ainsi que S augmente avec t et D pour les deux systèmes. Les séries déposées sur Cu présentent une

diminution avec t pour les deux systèmes. S (Ni/mica) diminue avec t et D, tandis que S (Ni/Cu/mica) varie de façon aléatoire avec t et D. La série Ni/Cu/verre présente la plus faible valeur (S = 0.1), alors que les séries déposées sur verre et Si (111) dans le premier système montrent la plus grande valeur du facteur squarness (S= 0.91). Pour la même épaisseur de Ni (t= 8 ± 1 nm) les valeurs du facteur squarness des films déposés sur verre et Si (111) du premier système sont supérieures à celles du deuxième système.

Le champ de saturation Hs des deux systèmes (sans et avec la sous-couche) présente la même évolution avec l'épaisseur t (Hs augmente avec t), avec les valeurs de Hs (Ni/Cu/verre) supérieures à celles de Hs (Ni/verre). Hs augmente de façon monotone D pour les séries déposées sur verre, Si (111) et mica du premier système et varie de façon aléatoire pour les mêmes substrats du deuxième système. Le champ de saturation de la série Ni/Cu et Ni/Cu/CuZn diminue progressivement avec l'augmentation de D. Pour la même épaisseur de Ni (t= 8 ± 1 nm) les valeurs de Hs des films déposés sur verre et Si (111) du premier système sont supérieures à celles du deuxième système. Les séries des bicouches déposées sur les substrats de Si (111) et mica (deuxième système) présentent la plus faible valeur du champ de saturation (Hs = 25 Oe). Alors que la série de Ni/Cu (premier système) montre la plus grande valeur du champ de saturation dans cette étude.

IV. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons étudié le comportement des paramètres magnétiques (Hc, S et Hs) en fonction de l'épaisseur du film, la taille moyenne de la couche de Ni, le substrat et la sous-couche de Cu. À l'aide d'un magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) et le magnétomètre à effet Kerr, nous avons mesuré les paramètres magnétiques pour les deux systèmes. La forme des courbes d'hystérésis mesurées par les deux caractérisations magnétiques (VSM et Kerr) ne change pas avec le type du substrat pour la même épaisseur, mais change avec l'augmentation de l'épaisseur pour les différents substrats. Aussi, l'étude globale du magnétisme des deux systèmes a permis de mettre en évidence que les couches minces de Ni perdent leurs douceurs à mesure que l'épaisseur du film de Ni augmente (quelque soit le type du substrat).

Pour le système Ni/substrats, les mesures par VSM montrent que la coercivité augmente avec l'épaisseur. Les valeurs du champ coercitif varient de 1.5 Oe à 153 Oe, avec la série déposée sur le Si (111) présentant les plus grandes valeurs du champ coercitif. Les valeurs du facteur squarness S de ce système varient entre 0.23 et 0.90. Alors que le champ de saturation Hs varie entre 0.22 KOe et 2.4 KOe ; la série déposée sur Si (111) possède les plus grandes valeurs de Hs de saturation et la série déposée sur Cu présente les faibles valeurs du champ de saturation. Pour le système des bicouches (Ni/Cu/substrats), les courbes d'aimantation mesurées par VSM présentent un champ coercitif variant de 3 à 230 Oe dans une gamme d'épaisseurs de 4 à 67 nm ; augmente de façon monotone avec l'augmentation de l'épaisseur et la taille moyenne des grains pour les films déposés sur les substrats de verre et Si (111). Les valeurs de S dans ce système sont entre 0.08 et 0.67 ; S augmente progressivement avec l'épaisseur pour les bicouches déposées sur les substrats de mica, Cu et CuZn. Les valeurs du champ de saturation varient entre 0.52 KOe et 3.2 KOe. Hs diminue avec l'augmentation de l'épaisseur pour les séries déposées sur les substrats de Si (111), Cu et CuZn, et augmente avec l'épaisseur pour les bicouches déposées sur les substrats de verre et mica.

Pour l'effet Kerr, dans le premier système, nous avons trouvé que le champ coercitif Hc augmente avec l'épaisseur et avec la taille moyenne des grains D. Globalement, Hc varie entre 02 Oe et 65 Oe. Les valeurs de S pour cette caractérisation (effet Kerr) varient entre 0.45 et 0.91. Elles augmentent avec la taille moyenne des grains pour les couches minces déposées sur les substrats de Cu et diminue pour films déposés sur les substrats de mica. D'autre part, le champ de saturation varie entre 50 et 185 Oe. Pour toutes les séries, Hs

augmente avec l'épaisseur de la couche Ni. Le même comportement de Hs a été observé avec l'augmentation de la taille moyenne des grains, sauf pour la série déposée sur les substrats de Cu. Pour le deuxième système, le champ coercitif varie de ~ 02 Oe jusqu'à 151 Oe dans une gamme d'épaisseurs qui varie entre 08 et 67 nm. Le facteur squarness varie de 0.1 jusqu'à 0.85 et le champ de saturation varie de 25 jusqu'à 320 Oe. Hs diminue de façon monotone avec l'épaisseur pour les bicouches déposées sur les substrats de CuZn et augmente pour le reste des séries.

Références bibliographiques

[1] P. Bruno, *Thèse de l'Université de Paris-Sud*, centre d'Orsay, 1989.

[2] P. Kumar, M. G. Krishna, A. K. Bhattacharya. Bull. Mater. Sci., Vol. 32, No. 3, (2009) 263–270.

[3] M. S. Miller, F. E. Stageberg, Y. M. Chow, K. Rook, and L. A. Heuer. J. Appl. Phys. 75 (10), (1994) 5779-5781.

[4] C. Nacereddine, A. Layadi, A. Guittoum, S.-M. Cherif, T. Chauveau, D. Billet, J. Ben Youssef, A. Bourzami, M.-H. Bourahli. Mater. Sci. Eng. B 136 (2007) 197–202.

[5] G. Zou, H. Qiu, Y. Zuo, H. Zong, J. He. Thin Solid Films 520 (2012) 6024–6030.

[6] J.-D. Lee, H.-S. Kim, S.-Y. Jeong, K.-H. Kim, J.-J. Lee, J.-E. Kim. Current Appl. Phys. 10 (2010) 249–254.

[7] Y. Tang, D. Zhao, D. Shen, J. Zhang, B. Li, Y. Lu, X. Fan. Thin Solid Films 516 (2008) 2094–2098.

[8] j.-B. Shi, Y. C. Chen, c. W. Lee, Y. T. Lin, C. Wu, C. J. Chen. Meter. Lett. 62 (2008) 15-18.

[9] J. B. Yi, Y. Z. Zhou, J. Ding, G. M. Chow, Z. L. Dong, T. White, XingYu Gao, A. T.S. Wee, X.J. Yud. J. Magn. Magn. Mater. 284 (2004) 303–311.

[10] S. Amoruso, G. Ausanio, C. de Lisio, V. Iannotti, M. Vitiello, X. Wang, L. Lanotte. Appl. Surf. Sci. 247 (2005) 71–75.

[11] I. L. Prejbeanu, *Thèse de l'Université Louis Pasteur*, Strasbourg, 2001.

[12] M. N. Baibich, J. M. Broto, A. Fert, F. Nguyen Van Dau, F. Petroff, P. Etienne, G. Creuzet, A. Friederich et J. Chazelas, Phys. Rev. Lett. 61 (1988) 2472.

[13] R. Allenspach, J. Mag. Mag. Mat. 129 (1994) 160.

[14] M. Hehn, *Thèse de l'Université Louis Pasteur*, Strasbourg, 1997.

[15] L. Néel, J. Phys. Rad. 17 (1956) 250.

[16] H. Hoffmann, J. Appl. Phys. 35 (1964) 1790.

[17] H. Hoffmann, Phys. Status Solidi 33 (1969) 175.

[18] H. Hoffmann, IEEE Trans. Magn. 9 (1973) 17.

[19] H. Hoffmann and T. Fujii, J. Magn. Magn. Mater. 128 (1993) 395.

[20] B. Ghabouli, A. Layadi, L. Kerkache, Eur. Phys. J. Ap 3 (1998) 35-39.

[21] S. Z. wu, G. J. Mankey, F. Huang, R. F. Willis. J. Appl. Phys. 76 (10) (1994) 6434-6436.

[22] J. Pflaum, E. Hübner, Th. Zeidler, T. Schmitte, J. Pelzl. Thin Solid Films 318 (1998) 186–188.

[23] E. E. Shalyguina, M.A. Mukasheva, N.M. Abrosimova, L. Kozlovskii, E. Tamanis, A.N. Shalygin. J. Magn. Magn. Mater. 300 (2006) e367 – e370.

[24] H. M. Hwang, J. C. Park, D. G. You, H. S. Park, K. Jeong, J. Lee, T. G. Kim. J. H. Song. J. Appl. Phys., Vol. 93, No. 10, (2003) 7625 - 7627.

[25] W. L. O'Brien, T. Droubay, and B. P. Tonner, Phys. Rev. B54 (1996) 9297.

[26] B. Schirmer and M. Wuttig. Phys. Rev. B 60 (1999) 12945.

[27] G. Gubbiotti, G. Carlotti, F. D'Orazio, F. Lucari, R. Bernardini, M. De Crescenzi. J. Magn. Magn. Mater. 177-181 (1998) 1259-1261.

Conclusion générale

Conclusion générale

Ce travail a consisté en l'élaboration par évaporation sous vide et la caractérisation structurale, électrique et magnétique des couches minces de Ni et des bicouches Ni/Cu, sur des substrats de verre, Si (111), Cu, mica, Al_2O_3 et CuZn. L'objectif de ce travail est d'étudier l'influence de l'épaisseur (t), du substrat et de la sous couche de Cu sur le comportement de Ni, en particulier l'influence des caractéristiques structurales (rugosité, épaisseur et taille des grains) sur les propriétés électriques et magnétiques. En effet, nous avons essayé de faire une corrélation entre les propriétés structurales, électriques et magnétiques des films de nickel.

Nous avons divisé ce travail en deux parties. La première partie est purement théorique, elle constitue un rappel sur le magnétisme d'une façon générale. Dans l'objectif d'étudier l'effet de la taille des grains et de l'épaisseur de la couche mince sur les caractéristiques ferromagnétiques, H. Hoffmann et Néel proposent des modèles théoriques traitant de l'effet de la taille moyenne des grains et de l'épaisseur sur l'évolution de la coercivité des couches minces. Nous avons introduit aussi dans cette première partie un résumé des différentes méthodes de dépôt des couches minces en phase vapeur (PVD et CVD) et d'autres procédés (sol-gel et électrochimiques). D'autre part, nous avons également exposé les techniques relatives au vide et les détails des dispositifs expérimentaux utilisés à cet effet. Suite à cela, nous avons décrit les méthodes de caractérisation utilisées pour étudier les différentes propriétés de nos échantillons, à savoir les propriétés structurales, électriques et magnétiques. Une description complète des méthodes de caractérisation utilisées, telles que RBS (Spectroscopie de Rétrodiffusion de Rutherford), DRX (Diffraction des Rayons X), MEB (Microscope Electronique à Balayage), les quatre pointes, VSM (Magnétomètre à Echantillon Vibrant) et effet Kerr (Magnéto-Optical Effet Kerr) est donnée. En plus, un processus de nettoyage des substrats est décrit.

La seconde partie est consacrée à l'étude des résultats expérimentaux des propriétés structurales, électriques et magnétiques, ainsi que l'interprétation de ces résultats. Nous avons élaboré deux systèmes des couches de Ni (Ni/substrats et Ni/Cu/substrats). Chaque système comporte cinq séries avec différents substrats. Nous avons élaboré quatre échantillons de chaque série (système Ni/substrats) avec des épaisseurs de 9, 42, 50 et 163 nm. Pour le système Ni/Cu/substrats, nous avons six échantillons dans chaque série avec des épaisseurs de la couche de Ni égales 4, 6, 8, 14, 24 et 67 nm. L'épaisseur de la sous-couche de Cu est égale à 52 nm pour quatre échantillons, 27 et 90 nm pour deux échantillons.

L'étude des spectres par RBS montre le bon état de la surface et d'interface des échantillons élaborés. Par ailleurs, aucune interdiffusion n'a été remarquée. La DRX montre la direction <111> comme une orientation préférentielle pour les deux systèmes. Le système Ni/substrats possède plus de contrainte que le système Ni/Cu/substrats. Les valeurs de la déformation varient de 0.02 % à 2,26 % et de 0.05 % à 2.20 % (en valeur absolue) pour le système Ni/substrats et Ni/Cu/substrats, respectivement. Le système de Ni/Cu/substrats présente des tailles de grains D plus grandes que celles du système Ni/Substrat. Cependant, la série déposée sur les substrats de Cu possède pratiquement la même taille des grains pour les deux systèmes. On a observé une augmentation de la taille moyenne des grains avec l'épaisseur pour les séries Ni/verre, Ni/Si, Ni/mica, Ni/Cu/verre et Ni/Cu/CuZn, et une diminution pour les séries déposées sur des substrats de Cu pour les deux systèmes. L'étude microstructurale par le MEB, nous a permis de déclarer que la sous-couche de Cu engendre des modifications sur la morphologie des échantillons de sorte que les surfaces deviennent plus uniformes avec une faible rugosité.

L'étude des propriétés électriques des systèmes Ni/substrats et Ni/Cu/Substrats montre que les résistances carrées ($R_{\square}$) de nos couches minces sont toutes finies, ainsi la continuité de nos couches est assurée. Pour le système Ni/substrats, $R_{\square}$ diminue avec l'augmentation de l'épaisseur et de la taille moyenne des grains pour les deux séries Ni/verre (de 106.1 à 1.03 Ω) et Ni/Si (de 80 à 1.1 Ω). Par contre, pour le reste des séries, $R_{\square}$ varie aléatoirement avec t et D. Pour l'évolution de la résistivité électrique ρ avec l'augmentation de l'épaisseur, on trouve que ρ diminue de 95.5 à 16.8 μΩ.cm et de 72 à 17.9 μΩ.cm pour Ni/verre et de Ni/Si(111), respectivement, quand t augmente de 9 à 163 nm. Alors que pour les séries de Ni/mica et Ni/Al_2O_3, ρ varie de façon aléatoire avec l'augmentation de l'épaisseur. La variation de la résistivité en fonction de la taille moyenne des grains a différents comportements suivant le substrat. Pour les séries Ni/verre, Ni/Si (111) et Ni/Al_2O_3, la résistivité a le même comportement pour les trois séries, une diminution progressive avec D a été observée. La série de Ni/mica présente une variation aléatoire de ρ avec D. Les modèles de Fuchs-Sondheimer et de Mayadas-Shatzkes que nous avons utilisés dans cette étude prouvent que l'effet de la diffusion aux joints de grains a une grande contribution dans la résistivité. On note par contre une contribution négligeable de l'effet de diffusion par la surface dans cette gamme d'épaisseurs. De plus on a pu évaluer le coefficient de réflexion aux joints de grains R

pour nos couches. Notons que la résistance et la résistivité de la série de Ni/Cu (système Ni/substrats) et du système Ni/Cu/substrats sont très faibles à cause de l'effet de Cu.

Finalement, à l'aide d'un VSM et du magnétomètre à effet Kerr, nous avons étudié l'évolution des paramètres magnétiques (Hc, S et Hs) avec l'épaisseur, la taille moyenne des grains de la couche de Ni et la présence de la sous-couche de Cu. Les mesures par VSM du système de Ni/substrats montrent que la coercivité Hc augmente avec l'épaisseur. Les valeurs du champ coercitif varient entre 1.5 Oe et 153 Oe ; la série déposée sur le Si présente les plus grandes valeurs. Les valeurs du facteur squarness S de ce système varient entre 0.23 et 0.90. Le champ de saturation Hs varie entre 0.22 KOe et 2.4 KOe, la série déposée sur Si possède les plus grandes valeurs du champ de saturation et la série déposée sur Cu présente les faibles valeurs du champ de saturation.

Pour le système des bicouches (Ni/Cu/substrats), les courbes d'aimantation mesurées par VSM présentent un champ coercitif allant de 3 à 230 Oe dans une gamme d'épaisseurs allant de 4 à 67 nm. Il augmente de façon monotone avec l'épaisseur et la taille moyenne des grains pour les films déposés sur verre et Si (111). Les valeurs de S de ce système sont comprises entre 0.08 et 0.67 ; S augmente progressivement avec l'épaisseur pour les bicouches déposées sur mica, Cu et CuZn. Les valeurs du champ de saturation varient entre 0.52 KOe et 3.2 KOe ; Hs diminue avec l'augmentation de l'épaisseur pour les séries déposées sur Si (111), Cu et CuZn et augmente avec l'épaisseur pour les bicouches déposées sur verre et mica.

Pour l'effet Kerr, nous avons trouvé que le champ coercitif augmente avec l'épaisseur et avec la taille moyenne des grains. Globalement, le champ varie entre 2 Oe et 65 Oe. Les valeurs de S pour cette caractérisation (Kerr) varient entre 0.45 et 0.91. Le facteur S augmente avec la taille moyenne des grains pour les couches minces déposées sur le substrat Cu et diminue pour les films déposés sur le mica. D'autre part, le champ de saturation varie entre 41 et 185 Oe. Pour toutes les séries, Hs augmente avec l'épaisseur de la couche Ni. Le même comportement de Hs a été observé avec l'augmentation de la taille moyenne des grains, sauf pour la série déposée sur le Cu.

Pour le système Ni/Cu/substrats, les cycles d'hystérésis mesurés à partir de l'effet Kerr montrent un champ coercitif varie de ~ 2 Oe à 151 Oe dans une gamme d'épaisseurs qui varie entre 08 et 67 nm. Le facteur S varie de 0.1 jusqu'à 0.85. Le champ de saturation varie de 25 jusqu'à 320 Oe ; Il diminue de façon monotone avec l'épaisseur pour les bicouches déposées sur CuZn et augmente pour le reste des séries.

Ce travail ouvre la voie à d'autres investigations dans ces systèmes. Nous pensons que l'étude de la rugosité par AFM (Atomic Force Microscopy) et des propriétés magnétiques par MFM (Magnetic Force Microscopy) des couches minces de Ni permettra de bien comprendre les phénomènes physiques observés dans ces systèmes ; ceci fera l'objet d'un travail futur.

Thin Solid Films 562 (2014) 229–238

Contents lists available at ScienceDirect

Thin Solid Films

journal homepage: www.elsevier.com/locate/tsf

Structure, surface morphology and electrical properties of evaporated Ni thin films: Effect of substrates, thickness and Cu underlayer

M. Hemmous [a,b], A. Layadi [a,*], A. Guittoum [b], N. Souami [b], M. Mebarki [c,e], N. Menni [d]

[a] L.E.S.I.M.S., Département de Physique, Université Ferhat Abbas, Sétif 1, Sétif 19000, Algeria
[b] Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA), Alger 16000, Algeria
[c] Faculté des Sciences Exactes, Université A. Mira, Béjaia 06000, Algeria
[d] Faculté des Sciences de l'Ingénieur, Université Ferhat Abbas, Sétif 1, Sétif 19000, Algeria
[e] CRTSE, Alger 16038, Algeria

ARTICLE INFO

Article history:
Received 16 July 2013
Received in revised form 16 March 2014
Accepted 16 April 2014
Available online 2 May 2014

Keywords:
Nickel
Thin films
Evaporation
Copper
Rutherford Backscattering Spectroscopy
X-ray diffraction
Scanning Electron Microscope

ABSTRACT

Series of Ni thin films have been deposited by thermal evaporation onto glass, Si(111), Cu, mica and Al_2O_3 substrates with and without a Cu underlayer. The Ni thicknesses, *t*, are in the 4 to 163 nm range. The Cu underlayer has also been evaporated with a Cu thickness equal to 27, 52 and 90 nm. The effects of substrate, the Ni thickness and the Cu underlayer on the structural and electrical properties of Ni are investigated. Rutherford Backscattering Spectroscopy was used to probe the Ni/Substrate and Ni–Cu underlayer interfaces and to measure both Ni and Cu thicknesses. The texture, the strain and the grain size values were derived from X-ray diffraction experiments. The surface morphology is studied by means of a Scanning Electron Microscope. The electrical resistivity is measured by the four point probe. The Ni films grow with the <111> texture on all substrates. The Ni grain sizes *D* increase with increasing thickness for the glass, Si and mica substrates and decrease for the Cu one. The strain ε is positive for low thickness, decreases in magnitude and becomes negative as *t* increases. With the Cu underlayer, the growth mode goes through two phases: first, the stress (grain size) increases (decreases) up to a critical thickness t_{Cr}, then stress is relieved and grain size increases. All these results will be discussed and correlated.

© 2014 Elsevier B.V. All rights reserved.

1. Introduction

The Ni thin films have been the subject of a lot of studies. Lately the interest is focused for films with thickness in the nanometer range. It is found that the physical properties of Ni strongly depend on the method and conditions of deposition, on the thickness, the substrate and the underlayer. Among recent work on Ni, one may cite the paper by Zou et al. [1] where the authors did a comparative study of the physical properties of Ni on SiO_2/Si(100) and Ni on anodic aluminum oxide; the former being a continuous film while the latter has a network structure. Yu et al. [2] made a comparison between the Ni characteristics deposited on SiO_2/Si(100) by oblique angle sputtering and conventional sputtering. The structure and magnetic properties were also investigated for DC magnetron sputtered Ni films onto glass substrate [3], the authors showed that the 15 nm thick film presents a large amount of amorphous structure which they believe is responsible for the decrease of the magnetoresistance in this thin sample. Some interesting phenomena have been reported in Ni thin films. The Anomalous Hall Effect (AHE) has attracted a lot of attention lately. The AHE phenomenon has been studied in magnetron sputtered polycrystalline Ni thin film on oxidized Si substrate as a function of Ni thickness (4 to 200 nm) [4] and also in a 10 nm thick RF sputtered Ni film [5] where the authors correlate the behavior of the Hall resistance and the extraordinary Hall coefficient with the film thickness and morphology. The other interesting feature observed in Ni films is the transition of the magnetization easy axis from in-plane to out-of-plane as a function Ni thickness [6]; this was observed in Ni/Cu and was attributed to a stress induced anisotropy. Ni films were studied not only as a single film but also as part of a structure. For instance the physical properties of Ni/Cu/p-Si Schottky diodes prepared by liquid phase epitaxy have been investigated [7]. A lot of work on Ni based multilayers have been reported, e.g. the stress in electrodeposited Ni/Cu multilayer film on stainless steel substrate has been investigated, it was found that Ni/Cu multilayers are characterized by high hardness and strength and could be used in many applications such as in magnetic devices and micro-actuators [8].

In the present work, we have studied the structural and electrical properties of two Ni based systems: the evaporated Ni thin films deposited on four different substrates (glass, Si, mica, Cu and Al_2O_3) and with thickness in a nanometer range (9 to 163 nm) and the Ni/Cu/Substrates where the Cu thicknesses are set to 27, 52 and 90 nm and the Ni thickness ranges from 4 to 67 nm. The objectives of the present study are: (i) to investigate the effect of different substrates on the physical properties of the evaporated Ni thin films in this thickness range (9 to

* Corresponding author.
E-mail address: A_Layadi@yahoo.fr (A. Layadi).

http://dx.doi.org/10.1016/j.tsf.2014.04.066
0040-6090/© 2014 Elsevier B.V. All rights reserved.

163 nm) and (ii) to find out how these properties are modified when Ni is grown with Cu underlayer. We believe also that the present study might be useful to understand in part the behavior of Ni in a multilayer system. Note also that the structural properties can affect the magnetic properties of these Ni films; the stress may, for instance, induce a magnetic anisotropy through the inverse magnetostriction effect. The magnetic properties of these systems will be published later on. The experimental methods and the deposition conditions are shown in Section 2. In Section 3, we show and discuss the results pertaining to the study of the state of the interfaces, the structure, the surface morphology and the electrical resistivity. A conclusion is given in Section 4.

2. Experimental methods

The Ni thin films have been deposited by thermal evaporation onto five substrates: glass (soda-lime-glass), Si(111), Cu, mica and Al_2O_3 (Corundum) from a 99.99% purified Ni powder. The Ni thickness ranges from 9 to 163 nm. The five substrates have been chosen because of the different physical properties they present. From the structural point of view, these are amorphous (glass), polycrystalline (mica, Cu and Al_2O_3) and single crystal (Si) materials. For the electrical properties, we do have insulator, conductor and semiconductor. We believe that the different properties of these substrates may induce different behaviors of the deposited Ni thin films. The aim of this work is indeed to find out and ultimately to explain the induced properties of these Ni thin films in this nanometric thickness range. The deposition rate for Ni for this first system is between 0.2 and 0.9 Å/s. For the second system, using the same substrates as above (glass, Si(111), Cu and mica), we first evaporated a Cu underlayer and then without breaking the vacuum, we deposited the Ni thin film with different thicknesses. Pressure was about 3.8×10^{-7} mbar before evaporation; during deposition, it rises to 10^{-6} mbar. The substrates were not heated during the evaporation. In order to avoid oxidation or any other contaminations, the samples were kept under vacuum until all the characterization experiments were done. Rutherford Backscattering Spectroscopy (RBS) was used to probe the Ni/substrate and Ni–Cu underlayer interfaces and to measure both Ni and Cu thicknesses. The RBS experiments were done using 2 MeV He^+ ions delivered by a 3.75 MV Van de Graaf accelerator, the backscattering angle is equal to 20°. The structural properties (texture, lattice constant and grain sizes) were inferred from the X-ray diffraction (XRD) method working in the θ–2θ mode with a wavelength λ = 1.54 Å. The surface morphology is investigated by means of a Scanning Electron Microscope (SEM). The SEM operating voltage was fixed to 20 kV for four samples (Ni/glass with $t = 50$ and $t = 163$ nm and the 14 nm thick Ni/Cu/glass and Ni/Cu/Si) and to 10 kV for the other ones. The electrical resistivity is derived from the sheet resistance which was measured by the four point probe.

3. Results and discussions

3.1. The Ni/Substrate system

RBS experiment was carried out to measure the film thickness and to probe the substrate–film interface. Examples of RBS spectra are shown in Fig. 1a for Ni (50 nm)/Si. The simulated spectra (solid lines) are obtained using the well-known RUMP code. The contributions of different elements of the film and the substrates are indicated in the figure. We can see that the different peaks are well separated, indicating that there is no interdiffusion at the interface between Ni and the substrates. From the fit of the experimental spectra and the simulated curves, we have inferred the film thicknesses. For this first system, i.e., Ni on different substrates, the Ni thicknesses, t, are equal to 9 ± 1 nm, 42 ± 3 nm, 50 ± 3 nm and 163 ± 5 nm.

X-ray diffraction experiments were performed on all samples. Examples of X-ray diffraction spectrum are shown in Fig. 2, for a 163 nm thick Ni/glass (Fig. 2a), Ni/Si (Fig. 2b) samples. For all samples, we observed a

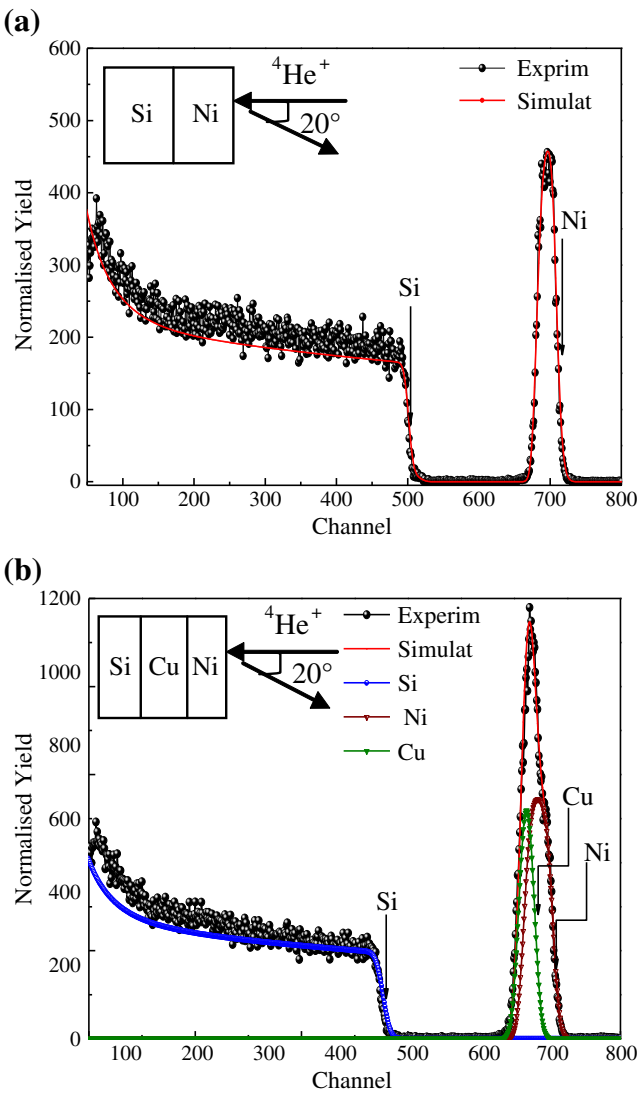


Fig. 1. RBS spectra for (a) Ni (50 nm)/Si and (b) Ni (67 nm)/Cu (52 nm)/Si. The points are experimental data; the solid line is the simulated spectra.

peak at 2θ = 44.61°, which has been identified as the (111) peak of the face centered cubic (fcc) Ni. As the thickness of the Ni film increases, the intensity of the (111) peak increases and other peaks of lower intensities are also seen, such as the (200) at 2θ = 51.81°, the (220) at 2θ = 76.53°, the (311) at 2θ = 93.45° and the (222) at 2θ =98.35°. The peak corresponding to the substrate, i.e. Si(311) peak, is also indicated in the figure. We have computed the intensity ratios of the peaks and compared these ratios to those of Ni powder. We infer from these spectra that the Ni thin films grow with the <111> texture for all substrates. Note however that for the Ni/Si, the intensity ratios are somewhat close to the Ni powder ones indicating a very weak <111> texture or no texture at all. While for the other substrates, there is a clear <111> texture. The <111> texture seems to be the most encountered one for Ni as reported in the literature. Indeed, it is found in DC magnetron sputtered Ni on SiO_2/Si(100) and Al_2O_3 substrates with t in the 80 to 260 nm range [1] and in Ni grown on Al_2O_3 by chemical vapor deposition [9,10]. The <111> texture was also observed in 5 nm thick DC magnetron sputtered Ni/Si films [11], in RF magnetron sputtered Ni films [5]; in evaporated Ni/Si, Ni/Cu and Ni/glass [12,13]. In fact, in most cases the <111> is observed in Ni elaborated by different methods and on several substrates [14–21]. However, other textures were also reported for Ni, such as the <100> texture in electron beam evaporated Ni/SiO_2/Si films [5]. The <220> and the <200> textures were observed in a 60 nm thick Ni [22,23].

From the lattice constants, derived from the X-ray diffraction spectra, we have computed the out-of-plane strain defined as $\varepsilon = \frac{a - a_{bulk}}{a_{bulk}}$, where a and a_{bulk} denote the measured and the bulk lattice parameter values. The bulk lattice parameter, a_{bulk}, for Ni is equal to 3.5240 Å. In Fig. 3a, we show the variation of the strain with the film thickness (t) for Ni deposited on glass, Si, mica, Cu and Al_2O_3. For the first three substrates the behavior of ε with t is similar. The strain is positive for the thinner samples, indicating that the films are subjected to a tensile stress; as the thickness increases, the strain decreases, i.e. the stress is relieved with thickness. When the thickness is increased further, the strain becomes negative (a compressive stress on the films); for the thicker sample (163 nm) the strain has practically the same value for all the three substrates, there is no effect of the substrates on the stress at this thickness. For the Ni on Cu and Al_2O_3, the behavior of the strain is different from the cases of the three other substrates. Here the strain is negative for all Ni thicknesses; the films are subjected to a compressive stress. For Cu, ε decreases from −1.8 to −2.3% as t is increased from 9 to 163 nm while for Al_2O_3, ε increases from −1.67 to −0.2%. Thus for Ni/Cu, the compressive stress increases with thickness, while for Al_2O_3 it is relieved as t increases. The Si substrate gives the lowest strain for Ni while the highest one is seen with Cu. It is clear from this study that both the substrate and the thickness affect the Ni strain value. Stress is an important parameter not only for the mechanical properties (where it can lead to the peeling of the films, to cracks …) but also for the magnetic properties where stress can induce a magnetic anisotropy through the inverse magnetostriction effect.

The grain sizes have been derived from X-ray diffraction following the well known Scherrer method. The grain size D for a grain with a particular orientation is given by:

$$D = \frac{k\lambda}{(\Delta\theta)\cos\theta} \quad (1)$$

where λ is the X-ray wavelength, k is the Scherrer constant equal to 0.9 in the present study, θ is the diffraction angle and Δθ is the width at half height of the peak corresponding to a particular orientation (here we used the (111) peak which is the most intense and corresponds to the texture of the films). The variation of the grain size D with thickness is shown in Fig. 4a for different substrates. We observe that D monotonously increases with t for glass, Si and mica substrates. The higher increase is noted in the Ni/glass. For the Cu, however the grain size D decreases slightly. For the Ni/Al_2O_3, there is no clear variation of D with t. D starts with 6.6 nm at t = 9 nm (the highest D value) decreases then increases to 14.2 nm at t = 163 nm. We note that for the thicker sample, the grain sizes for Ni on glass, Si and Al_2O_3 are equal, within the measurement uncertainties and have the highest value, while Ni grain sizes on Cu have the lowest one.

It is interesting to note, by comparing Figs. 3a and 4a, that the increase of the grain size is followed by a decrease of the stress (proportional to the absolute value of the strain ε) for all samples, i.e., larger grains led to the relief of the internal stress.

In Fig. 5, we show a set of SEM surface images to highlight the effect of substrates and thickness on the Ni surface morphology. Fig. 5a and b corresponds to Ni on glass with t = 50 nm and t = 163 nm respectively. The 50 nm thick sample presents a relatively porous surface. The gray regions correspond to the Ni matrix. The small circular grains in the dark regions are droplets which are expelled from the Ni target in a liquid state and have been observed in other materials [24]. As the Ni thickness increases, see Fig. 5b for t = 163 nm, one can see a very dense surface, with less porosities compared to the 50 nm thick sample. We can see also spherically shaped droplets.

In Fig. 5c and d, we show SEM images for Ni/Cu with t = 9 nm (Fig. 5c) and t = 50 nm (Fig. 5d). In the 9 nm thick sample, one can see large circular grains with sizes in the 45 to 100 nm range. Between these large grains, one sees smaller ones; these are subgrains, circularly shaped with size of about 15 nm. The subgrains will ultimately gather to form the larger ones as the thickness increases. For the 50 nm thick sample one can see also circular grains with different sizes. The surface seems to be less uniform and has a larger roughness compared to the thinner sample (Fig. 5c) and to the Ni deposited on other substrates, compare Fig. 5a (Ni (50 nm)/glass) and Fig. 5d (Ni (50 nm)/Cu). This fact may be due to the roughness of the Cu substrate surface. Also the large density of Ni islands on the Cu substrate might be due to the difference in the atom mobility between the film and Cu [25]; as reported in Ref. [26], a strong interaction leads to higher island density. Fig. 5e and f corresponds to Ni/Al_2O_3 series with thickness equal to 50 nm shown at two different scales. We note first that the surface is less uniform and the roughness is large compared to the 50 nm thick samples deposited on other substrates (similar to the effect of Cu substrate). In Fig. 5e, one can see circular grains along with some elongated ones. The large grains appearing on the images correspond to the grains of the substrates (Al_2O_3). The Ni grains are much smaller and can be better seen in the enlarged image (Fig. 5f). It seems that the appearance of these kinds of grains is due to the crystalline structure of the substrate (Al_2O_3) which has a rhomboid structure. Similar observations were made by Bolt et al. [27] for Ni films (in the 35 to 100 nm thickness range) evaporated onto α-Al_2O_3.

We have measured the sheet resistance for all series of samples. The sheet resistance or square resistance R_L is defined as

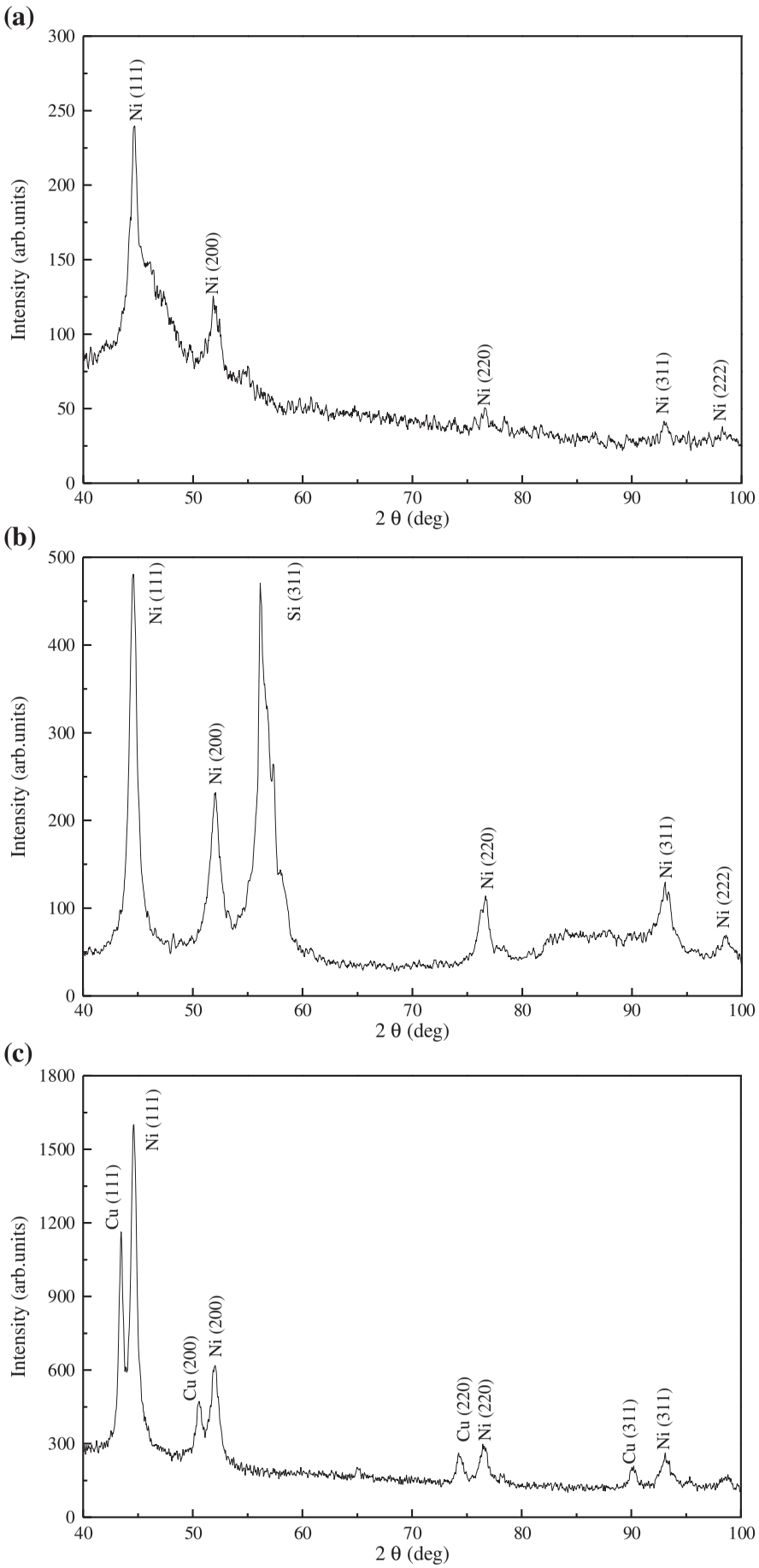
$$R_L = \frac{\rho}{t} \quad (2)$$

where ρ is the electrical resistivity and t the film thickness. The R_L values (expressed in ohm/square, Ω/) have been measured by the four point probe. In such an experiment, R_L is given by:

$$R_L = C_f \frac{V}{I} \quad (3)$$

where V is the tension between the points, I is the electrical current and C_f is the form factor depending on the geometry of the sample. When t is much less than the distance between the pointes, then C_f = 4.53, this is the value used here.

In Table 1., we show the variation of the sheet resistance R_L and the electrical resistivity ρ with the film thickness t for Ni deposited on glass, Si, mica, Al_2O_3 and Cu. We observe a sharp decrease of R_L when t is increased from 9 to 42 nm for Ni/glass and Ni/Si samples, beyond this thickness, R_L slightly decreases and levels off to the same value (R_L of about 1 Ω/□) at t = 163 nm for all the four substrates. The highest drop is seen in Ni/glass. As for the electrical resistivity ρ, for Ni/glass and Ni/Si, ρ sharply decreases when t increases from 9 to 42 nm then the decrease becomes smaller with Ni thickness; this behavior indicates that scattering of conduction electrons at the surface might be in part not only the origin of this decrease in ρ, but also the film morphology does contribute to this sharp decrease. The high sheet resistance and electrical resistivity values noted in the thinner films might be related to the porous surface of these samples as inferred from SEM images. In fact Šmilauer [28] observed a drop in the electrical resistivity value as a function of Ni thickness and attributed it to the transition from an islanded structure (for the thinner film) to a uniform continuous film. We believe that the high porosity seen in the thinner film corresponds to the islanded structure which gives high resistivity. As the thickness increases, the film is characterized by a very dense surface, with less porosities (as pointed out before in the SEM part) and thus becomes more uniform and continuous. This led to a sharp decrease in R_L and ρ (see Table 1). There is thus a clear correlation between the behavior of the electrical resistivity and the film morphology. For Ni on mica and Al_2O_3 substrates, ρ increases between 9 and 50 nm then decreases. It is interesting to note that for the 163 nm thick sample, the electrical resistivity converges to the same value (about 18 ± 2 μΩ·cm) for all substrates except for Ni/Cu.


(a)
Intensity (arb.units)
2 θ (deg)
Ni (111)
Ni (200)
Ni (220)
Ni (311)
Ni (222)
(b)
Intensity (arb.units)
2 θ (deg)
Ni (111)
Si (311)
Ni (200)
Ni (220)
Ni (311)
Ni (222)
(c)
Intensity (arb.units)
2 θ (deg)
Cu (111)
Ni (111)
Cu (200)
Ni (200)
Cu (220)
Ni (220)
Cu (311)
Ni (311)

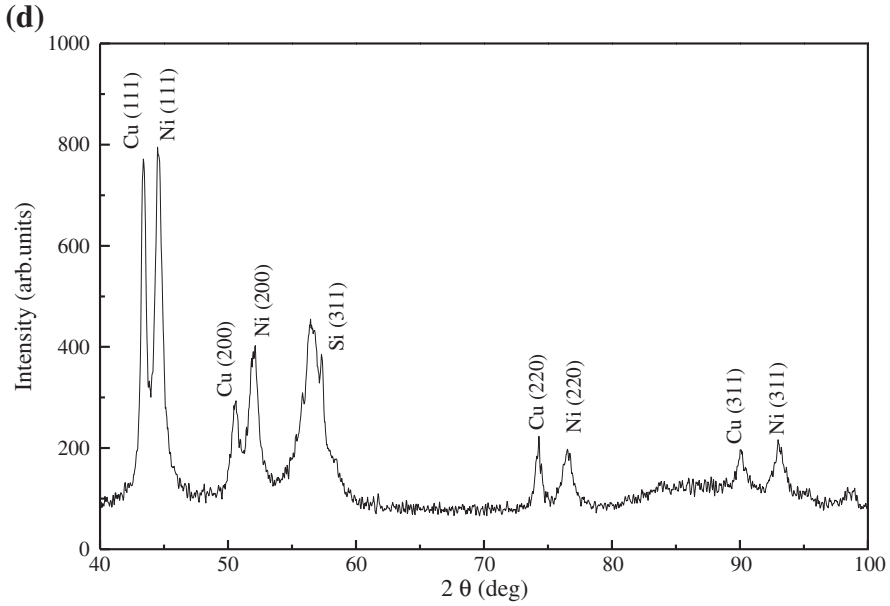


Fig. 2. X-ray diffraction spectra for (a) Ni/glass and (b) Ni/Si samples (first system) with Ni thickness equal to 163 nm. And for (c) Ni/Cu/glass and (d) Ni/Cu/Si (second system) with thicknesses equal to 67 nm and 52 nm for Ni and Cu respectively.Fig. 2. X-ray diffraction spectra for (a) Ni/glass and (b) Ni/Si samples (first system) with Ni thickness equal to 163 nm. And for (c) Ni/Cu/glass and (d) Ni/Cu/Si (second system) with thicknesses equal to 67 nm and 52 nm for Ni and Cu respectively.

We have also investigated the sheet resistance and the electrical resistivity as a function of the grain size D. We have found that ρ decreases with increasing D for Ni deposited on glass, Si and Al_2O_3; this may indicate that diffusion of conduction electrons at the grain boundaries might be, in part, responsible for the electrical resistivity. Thus, from the variation of ρ with t and D, one may infer that for Ni/glass and Ni/Si, both the diffusion of conduction electrons by the surface and by the grain boundaries may contribute to the electrical resistivity in the 9 to 42 nm thickness range, while for Ni/Al_2O_3, the diffusion of conduction electrons at the grain boundaries may play the most important role in the values of the electrical resistivities. As for Ni/mica, the above two phenomena may not be responsible for the electrical resistivity behaviors.

For the Ni/Cu, the sheet resistance and the electrical resistivity are very small. The measured values are about 0.3 Ω/□ and 10^{-3} μΩ·cm for R_L and ρ respectively, with negligible variation with the Ni thickness. These values correspond in fact to the Cu substrates and not the Ni film because of the very low Cu electrical resistivity.

For comparison with the electrical resistivity values measured by other researchers, one may cite some studies as examples. For the thinner Ni/Si film (9 nm), we found ρ = 72 μΩ·cm. For comparable thickness, Guo et al. [4] measured 100 μΩ·cm in magnetron sputtered Ni/Si, a value somewhat higher than in the present work. On the other hand, Volkov et al. [5] found 40 μΩ·cm in RF sputtered and 30 μΩ·cm in e-beam evaporated Ni/Si thin films. For Ni/glass, Angadi et al. [29] reported a value equal to 19 μΩ·cm for a 40 nm thick evaporated film, this value is to be compared to the one measured in our 42 nm Ni/glass film (24.8 μΩ·cm). Also for ion-beam sputtered Ni/glass thin films, Maaroof et al. [30] reported a sheet resistance value of 11.2 Ω for a 50 nm thick sample which corresponds to an electrical resistivity equal to 56 μΩ·cm, for similar thickness, we found 26.24 μΩ·cm. While for the 163 nm thick Ni/glass, we found 16.8 ± 2.3 μΩ·cm, Nacereddine et al. [13] measured 18.31 μΩ·cm in 165 nm thick Ni/glass. These different values of the electrical resistivity show that the ρ values depend on the preparation methods and on the conditions (such as the substrates, the deposition rates …).

3.2. The Ni/Cu/Substrate system

In the second part of the paper, the effect of Cu underlayer on the physical properties of Ni will be studied. Different substrates (glass, Si, mica, Cu) and Ni thicknesses are considered.

Here too, we have done RBS experiment to measure the film and underlayer thicknesses and to probe the different interfaces (substrate–film and film–underlayer). This technique is well indicated to measure the Ni thicknesses and look for interdiffusion, if any, between the different layers as was done, for examples in Ni/Ti/Si [31] and in Au/Ni/Cu [32]. An example of RBS spectra for this system is in Fig. 1b for Ni (67 nm)/Cu (52 nm)/Si. The contributions of different elements of the film, the underlayer and the substrates are indicated in the figure. We can see that the different peaks are well separated, indicating that there is no interdiffusion at the interfaces. From the fit of the experimental spectra and the simulated curves, we have inferred the film thicknesses. For this second system, we have grown four samples with the sample Cu thickness (52 ± 2 nm), and with different Ni thicknesses (04 ± 0.5, 08 ± 1, 14 ± 2 and 67 ± 3 nm); this group of samples will enable us to see the effect of Ni thickness with fixed t_{Cu}. Another sample has a t equal to 06 ± 1 nm (equivalent to the 08 ± 1 nm thick Ni) but with a different Cu thickness $t_{Cu} = 27 \pm 2$ nm; the comparison between the two samples may lead to the effect of the underlayer thickness. Finally, a sixth sample has the following characteristics, a large Cu thickness ($t_{Cu} = 90 \pm 4$ nm) and $t = 24 \pm 2$ nm.

We show in Fig. 2c and d, examples of X-ray diffraction patterns for the Ni/Cu/glass (Fig. 2c) and Ni/Cu/Si (Fig. 2d), with thicknesses equal to 67 nm and 52 nm for Ni and Cu respectively. We note in this figure, that the most intense peaks correspond to Ni(111) and to Cu(111). Other less intense peaks are observed and were assigned to Ni(200), Cu(200), Ni(220), Cu(220), Ni(311) and Cu(311). For all samples, we noted that the peak intensities increase with increasing thickness. Also by computing the peak intensity ratios, we found out that the preferred orientation is along the <111> direction for both the Ni and the Cu films. We may conclude then that the texture (<111>) is independent of the substrates and the Cu underlayer. The Ni <111> texture did not change with the Cu underlayer, this may be due to the fact that Cu has also the <111> texture. This finding is in agreement with the result reported by

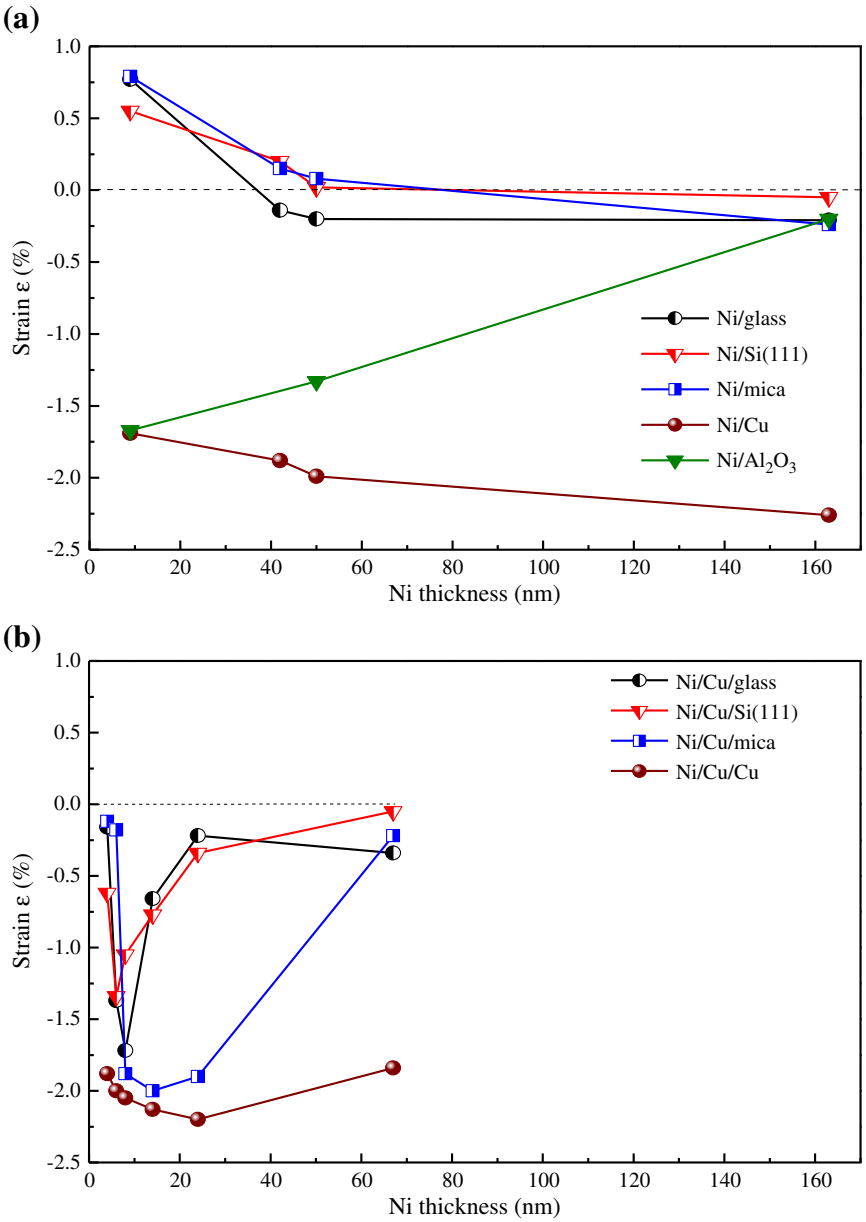


Fig. 3. Strain ε vs. film thickness for (a) Ni films on glass, Si, Mica, Cu and Al_2O_3 substrates (first system) and (b) Ni/Cu/Substrates (second system) with Cu thickness, t_{Cu} = 27, 52 and 90 nm and Substrates = glass, Si, mica and Cu.

several authors. The <111> texture seems to be the most encountered one as observed in Ni/Cu deposited on Si(111) [33], in Ni/Cu on Si(100) [34] and in Ni/Cu on steel (AISI SS 304) substrate [8,35]. Similarly, this texture was also observed with underlayer other than Cu, as in Ni/(100–200 nm) Au/glass and Ni/(100–200 nm) Au/mica, with *t* between 2 and 390 nm [36].

The lattice parameters and the strain have been calculated for all samples. The strain is plotted as a function of Ni thickness in Fig. 3b for this second system. First we note that all the strain values are negative, i.e. the films are subjected to a compressive stress. Second, we observe that for the glass, Si and mica substrates, the strain absolute value is small for the thinnest sample (4 nm), then increases for *t* between 6 and 14 nm and finally decreases as the thickness is increased further, i.e. stress is relieved as the thickness goes beyond these critical thicknesses (6 to 14 nm depending on the substrates). Third, for the Ni/Cu/Cu, stress remains high throughout the considered Ni thickness. In the literature, it is found for instance that strain is equal in the −1.60% to −1.86% range for Au/Cu/(4 nm) Ni/Cu/Si(001) [37], in the 0.72 to 1.12% range in epitaxially grown Cu/(6 nm) Ni/Cu/Si [38] and between 0.6 and 0.7% in Cu/Ni/Cu(001) [39]. These reported results along those presented in the present work show that the effect of the Cu underlayer on the sign and magnitude of the strain seems to depend on the preparation conditions. When comparing the two systems, one notes the following differences: for Ni deposited directly on glass, Si and mica, ε is positive and decreases with increasing thickness; for Ni on Al_2O_3, the strain ε is negative and also decreases (in magnitude) with increasing *t*, stress is relieved with Ni thickness; for the highest thickness, the strain is about the same for the four substrates (about −0.2% for glass, mica and Al_2O_3 and smaller for Si, −0.05%). With the Cu underlayer, strain becomes negative for all thicknesses and substrates, it increases in magnitude to a maximum value at critical thicknesses equal to 6 nm (for Si), 8 nm (glass) and 14 nm (mica), then its magnitude decreases to some close values for all the three substrates, stress is thus relieved beyond the critical thickness. For Ni/Cu/Cu, strain

is negative and higher in magnitude than the one corresponding to the other substrates and is not relieved with thickness, the behavior in this case is similar to the Ni/Cu system.

In Fig. 4b, we show the variation of the grain size mean values D (nm) as a function of Ni thickness t. We see that for the Ni/Cu/glass series, the grain size monotonously increases from $D = 3.4 \pm 0.4$ nm ($t = 4 \pm 0.5$ nm) to $D = 14.1 \pm 1$ nm ($t = 67 \pm 3$ nm). This behavior is different for Ni/Cu/on Si, mica and Cu where we noted, first a decrease of D with increasing film thickness up to $t = 14 \pm 1$ nm for Si and Cu substrates and to $t = 24 \pm 2$ nm for the mica. Beyond these critical thicknesses, the grain size monotonously increases. For the lowest thickness ($t = 4 \pm 0.5$ nm), Ni/Cu/mica has the highest grain size value ($D = 12.2 \pm 1$ nm) while the Ni/Cu/glass has the lowest one ($D = 3.4 \pm 0.4$ nm); at the critical thickness, D is practically the same for all substrates ($D = 5.5 \pm 0.7$ nm); for the highest thickness ($t = 67 \pm 3$ nm), the largest grain size value is observed in Ni/Cu/glass ($D = 14.1 \pm 1$ nm) compared to Ni/Cu/Si ($D = 13 \pm 1$ nm), to Ni/Cu/Cu ($D = 12.8 \pm 0.2$ nm) and to Ni/Cu/mica ($D = 10.3 \pm 1$ nm). This indicates a fast grain growth in Ni/Cu/glass compared to the other substrates.

Once again, as pointed out earlier for the first system, there is a clear correlation between the variations of the strain and the grain size (compare Figs. 3b and 4b). When the grain size decreases ($t < t_{Cr}$), the stress increases and when D increases ($t > t_{Cr}$), the stress decreases. Thus regardless of the thickness values and for both systems, the increase (decrease) of the grain size is followed by a decrease (increase) of the internal stress.

In Fig. 6, we show SEM images for the Ni/Cu/Substrate system. First, we notice that the Cu underlayer did modify the surface morphology of the Ni samples. The Ni surfaces in the Ni/Cu/Substrates are more uniform and have smaller roughness compared to the case of the Ni/Substrate system with the same substrates. We note also the grains have different sizes and are generally circularly shaped. We observed also clusters or islands which are uniformly distributed on the surface and separated by well defined grain boundaries [see Fig. 6c for Ni (67 nm)/Cu (52 nm)/Si].

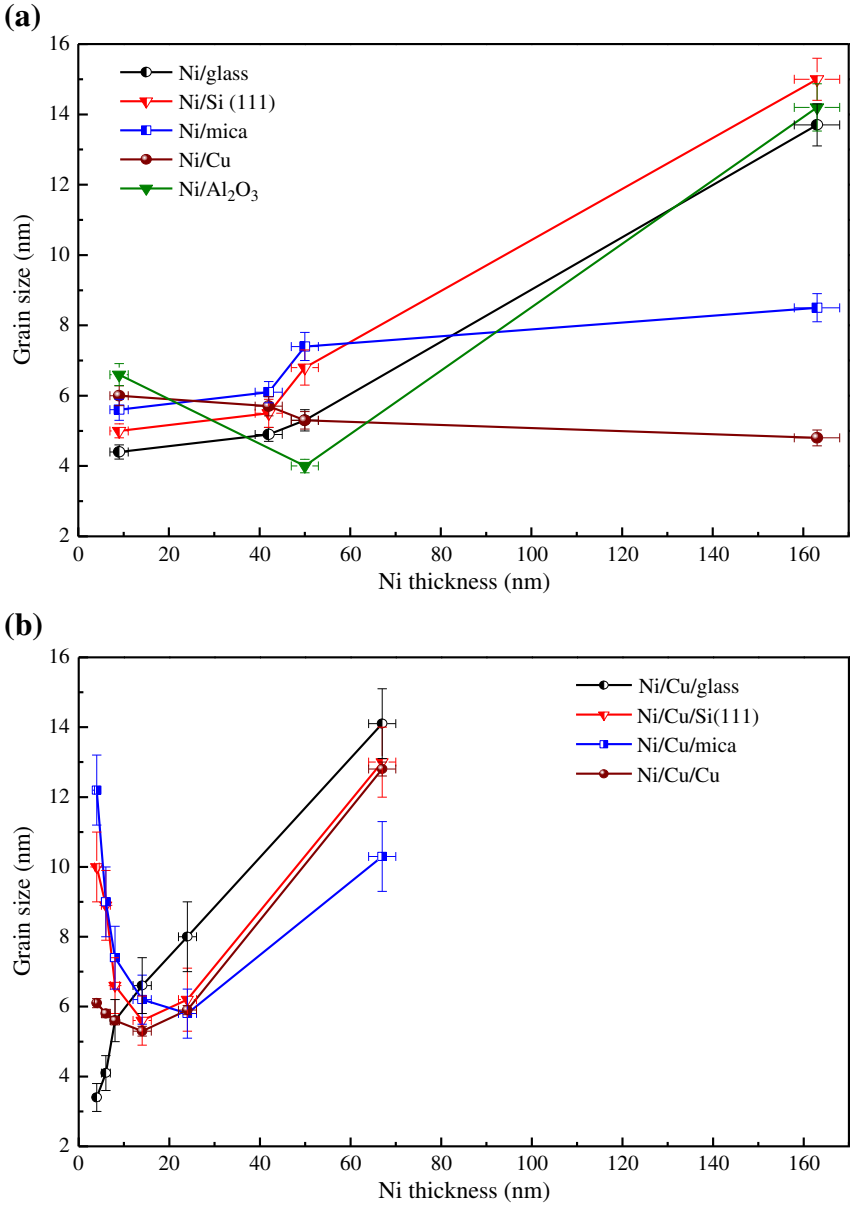


Fig. 4. Grain size D vs. film thickness for (a) Ni on glass, Si, mica, Cu and Al_2O_3 substrates (first system) and (b) Ni/Cu/Substrates (second system) with Cu thickness, $t_{Cu} = 27$, 52 and 90 nm and Substrates = glass, Si, mica and Cu.

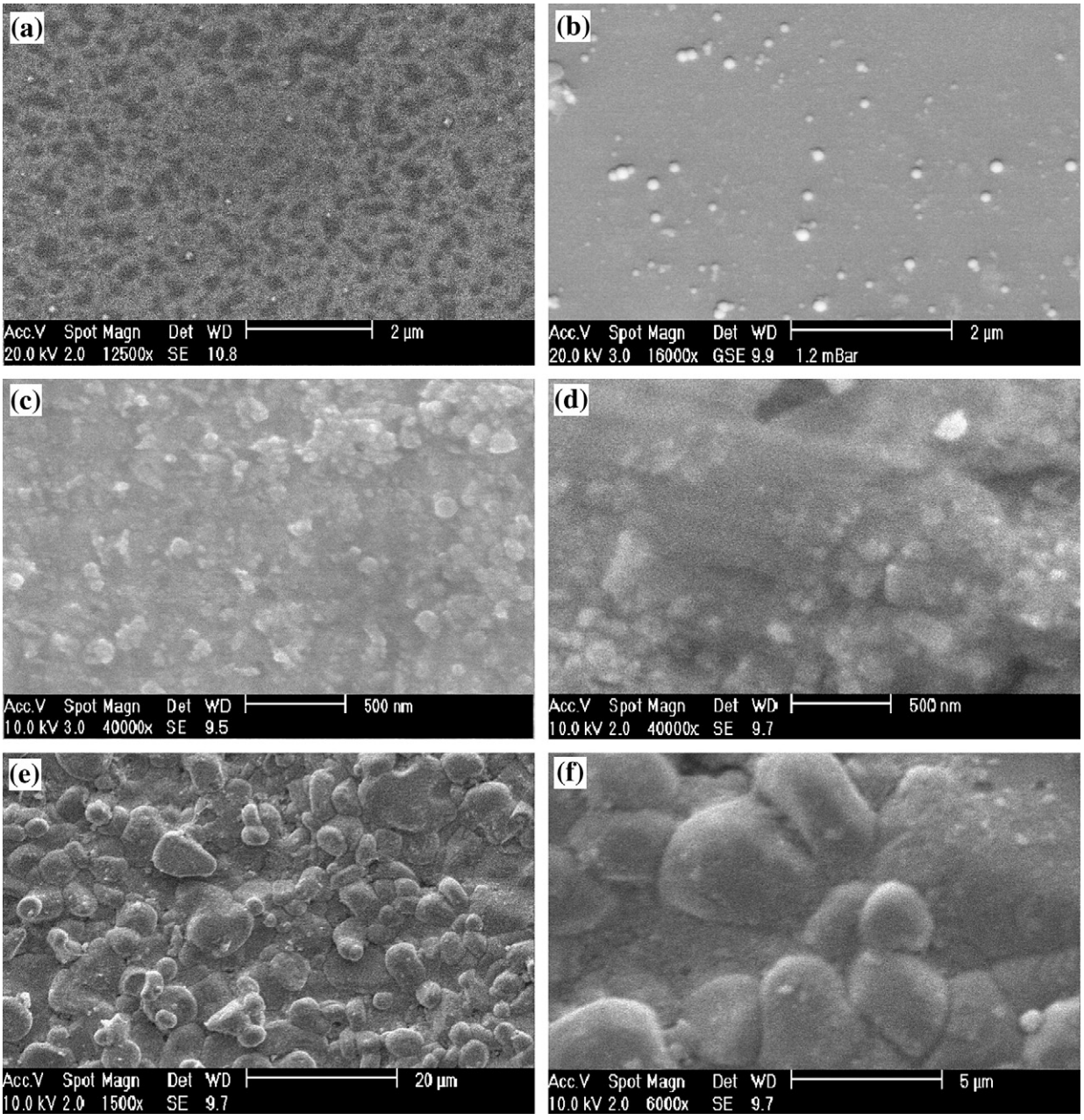


Fig. 5. SEM images for Ni/glass with (a) $t = 50$ nm and (b) $t = 163$ nm; for Ni/Cu (c) $t = 09$ nm and (d) $t = 50$ nm; and for Ni/Al_2O_3 (e) and (f) for $t = 50$ nm shown at two different scales.

For more discussion on the effect of substrates and Cu underlayer, we show in Table 2, some pertinent parameters of Ni for different substrates and with different Cu underlayer thicknesses. We summarize some results for three sets of samples with the same Ni thickness equal, within the measurement uncertainty, to 8 ± 1 nm and three Cu thicknesses: $t_{Cu} = 0$ (without Cu underlayer, i.e. the first system), $t_{Cu} = 27$ nm and $t_{Cu} = 52$ nm.

First, without the Cu underlayer ($t_{Cu} = 0$), we can see the similarities and the differences in the behavior of Ni thin films for the four substrates. For this thinner film, we note that glass, Si and mica substrates induce a relatively small tensile stress with close strain values (0.55 to 0.79%) and give identical grain sizes (about 5 nm). However, the sheet resistance and the electrical resistivity values are quite different for these samples grown in the same conditions; we note very large values

Table 1
The square resistance R_L and the electrical resistivity ρ for different film thicknesses t for Ni deposited on glass, Si, mica, Al_2O_3 and Cu.

t (nm)	Ni/glass		Ni/Si(111)		Ni/mica		Ni/Al_2O_3		Ni/Cu	
	R_L (Ω)	ρ (μΩ·cm)	R_L (Ω)	ρ (μΩ·cm)	R_L (Ω)	ρ (μΩ·cm)	R_L (Ω)	ρ (μΩ·cm)	R_L (Ω)	ρ (μΩ·cm)
9	106.1	95.5	80.01	72.1	3.75	3.37	25.93	23.34	0.32	0.0003
42	5.91	24.82	4.90	20.58	6.65	27.95	//	//	0.34	0.0014
50	5.25	26.24	5.12	25.60	//	//	10.15	50.75	0.23	0.0012
163	1.03	16.79	1.10	17.88	1.18	19.35	1.31	21.29	0.39	0.0064

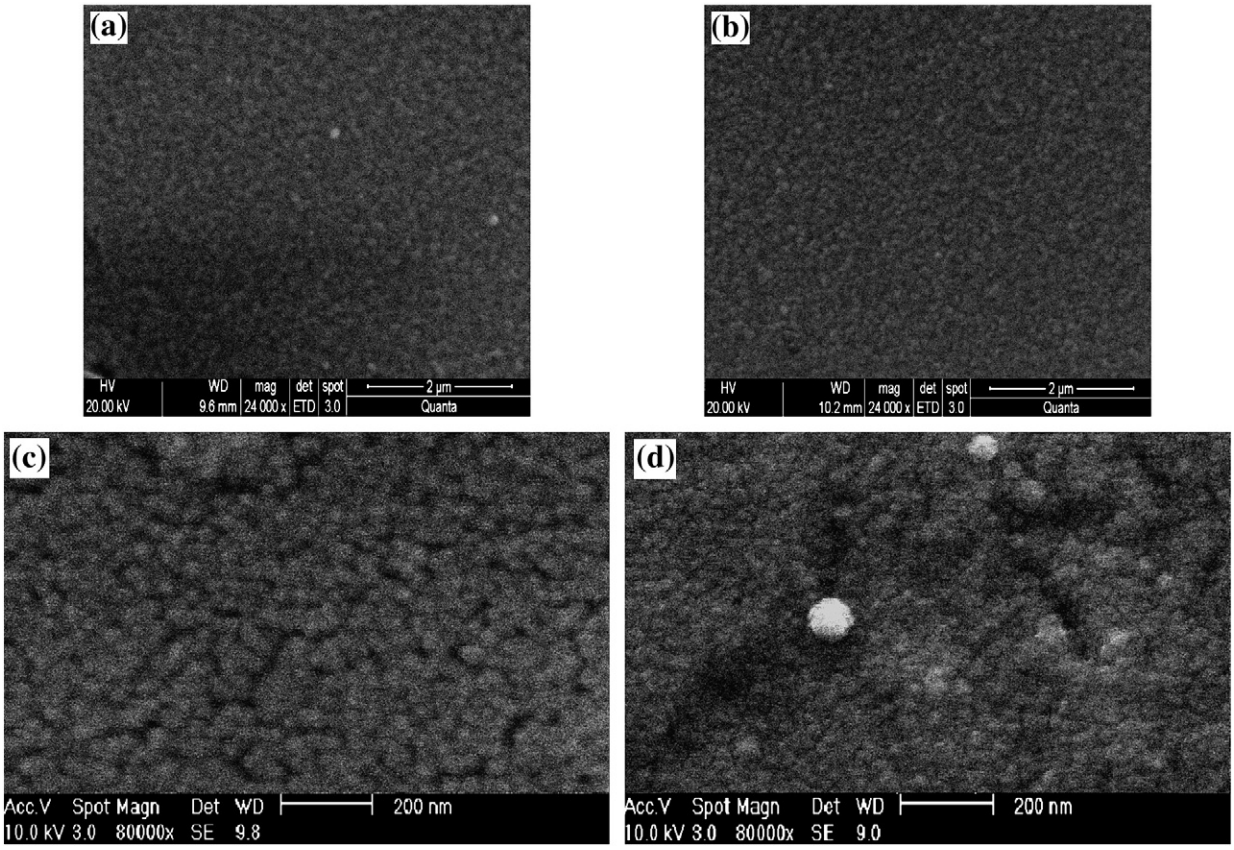


Fig. 6. SEM images for (a) Ni/Cu/glass and (b) Ni/Cu/Si with $t = 14$ nm; and for (c) Ni/Cu/Si and (d) Ni/Cu/Cu with $t = 67$ nm.

for Ni/glass (106.1 Ω/□ and 95.5 μΩ·cm for R_L and ρ respectively) and low ones for Ni/mica (3.75 Ω/□ and 3.4 μΩ·cm for R_L and ρ respectively). Grown on the Cu substrate, the Ni film is subjected to a relatively strong compressive stress ($\varepsilon = -1.69\%$), grain size value is about the same as for the three first substrates; the sheet resistance and the electrical resistivity are very low (with a numerical value less than 10^{-3}), an expected result for a substrate which is a conductor.

Second, with the Cu underlayer, the stress increases and becomes compressive, the grain size slightly increases. The electrical resistivity decreases but does not reach the Ni on Cu substrate value, i.e. the Cu underlayer has a higher resistivity than the bulk Cu. The higher the Cu underlayer thickness, the lower the values of R_L and ρ. For the Ni/Cu/Cu, the parameters did not change much compared to the Ni/Cu system, i.e. the Cu underlayer did not affect the properties of Ni on Cu substrate.

Finally, one can make a remark about the strain in these two systems. One of the origins of strain in thin films is the lattice mismatch when the film lattice constant is different but close to that of the substrate or the underlayer. In the present cases, the lattice parameters of Si ($a = 5.4309$ Å), Al_2O_3 ($a = 4.7587$ Å) and mica ($a = 5.308$ Å, $b = 9.183$ Å, $c = 10.139$ Å) are very far from that of Ni ($a = 3.5240$ Å) and thus cannot cause distortion of the Ni lattice. On the other hand, for Cu (either the substrate or the underlayer), the lattice parameter is $a = 3.9150$ Å, close to the Ni one. If Ni was epitaxially grown on Cu, one should expect a +2.5% tensile strain in the film plane and −3.2% out of plane compressive strain [40]. For our polycrystalline Ni films deposited on Cu substrate, we have measured out of plane strain values between −1.69% and −2.26%. With the Cu underlayer, the out of plane strain values ranged from −0.16% to −1.72% for Ni/Cu/glass, from −0.05% to −1.34% for Ni/Cu/Si, from −0.12% to −2.00% for Ni/Cu/mica and from −1.84% to −2.13% for Ni/Cu/Cu. The highest out of plane strain values for the Ni/Cu/substrates series are noted at the critical Ni thickness. Thus the measured strain is lower than the one induced by lattice mismatch. However, it is worth noting that, for the same thickness, we noted that the strain is higher on Cu (either the substrate or the underlayer) than for Ni deposited on the other substrates. Thus, the lattice mismatch might contribute somewhat to the strain value. This might be due to the epitaxial growth of the small islands at the beginning of the film growth [41]. Other factors might be responsible for the Ni strain which is also present in Ni on other substrates.

Table 2
Out-of-plane strain ε (%), grain size D (nm), the sheet resistance R_L (Ω/□) and the electrical resistivity ρ (μΩ·cm) for the (8 ± 2) nm Ni deposited on different substrates (glass, Si, mica and Cu); without a Cu underlayer ($t_{Cu} = 0$ nm) and with a Cu underlayer (where the Cu thickness t_{Cu} is 27 and 52 nm).

Substrates	$t_{Cu} = 0$ nm				$t_{Cu} = 27$ nm				$t_{Cu} = 52$ nm			
	ε (%)	D (nm)	R_L (Ω)	ρ (μΩ·cm)	ε (%)	D (nm)	R_L (Ω)	ρ (μΩ·cm)	ε (%)	D (nm)	R_L (Ω)	ρ (μΩ·cm)
Glass	0.77	4.4	106.1	95.5	−1.37	4.1	1.70	1.02	−1.72	5.6	0.73	0.58
Si	0.55	5	80.01	72	−1.34	8.9	1.94	1.16	−1.05	6.6	0.81	0.65
Mica	0.79	5.6	3.75	3.4	−0.18	9	1.53	0.92	−1.88	7.4	0.37	0.30
Cu	−1.69	6	*	*	−2.00	5.8	*	*	−2.05	5.6	*	*

*Denotes a numerical value less than 10^{-3}.

4. Conclusion

We have investigated the effect of several substrates (glass, Si, mica, Cu and Al_2O_3) of thickness, t, in a nanometer range and of the Cu underlayer on the structural and electrical properties of evaporated Ni thin films. All Ni samples grow with the <111> texture regardless of the substrates. The Cu underlayer did not change this preferred orientation. Internal stress is an important parameter in thin films, as it can affect the mechanical and magnetic properties, we have found in this study that Ni films deposited on glass, Si and mica are characterized by a relatively small tensile stress which decreases even further as t increases; low stress is observed only in thick Ni/Al_2O_3; however with Cu substrate, the Ni film is subjected to a relatively strong compressive stress which is not relieved with thickness. The grain size D can affect the properties of thin films such as the electrical resistivity ρ and the coercive field; we observe that thinner Ni films have small grain sizes (about 5 nm) regardless of the substrate; as t increases we note the largest D values for Ni on glass, Si and Al_2O_3 and the smallest one for Ni on Cu. For the thinner film, ρ is large for Ni/glass and low for Ni/mica. As t increases, ρ converges to the same value for all the four nonconductor substrates. The substrate is found to affect the Ni surface state: for the same t, the surface of Ni grown on Cu and Al_2O_3 is less uniform and has larger roughness than for the other substrates. With the Cu underlayer, the growth mode goes through two stages: in the first one, the stress increases and the grain size decreases when t is increased up to a critical thickness t_{Cr} which depends on the substrates. In the second one, i.e. beyond the critical thickness, stress is relieved and the grain size increased. Also with the Cu underlayer, the Ni surface is more uniform and smoother compared to the case of the Ni/Substrate system.

Acknowledgments

The X-ray diffraction experiments were performed in the CRNB (Centre de Recherche Nucléaire de Birin, Algeria).

References

[1] G. Zou, H. Qiu, Y. Zuo, H. Zong, J. He, Comparative study on the characteristics of network and continuous Ni films, Thin Solid Films 520 (2012) 6024.
[2] M. Yu, H. Qiu, X. Chen, P. Wu, Y. Tian, Comparative study of the characteristics of Ni films deposited on SiO_2/Si(100) by oblique-angle sputtering and conventional sputtering, Thin Solid Films 516 (2008) 7903.
[3] J.B. Yi, Y.Z. Zhou, J. Ding, G.M. Chow, Z.L. Dong, T. White, X.Y. Gao, A.T.S. Wee, X.J. Yu, An investigation of structure, magnetic properties and magnetoresistance of Ni films prepared by sputtering, J. Magn. Magn. Mater. 284 (2004) 303.
[4] Z.B. Guo, W.B. Mi, Q. Zhang, B. Zhang, R.O. Aboljadayel, X.X. Zhang, Anomalous Hall effect in polycrystalline Ni films, Solid State Commun. 152 (2012) 220.
[5] V. Volkov, V. Levashov, V. Matveev, L. Matveeva, I. Khodos, Yu Kasumov, Extraordinary Hall effect in nanoscale nickel films, Thin Solid Films 519 (2011) 4329.
[6] K. Ha, R.C. O'Handley, Magnetization canting in epitaxial Cu/Ni/Cu/Si(001) films, J. Appl. Phys. 87 (2000) 5944.
[7] A. Ashery, A.A.M. Farag, R. Mahani, Structural, electrical and magnetic characterizations of Ni/Cu/p-Si Schottky diodes prepared by liquid phase epitaxy, Microelectronic Eng. 87 (2010) 2218.
[8] S.K. Ghosh, P.K. Limaye, B.P. Swain, N.L. Soni, R.G. Agrawal, R.O. Dusane, A.K. Grover, Tribological behaviour and residual stress of electrodeposited Ni/Cu multilayer films on stainless steel substrate, Surf. Coat. Technol. 201 (2007) 4609.
[9] Z. Li, J. Zhao, L. Ren, Aqueous solution-chemical derived Ni-Al_2O_3 solar selective absorbing coatings, Sol. Energ. Mater. Solar Cells 105 (2012) 90.
[10] M.H. Amin, K. Mantri, J. Newnham, J. Tardio, S.K. Bhargava, Highly stable Ytterbium promoted Ni/γ-Al_2O_3 catalysts for carbon dioxide reforming of methane, Appl. Cataly. B: Environmental 119–120 (2012) 217.
[11] A.M. Thron, P.K. Greene, K. Liu, K.v. Benthem, Structural changes during the reaction of Ni thin films with (100) silicon substrates, Acta. Mater. 60 (2012) 2668.
[12] M. Hemmous, A. Layadi, A. Guittoum, A. Bourzami, A. Benabbas, Effect of deposition rate and thickness on the structural and electrical properties of evaporated Ni/glass and Ni/Si(1 0 0) thin films, Microelectronics J. 39 (2008) 1545.
[13] C. Nacereddine, A. Layadi, A. Guittoum, S.-M. Cherif, T. Chauveau, D. Billet, J. Ben Youssef, A. Bourzami, M.-H. Bourahli, Structural, electrical and magnetic properties of evaporated Ni/Cu and Ni/glass thin films, Mater. Sci. Eng. B 136 (2007) 197.
[14] I.V. Malikov, L.A. Fomin, V.Yu. Vinnichenko, G.M. Mikhailov, Epitaxial Ni films for ballistic ferromagnetic nanostructures, Thin Solid Films 519 (2010) 527.
[15] J.D. Lee, H.S. Kim, S.Y. Jeong, K.H. Kim, J.J. Lee, J.E. Kim, Magnetic characteristics of thin Ni films electrodeposited on n-Si(1 1 1), Current. Appl. Phys. 10 (2010) 249.
[16] J. Xu, T. Shao, G. Jin, Effect of processing conditions on microstructure and electrical characteristics of Ni thin films, Vacuum 84 (2010) 478.
[17] S. Thiele, A. Reina, P. Healey, J. Kedzierski, P. Wyatt, P.L. Hsu, C. Keast, J. Schaefer, J. Kong, Engineering polycrystalline Ni films to improve thickness uniformity of the chemical-vapor-deposition-grown grapheme films, Nanotechnology 21 (2010) 015601.
[18] Y. Tang, D. Zhao, D. Shen, J. Zhang, B. Li, Y. Lu, X. Fan, Fabrication and magnetization measurement of Ni thin films on silicon substrate by electrodeposition, Thin Solid Films 516 (2008) 2094.
[19] Y. Weiping, L. Henan, L. Junshan, G. Jihong, EPMA and XRD study on nickel metal thin film for temperature sensor, Sensor. Actuat A. Phys. 136 (2007) 212.
[20] T. Kada, M. Ishikawa, H. Machida, A. Ogura, Y. Ohshita, K. Soai, Volatile CVD precursor for Ni film: cyclopentadienylallylnickel, J. Cryst. Growth. 275 (2005) e1115.
[21] L. Pereira, P. Barquinha, E. Fortunato, R. Martins, Influence of metal induced crystallization parameters on the performance of polycrystalline silicon thin film transistors, Thin Solid Films 487 (2005) 102.
[22] J.B. Shi, Y.C. Chen, C.W. Lee, Y.T. Lin, C. Wu, C.J. Chen, Optical and magnetic properties of 30 and 60 nm Ni nanowires, Mater. Lett. 62 (2008) 15.
[23] Y. Yang, H. Qiu, X. Chen, M. Yu, Characteristics of Ni films deposited on SiO_2/Si(1 0 0) and MgO(0 0 1) by direct current magnetron sputtering system with the oblique target, Appl. Surf. Sci. 255 (2009) 6226.
[24] M. Mebarki, A. Layadi, A. Guittoum, A. Benabbas, B. Ghebouli, M. Saad, N. Menni, Structural and electrical properties of evaporated Fe thin films, Appl. Surf. Sci. 257 (2011) 7025.
[25] C. Cornet, J.-P. Deville, Physique et ingénierie des surfaces (Physics and Engineering of Surfaces), EDP Sciences, 1998.
[26] A. Richardt, A.-M. Durand, Le vide. Les couches minces. Les couches dures (The Vacuum. The Thin Films. The Hard Films), Edition IN FINE, Paris, 1994.
[27] P.H. Bolt, S.F. Lobner, J.W. Geus, F.H.P.M. Habraken, Interfacial reaction of NiO with Al_2O_3(1120) and polycrystalline α-Al_2O_3, Appl. Surf. Sci. 89 (1995) 339.
[28] P. Šmilauer, Thin metal films and percolation theory, Contemp. Phys. 32 (1991) 89.
[29] M.A. Angadi, L.A. Udachan, Electrical properties of thin nickel films, Thin Solid Films 79 (1981) 149.
[30] A.I. Maaroof, B.L. Evans, Onset of electrical conduction in Pt and Ni films, J. Appl. Phys. 76 (1994) 1047.
[31] S. Petrović, B. Radak, D. Peruško, P. Pelicon, J. Kovač, M. Mitrić, B. Gaković, M. Trtica, Laser-induced surface alloying in nanosized Ni/Ti multilayer structures, Appl. Surf. Sci. 264 (2013) 273.
[32] K.C. Hung, Y.C. Chan, H.C. Ong, P.L. Tu, C.W. Tang, Effect of pinhole Au/Ni/Cu substrate on self-alignment of advanced packages, Mater. Sci. Eng. B 76 (2000) 87.
[33] S. Singh, S.K. Ghosh, S. Basu, M. Gupta, P. Mishra, A.K. Grover, Structural and magnetic study of an electrodeposited Ni/Cu thin film by neutron reflectometry, Electrochem. Solid. ST. 9 (2006) J5.
[34] H. Sadeghi, A. Zolanvari, Characterization of annealed Ni/Cu multilayers on Si(100), Armenian, J. Phys. 2 (2009) 302.
[35] S.K. Ghosh, P.K. Limaye, S. Bhattacharya, N.L. Soni, A.K. Grover, Effect of Ni sublayer thickness on sliding wear characteristics of electrodeposited Ni/Cu multilayer coatings, Surf. Coat. Technol. 201 (2007) 7441.
[36] J. Pflaum, E. Hübner, Th. Zeidler, T. Schmitte, J. Pelzl, Studies of the influence of the local growth characteristics on the magnetic properties of electrolytically deposited Ni films, Thin Solid Films 318 (1998) 186.
[37] C.A.F. Vaz, G. Lauho, J.A.C. Bland, B.D. Fulthorpe, T.P.A. Hase, B.K. Tanner, S. Langridge, J. Penfold, Effect of the Cu capping thickness on the magnetic properties of thin Ni/Cu(0 0 1) films, J. Magn. Magn. Mater. 226–230 (2001) 1618.
[38] T.G. Kim, J.H. Lee, J.H. Song, K.H. Chae, S.W. Shin, H.M. Hwang, J. Lee, K. Jeong, C.N. Whang, J.-S. Lee, K.-B. Lee, Interface study of ion irradiated Cu/Ni/Cu(002)/Si magnetic thin film by X-ray reflectivity, J. Magn. Magn. Mater. 299 (2006) 105.
[39] H.M. Hwang, J.C. Park, D.G. You, H.S. Park, K. Jeong, J. Lee, T.G. Kim, J.H. Song, Spin-reorientation transition of epitaxial Cu/Ni/Cu(001) structure, J. Appl. Phys. 93 (2003) 7625.
[40] M. Farle, B. Mirwald-Schulz, A.N. Anisimov, W. Platow, K. Baberschke, Higher-order magnetic anisotropies and the nature of the spin-reorientation transition in face-entered-tetragonal Ni(001)/Cu(001), Phys. Rev. B. 55 (1997) 3708.
[41] F. Spaepen, Interfaces and stresses in thin films, Acta mater. 48 (2000) 31.

ملخص

تم وضع سلاسل من طبقات رقيقة من النيكل عن طريق تقنية التبخير في الفراغ على مساند الزجاج، السيليسيوم ،الميكا ، الالومينيا ، النحاس ونحاس التوتياء مع أو بدون طبقة داخلية من النحاس . تم تقدير سمك الرقائق من خلال محاكاة البيانات المحصل عليها بتقنية RBS وهي محصورة بين 4 و 163 نانومتر .وقد تم تبخير طبقة النحاس مع سمك 27 ,52 و 90 نانومتر .آثار المساند، سمك النيكل و سمك النحاس على الخصائص البنيوية, الكهربائية و المغناطيسية لرقائق النيكل قد تمت دراستها. تم استخدام التحليل الارتداد الطيفي لروثرفورد لقياس سمك كل النيكل و النحاس ولتأكد من سطح الفيلم الخارجي و الداخلي. تم قياس اتجه النمو، الضغط و ومتوسط حجم البلوريات باستخدام تقنية انعراج الأشعة السينية و دراسة مورفولوجية السطح بواسطة المجهر الإلكتروني الماسح . تم قياس المقاومة الكهربائية من خلال طريقة أربع نقاط . تمت دراسة الخواص المغناطيسية بواسطة مغناطيسي العينة المتذبذبة (VSM) ومغناطيسي-بصري تأثير كير . كل العينات متعددة البلوريات وموجهة وفق الاتجاه <111> و على جميع المساند. حجم بلوريات النيكل في تزايد مستمر مع سمك رقاق النيكل بالنسبة لمساند الزجاج ، و الميكا و السيليسيوم, و في انخفاض بالنسبة لمساند النحاس. قيم الضغط (ε) إيجابيةٍ بالنسبة للرقائق ذات السمك الصغير وتصبح سلبية لتقليل مع زيادة سمك . مع وجود طبقة النحاس الداخلية، نمط النمو ينطوي على مرحلتين : الضغط (حجم البلوريات) يزداد (ينقص) الى غاية سمك حرج t_{Cr} ، في حين أن الضغط يسترخي عند زيادة حجم البلوريات. بالنسبة لمنحنيات التباطؤ ب VSM, الخاص المتباينة موجودة في السطح بالنسبة لجميع العينات. في النظام الاول (النيكل / المساند) يظهر زيادة القوة القسرية مع زيادة سمك . حقل التشبع والتربيع تتغير من 0.22 إلى 2.4 اورشتد و من 0.23 الى 0.90 ،على التوالي. بالنسبة للنظام الثاني (النيكل / النحاس / المساند) ، القوة القسرية تتغير من 3 الى 230 اورشتد. يتراوح التربيع بين 0.08 و 0.67. حقل التشبع يتغير بين 520 و 3200 اورشتد. تأثير كير في أول نظام لديه زيادة من حقل القسرية و مجال التشبع مع زيادة السمك و حجم البلوريات. والتربيع محصور بين 0.45 و 0.91. بالنسبة للنظام الثاني ، تباينت القوة القسرية تتغير من ~ 2 الى 151 اورشتد. و التربيع من 0.1 الى 0.85 و يتراوح حقل التشبع من 25 الى 320 اورشتد.

الكلمات المفتاحية: النيكل ,النيكل/النحس , التبخير , انعراج الأشعة السينية, مغناطيسي العينة المتذبذبة, المجهر الإلكتروني الماسح, تأثير كير.

Résumé

Les séries des couches minces de Ni ont été déposées par évaporation thermique sur des substrats de verre, Si, mica, Al_2O_3, Cu et CuZn avec ou sans sous-couche de Cu. Les épaisseurs des couches de Ni varient de 4 à 163 nm. La sous-couche de Cu a été évaporée avec des épaisseurs de 27, 52 et 90 nm. Les effets du substrat, l'épaisseur de Ni et de la sous-couche Cu sur les propriétés structurelles, électriques et magnétiques du Ni ont été étudiées. La RBS a été utilisée pour mesurer les épaisseurs de Ni et de Cu et de vérifier la surface et l'interfaces des films de Ni. La texture, la déformation et la taille moyenne des grains ont été mesurés à partir de technique de la diffraction des rayons X. La morphologie de surface est étudiée par le microscope électronique à balayage. La résistivité électrique est mesurée par la méthode des quatre points. Les propriétés magnétiques ont été étudiées par le magnétomètre à échantillon vibrant (VSM) et l'effet Kerr. Les films de Ni présentent une texture suivant la direction <111> pour tous les substrats. La taille moyenne des grains de Ni augmente avec l'épaisseur pour les substrats de verre, Si et de mica et diminue pour le Cu. Le strain, ε, est positif pour les faibles épaisseurs et diminue pour devient négative avec l'augmentation de l'épaisseur. Avec la sous-couche Cu, le mode de croissance passe par deux phases: les contraintes (la taille des grains) augmentent (diminuent) jusqu'à une épaisseur critique t_{Cr}, alors que les contraintes sont relaxées lorsque la taille moyenne des grains augmente. Par VSM, les cycles d'hystérésis présentent une anisotropie magnétique dans le plan pour tous les échantillons. Le système Ni/substrats montre une augmentation de la coercivité avec l'augmentation de l'épaisseur. Le champ de saturation et le squareness varient de 0.22 kOe à 2.4 kOe et de 0,23 à 0.90, respectivement. Pour le système Ni/Cu/substrats, le champ coercitif varie de 3 à 230 Oe. Le squarness varie 0.08 à 0.67 et le champ de saturation varie de 0.52 à 3.2 kOe. L'effet Kerr dans le premier système présente l'augmentation du champ coercitif et du champ de saturation avec augmentation de l'épaisseur et de la taille des grains. Le squarness varie de 0.45 à 0.91. Pour le deuxième système, le champ coercitif varie de ~ 2 à 151 Oe. Le squarness varie de 0,1 à 0,85 et le champ de saturation varie de 25 à 320 Oe.

Mots clés : Ni films; Ni/Cu; Evaporation; DRX; MEB; VSM et effet Kerr.

Abstract

Series of Ni thin films have been deposited by thermal evaporation onto glass, Si, mica, Al_2O_3, Cu and CuZn substrates with and without a Cu underlayer. The Ni thicknesses, t, are in the 4 to 163 nm range. The Cu underlayer has also been evaporated with a Cu thickness equal to 27, 52 and 90 nm. The effects of substrate, the Ni thickness and the Cu underlayer on the structural, electrical and magnetic properties of Ni are investigated. Rutherford Backscattering Spectroscopy was used to probe the Ni/Substrate and Ni-Cu underlayer interfaces and to measure both Ni and Cu thicknesses. The texture, the strain and the grain size values were derived from X-ray diffraction experiments. The surface morphology is studied by means of a Scanning Electron Microscope. The electrical resistivity is measured by the four point probe. Magnetic properties were studied bay Vibrating Sample Magnetometer (VSM) and magneto-optic Kerr effect technique. The Ni films grow with the <111> texture on all substrates. The Ni grain sizes D increase with increasing thickness for the glass, Si and mica substrates and decrease for the Cu one. The strain ε is positive for low thickness, decreases in magnitude and becomes negative as t increases. With the Cu underlayer, the growth mode goes through two phases: first, the stress (grain size) increases (decreases) up to a critical thickness t_{Cr}, then stress is relieved and grain size increases. For VSM, the hysteresis curves show an in-plane magnetic anisotropy for all samples. The first system (Ni/substrates) shows the coercivity increases with increasing thickness. The saturation field and squareness range from 0.22 KOe to 2.4 KOe and from 0.23 to 0.90, respectively. For the Ni/Cu/substrates system, the coercivity varies from 3 à 230 Oe. The squarness ranges from 0.08 to 0.67 and the saturation field varies from 0.52 KOe to 3.2 KOe. Kerr effect in the first system shows the coercivity and saturation field increase with increasing thickness and grain size. The squareness ranges from 0.45 to 0.91. For the second system, the coercive field varies from ~ 2 to 151 Oe when increasing thickness. The squarness ranges from 0.1 to 0.85 and the saturation field varies from 25 to 320 Oe.

Keywords: Ni films; Ni/Cu; Evaporation, X-ray Diffraction, SEM; VSM and Kerr effect.