

الجمهورية الجزائرية الديمقراطية الشعبية
وزارة التعليم العالي والبحث العلمي
جامعة العربي التبسي-تبسة
كلية العلوم الدقيقة وعلوم الطبيعة والحياة
قسم: علوم المادة



مذكرة ماستر
ميدان: علوم المادة
شعبة: فيزياء

اختصاص: علوم المواد وتطبيقاتها

الموضوع:

تأثير طبقة ذات سمك 75Å من الكروم Cr على الخصائص البنيوية للمعينة
Fe(300Å)/Ag(100Å)/MgO(001)

مقدمة من طرف:

جعلاي هدي سليم فلة

امام لجنة المناقشة:

رئيس اللجنة	جامعة العربي التبسي-تبسة-	استاذ تعليم عالي (أ)	شمام فيصل
مؤطرة	جامعة العربي التبسي-تبسة-	استاذة محاضرة (ب)	بوخالفة راضية
الممتحن	جامعة العربي التبسي-تبسة-	استاذ محاضر(ب)	حنيني فوزي

تاريخ المناقشة:

2017/05/23

النقطة: 17.95... الملاحظة: جيد جدا

Déclaration sur l'honneur de non-plagiat

(à joindre obligatoirement au mémoire, remplie et signée)



Je soussigné(e),

Nom, Prénom : Slim Fella - Djâalali Houda

Régulièrement inscrit(e) en **Master** au département : Sciences de la Matière

N° de carte d'étudiant : 4012679/11 - 4021224/12

Année universitaire : 2016 - 2017

Domaine : Science de la matière

Filière : Physique

Spécialité : physique des matériaux et ses applications

Intitulé du mémoire : تأثير طبقة ذات سماك 75Å من

الكروم على الخصائص البنيوية للعبء

Fe(300Å) / Ag(100Å) // MgO(001)

Atteste que mon mémoire est un travail original et que toutes les sources utilisées ont été indiquées dans leur totalité. Je certifie également que je n'ai ni recopié ni utilisé des idées ou des formulations tirées d'un ouvrage, article ou mémoire, en version imprimée ou électronique, sans mentionner précisément leur origine et que les citations intégrales sont signalées entre guillemets.

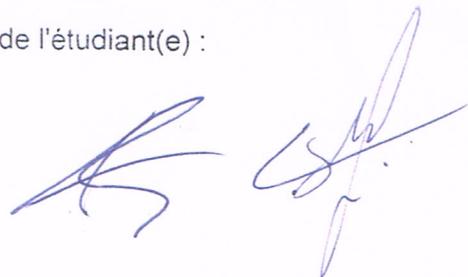
Sanctions en cas de plagiat prouvé :

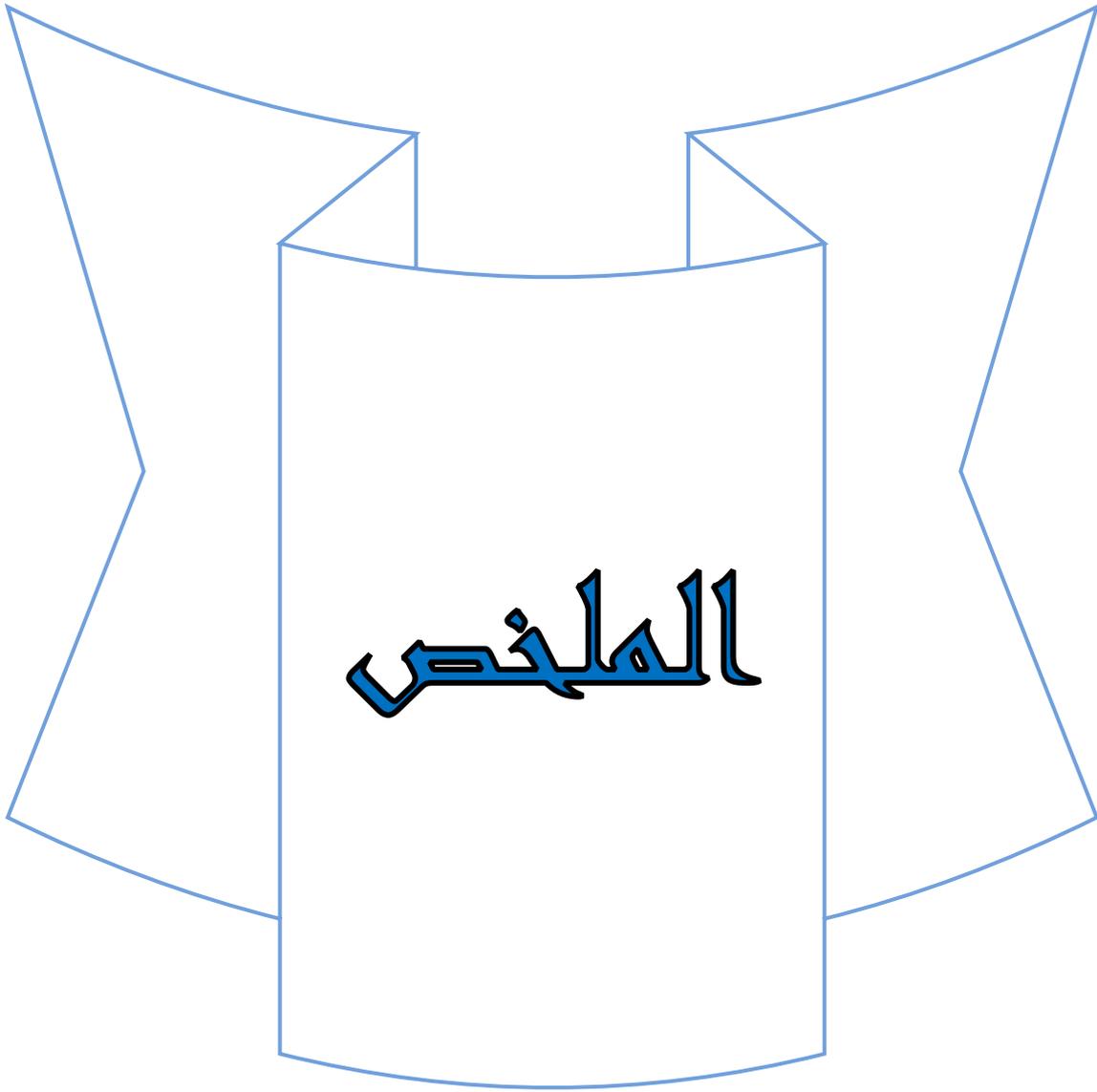
L'étudiant sera convoqué devant le conseil de discipline, les sanctions prévues selon la gravité du plagiat sont :

- L'annulation du mémoire avec possibilité de le refaire sur un sujet différent ;
- L'exclusion d'une année du master ;
- L'exclusion définitive.

Fait à Tébessa, le : 06 - 06 - 2017

Signature de l'étudiant(e) :





الملخص

لمعرفة تأثير طبقة الكروم على الخصائص البنيوية للأغشية الرقيقة (Fe(300Å) / Ag(100Å)،

قمنا بتحضير في درجة حرارة الغرفة ، بتقنية التنضيد الموجه بالقذف الجزيئي نوعين من العينات:

العينة 1: Ag(20Å) / Fe(300Å) / Ag(100Å) // MgO(001)

العينة 2: Ag(20Å) / Fe(300Å) / Ag(100Å) / Cr(75Å) // MgO(001)

السماك 20Å من مادة الفضة ، استخدم كطبقة مضادة للأكسدة .

الخصائص البنيوية للعينتين درست باستخدام انعراج الأشعة السينية للزوايا الكبيرة والصغيرة. تحليل

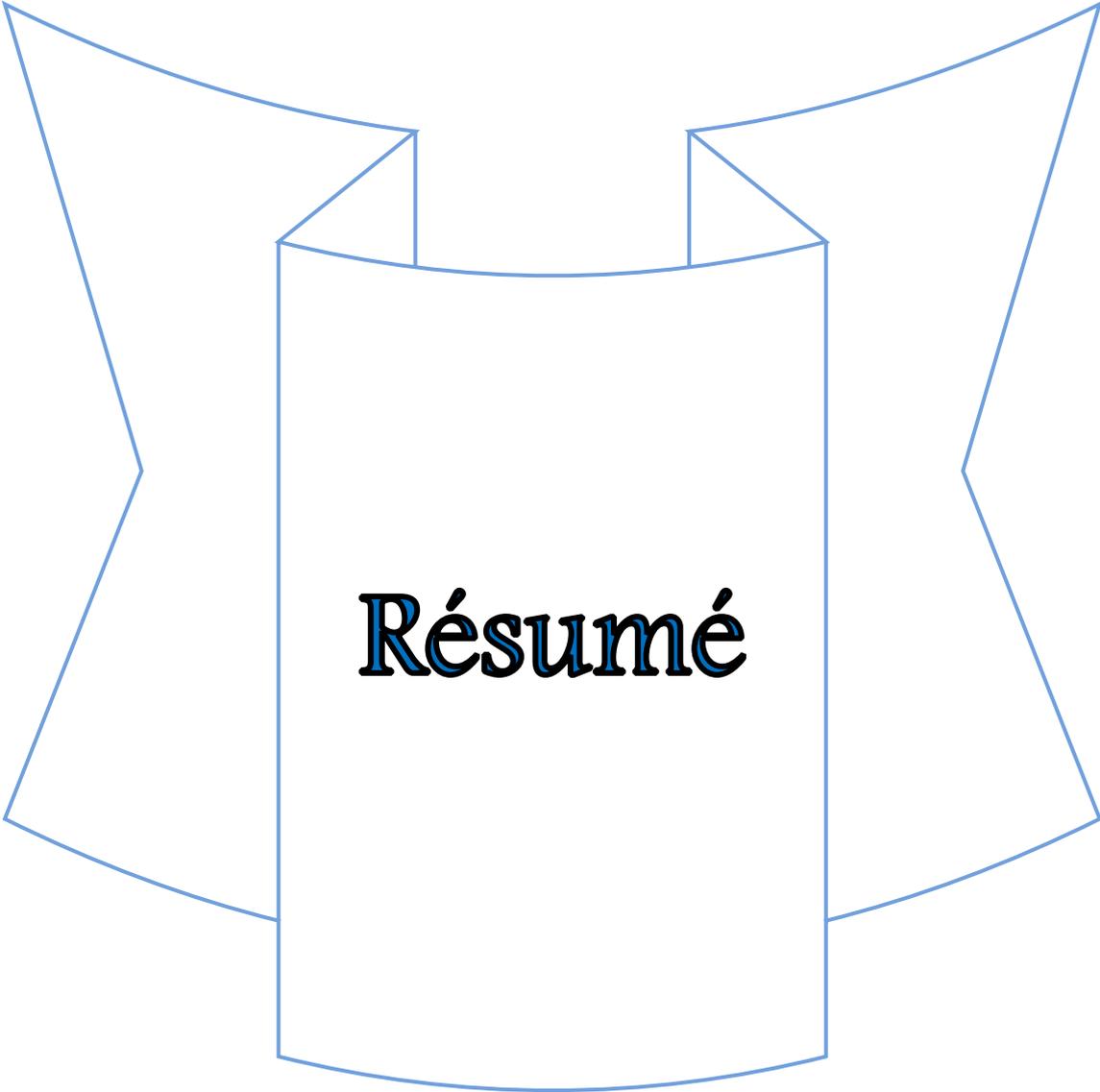
طيف الأشعة اكد لنا، أن طبقة الكروم حسنت من نوعية الأسطح والتضاريس للأغشية الرقيقة المذكورة

سابقا.

الكلمات المفتاحية

الحديد، الكروم ، الفضة ، أكسيد المغنيزيوم، انعراج الأشعة السينية ،المسند ، أحادي التبلور ، البعد البيني،

البعد الشبكي ، الحجم الحبيبي ، التشوه.



Résumé

RÉSUMÉ

Pour découvrir l'effet de la couche de chrome sur les propriétés structurales, des couches minces Fe (300Å) / Ag (100Å), on a préparé à la température ambiante, par la technique d'épitaxie par jet moléculaire deux types des échantillons :

Echantillon1 : Ag (20Å) / Fe (300Å) / Ag (100Å) // MgO(001)

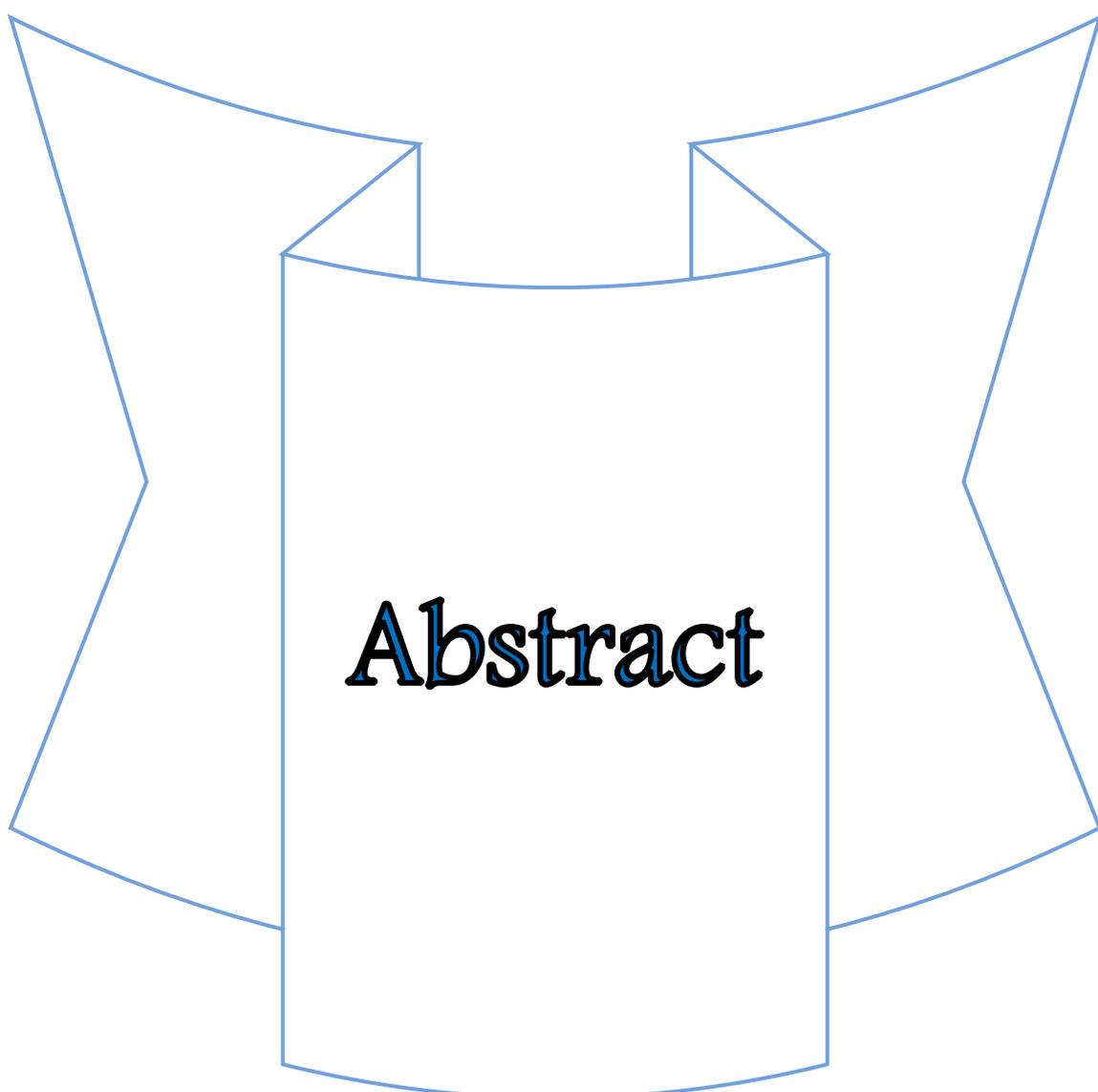
Echantillon2 : Ag (20Å) / Fe (300Å) / Ag (100Å) / Cr (75Å) // MgO(001)

L'épaisseur 20Å du matériau d'argent, ont été utilisé comme une couche protectrice contre l'oxydation.

Les propriétés structurales des échantillons étudiés à l'aide de la technique de diffraction des rayons X à grands et petits angles. L'analyse du spectre du rayonnement nous a prouvé, que la couche de chrome améliore la qualité des surfaces des films minces indiqués précédemment.

LES MOTS CLES

Fe, Cr, Ag, MgO, DRX, substrat, monocristallin, distance interréticulaires, paramètre de maille, la taille de grain, déformation.



Abstract

ABSTRACT

In order to discover the effect of the chromium layer on the structural properties, of Fe (300Å) / Ag (100Å) thin layers, we prepared at ambient temperature, by the molecular beam epitaxy technique two types of samples:

Sample1: Ag (20Å) / Fe (300Å) / Ag (100Å) // MgO (001)

Sample2: Ag (20Å) / Fe (300Å) / Ag (100Å) / Cr (75Å) // MgO (001)

The thickness 20Å of silver material, have been used as a protective layer against oxidation.

The structural properties of the samples studied using the X-ray diffraction technique at large and small angles. The analysis of the radiation spectrum has shown us that the chromium layer improves the surface quality of the thin films mentioned above.

KEYWORDS

Fe, Cr, Ag, MgO, XRD, substrate, single Crystal, interreticular distance, lattice parameter, grain size, deformation.

الإهداء

أتقدم بجزيل الشكر والعرفان وخالص الدعاء لوالديا الكريمين الذين لم يدخرا جهداً ولا لحظة واحدة من حياتهما ليكونا لي سنداً ودليلاً في هذه الحياة شكراً **أبي** عن كل قطرة عرق مالحة في سبيل دعمي ودعم دراستي.

إلى ملائكتي في الحياة إلى معنى الحب وإلى معنى الحنان والتفاني إلى بسملة الحياة وسر الوجود إلى من كان دعاؤها سر نجاحي وحنانها بلسم جراحي إلى نرجس حبه حياتي إلى الخلد الحبيب **أمي الحبيبة** . شكراً أمي الغالية عن كل ثانية أمضيتها في عمرك من أجل السهر علي والدعاء لي بالتوفيق .إلى من أرى التفاؤل بأعينهم والسعادة في ضحكتهم إلى الوجوه المفعمة بالبهجة ولمحتكم أزهرت أيامي وفتحت براعم الغد أخوتي الأعزاء : **صلاح، بدر، عبدو**.

إلى الروح التي سكنه روعي أخي الغالي * **صلاح**

إلى أخواتي العزيزات : **نوال، حبيبة، خولة، نعيمة، عبير و عواطف**، لتتبعيني ودعمي لبلوغ مبتغاي حفظهم الله ورعاهم ووفيقهم لما فيه خير .

" إلى كل روح طيبة سعت في سبيل العلم وتطويره "

الإهداء

إلى منارة العلم إلى الأمي الذي علم المتعلمين إلى سيد الخلق أجمعين
إلى رسولنا كريم سيدنا محمد صلى الله عليه وسلم

إلى من كلفه الله بالصيبة و الوقار..إلى من علمني العطاء بدون إنتظار..
إلى من أحمل إسمه بكل افتخار.. أرجو من الله أ. يمد في عمرك لتري ثمارا
قد حان قطافها بعد طول إنتظار و ستبقى
.. كلماتك نجوما أهدي بها اليوم و في الغد و إلى الأبد

والدي العزيز

إلى ملاكي في الحياة.. إلى معنى الحب و إلى معنى الحنان و التفاني..
إلى بسمة الحياة و سر الوجود
إلى من كان دماؤها سر نجاحي و حنانها بلسم جراحي إلى أغلى الحبايب

أمي الحبيبة

إلى من أرى التفاؤل بأعينهم.. و السعادة في ضحكتكم
إلى الوجوه المفعمة بالبراءة و لمحبتكم أزهرت أيامي و تفتحت براعم الغد

أختي

إلى رمز العطاء و المحبة إلي منيرة طريقي.. بالإرشاد و الدعاء
إلى من كان ثمارها عوناً لي في الحياة

جدتي الغالية

أهدي هذه الرسالة

قلمة

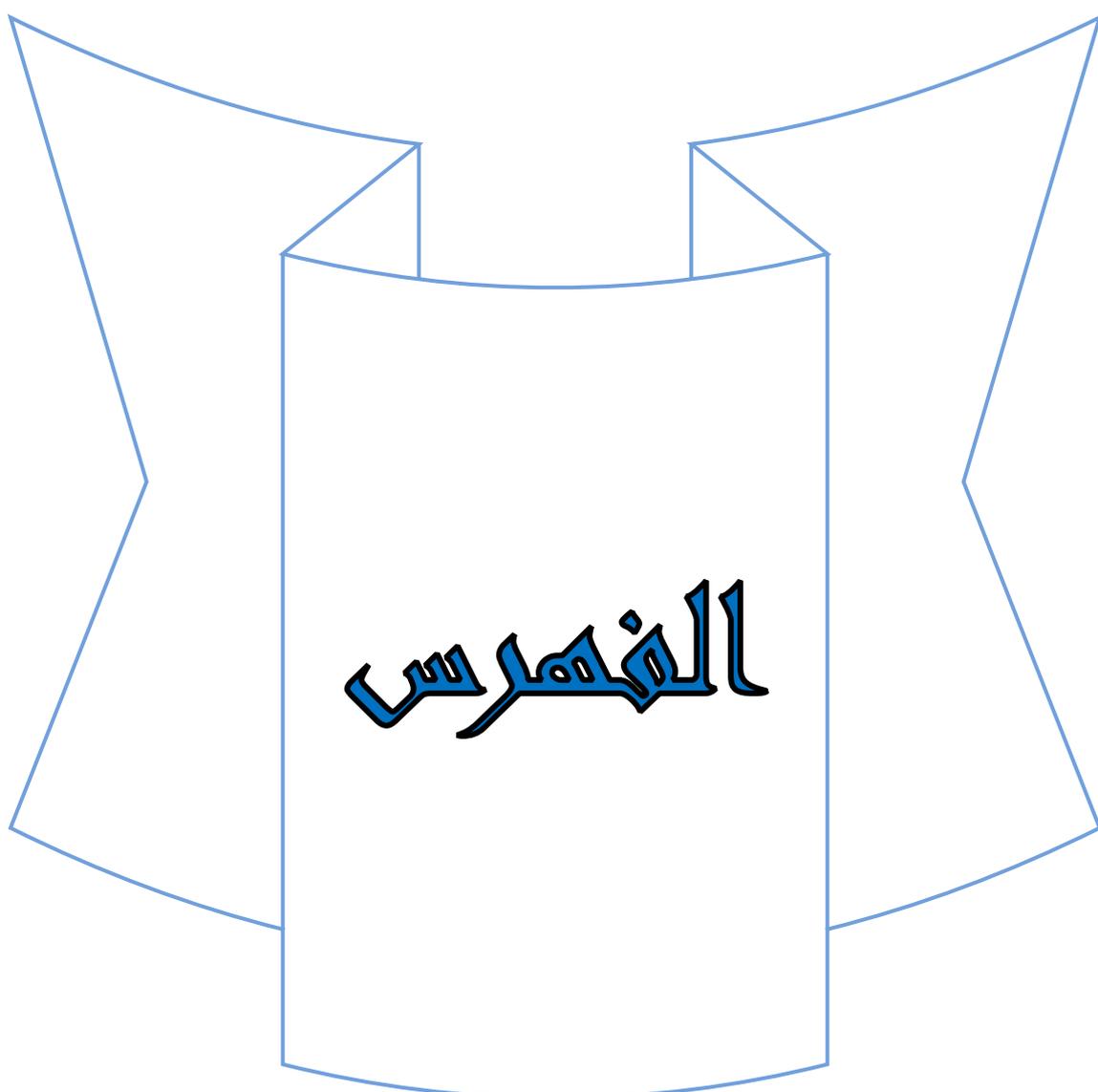
كلمة الشكر

قول كل شيء الحمد والشكر لله العزيز العليم الذي بفضله تم الصالحات، الحمد لله حمدًا طيبًا مباركًا فيه على كل ما وفقنا لبلوغ هذه الدرجة وإنجاز هذا العمل. عظيم الشكر والتقدير و الاحترام لأستاذتنا الكريمة **بوخالفة راضية**، استاذة محاضرة بجامعة العربي-تبسة- التي أطرتنا لإنجاز هذه المذكرة و أرشدتنا بنصائحها وآراءها السديدة ، التي وقفنا معنا لحظة بلحظة لإنجاز هذا العمل القيم.

شكرًا لأستاذتنا الكريمة **للوقوقع** معنا فقد كنت لنا خير سند و خير دليل و خير معلم.

شكرًا لأعضاء اللجنة البروفيسور **شمام فيصل** و الدكتور **حنيني فوزي** لقبولهم تقييم عملنا المتواضع ، وشكر على النصائح والإرشادات التي ستوجهنا نحو الأفضل .

وفى الأخير نتقدم بجزيل الشكر لكل زملائنا و صديقاتنا ولكل من ساهم وساعدنا في إنجاز هذا العمل من قريب و بعيد.



الفهرس

القمرس

01

المقدمة العامة

مفاهيم عامة حول الأغشية الرقيقة

الفصل الأول

03

1-1- مقدمة

03

1-2- تعريف الاغشية الرقيقة

03

1-3- الفرق بين الاغشية الرقيقة و المادة الصلبة

04

1-4- آلية تشكل الاغشية الرقيقة

05

1-4-1- التنويه

05

1-4-2- الالتحام

05

1-4-3- النمو

06

1-5- العوامل المؤثرة على تكوين الأغشية الرقيقة

06

1-5-1- البنية البلورية للمسند

07

1-5-2- طريقة التحضير

07

1-5-3- سرعة الترسيب

- 07 1-5-4- نوعية الطبقة العازلة
- 08 1-6- تطبيقات الأغشية الرقيقة
- 08 1-7- الاستنتاج

الفصل الثاني وصف تقنية تحضير العينات وطريقة تحليل خصائصها البنيوية

- 10 1-1- مقدمة
- 10 1-2- الطرق العامة لترسيب الاغشية الرقيقة
- 11 1-2-1- الترسيب الكيميائي للطور البخاري (CVD)
- 11 1-2-2- الترسيب الفيزيائي للطور البخاري (PVD)
- 12 1-2-2-1- التنضيد الجزئي الموجه (EJM)
- 12 أ- تعريف التنضيد الجزئي الموجه
- 12 ب- مبدأ التنضيد الجزئي الموجه
- 13 ت- وصف هيكل تقنية التنضيد الجزئي الموجه
- 15 ث- مزايا تقنية التنضيد الجزئي الموجه
- 15 1-3- طريقة دراسة الخصائص البنيوية للأغشية الرقيقة

- 15 11-3-1 - مبدأ عمل طريقة انعراج الأشعة السينية
- 17 11-3-1-1 - الانعراج ω
- 17 11-3-1-2 - الانعراج θ -20
- 17 أ- الانعراج بالزوايا الصغيرة
- 18 ب- الانعراج بالزوايا الكبيرة
- 19 ب-1 - البعد البيني وثابت الشبكة
- 19 ب-2 - عدم الانتظام الشبكي
- 20 ب-3 - حجم الحبيبات
- 20 ب-4 - التشوه
- 21 11-4-4 - كيفية تحضير العينات
- 21 11-4-1 - تحضير المسند MgO(001)
- 22 11-4-2 - تحضير الطبقات
- 24 11-5 - الاستنتاج

النتائج التجريبية ومناقشته

الفصل الثالث

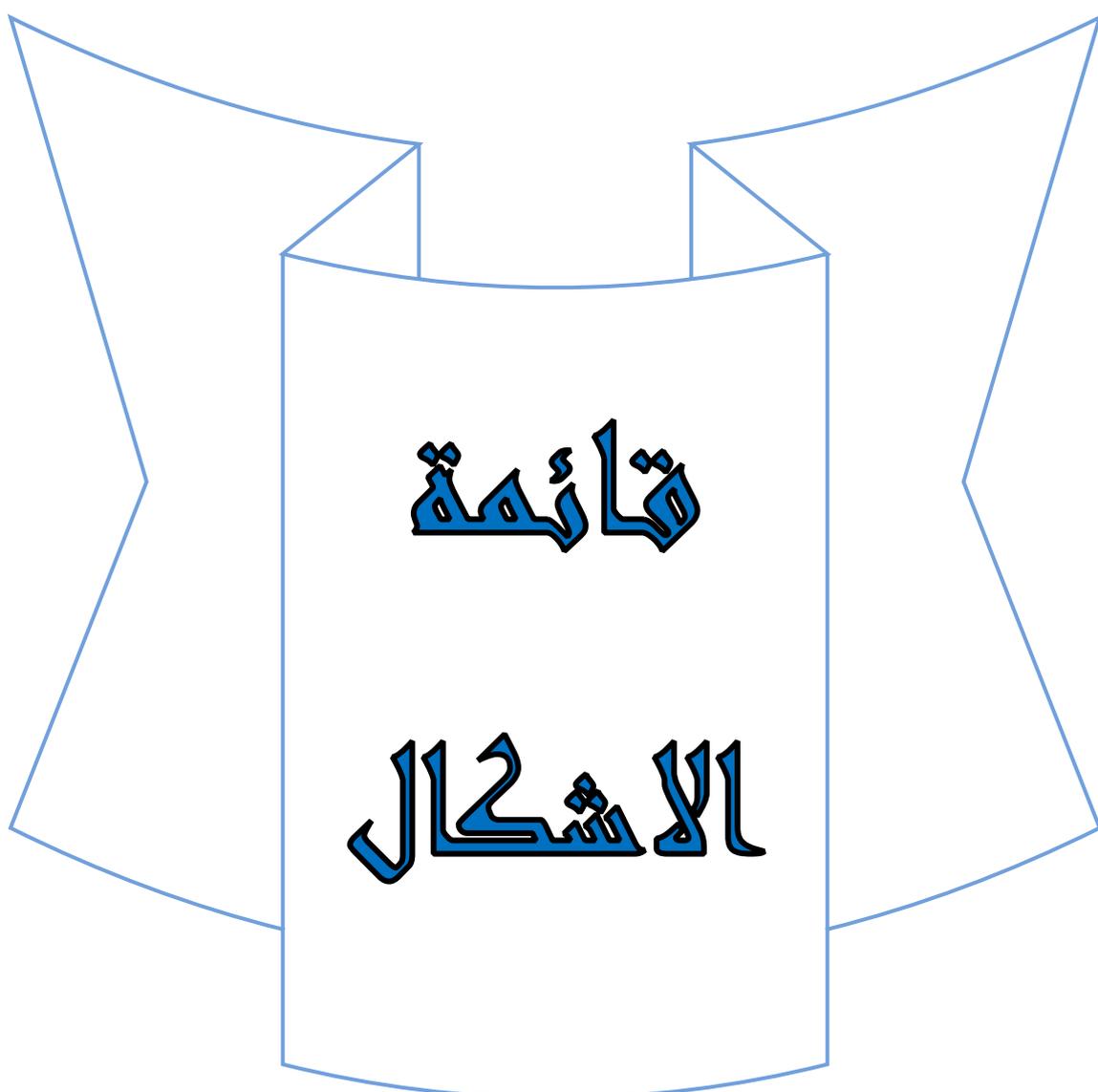
- 25 III-1-1 مقدمة
- 25 III-2-1 تحليل طيف انماط انعراج الاشعة السينية
- 25 III-2-1-1 النمط ω
- 26 III-2-2-1 النمط θ -20
- 26 III-2-2-1-1 الانعراج بالزوايا الصغيرة ($\theta=0^\circ-10^\circ$)
- 27 III-2-2-2-1 الانعراج بالزوايا الكبيرة ($\theta=30^\circ-75^\circ$)
- 31 III-2-2-2-2-1 تأثير طبقة الكروم على ثابت الشبكة
- 32 III-2-2-2-2-2 تأثير طبقة الكروم على عدم الانتظام الشبكي
- 33 III-2-2-2-3-1 تأثير طبقة الكروم على حجم الحبيبات و التشوهات
- 34 III-3-1 الإستنتاج
- 35 الخاتمة العامة
- 37 المراجع

قائمة

الجدول

قائمة الجداول

الصفحة	إسم الجدول	الجدول
30	قيم مواضع حواف براغ والبعد البيني للشبكات البلورية Fe(200),Cr(200) و Ag(200) و MgO(200) على الترتيب	01-III
32	المقارنة بين القيم التجريبية و النظرية لثابت الشبكة لكل من Fe(200),Cr(200) و Ag(200) و MgO(200) على الترتيب	02-III
33	القيم التجريبية و النظرية لعدم الانتظام الشبكي بين الطبقات البلورية	03-III
34	الحجم الحبيبي D و التشوه ϵ لطبقة الحديد في كل عينة	04-III

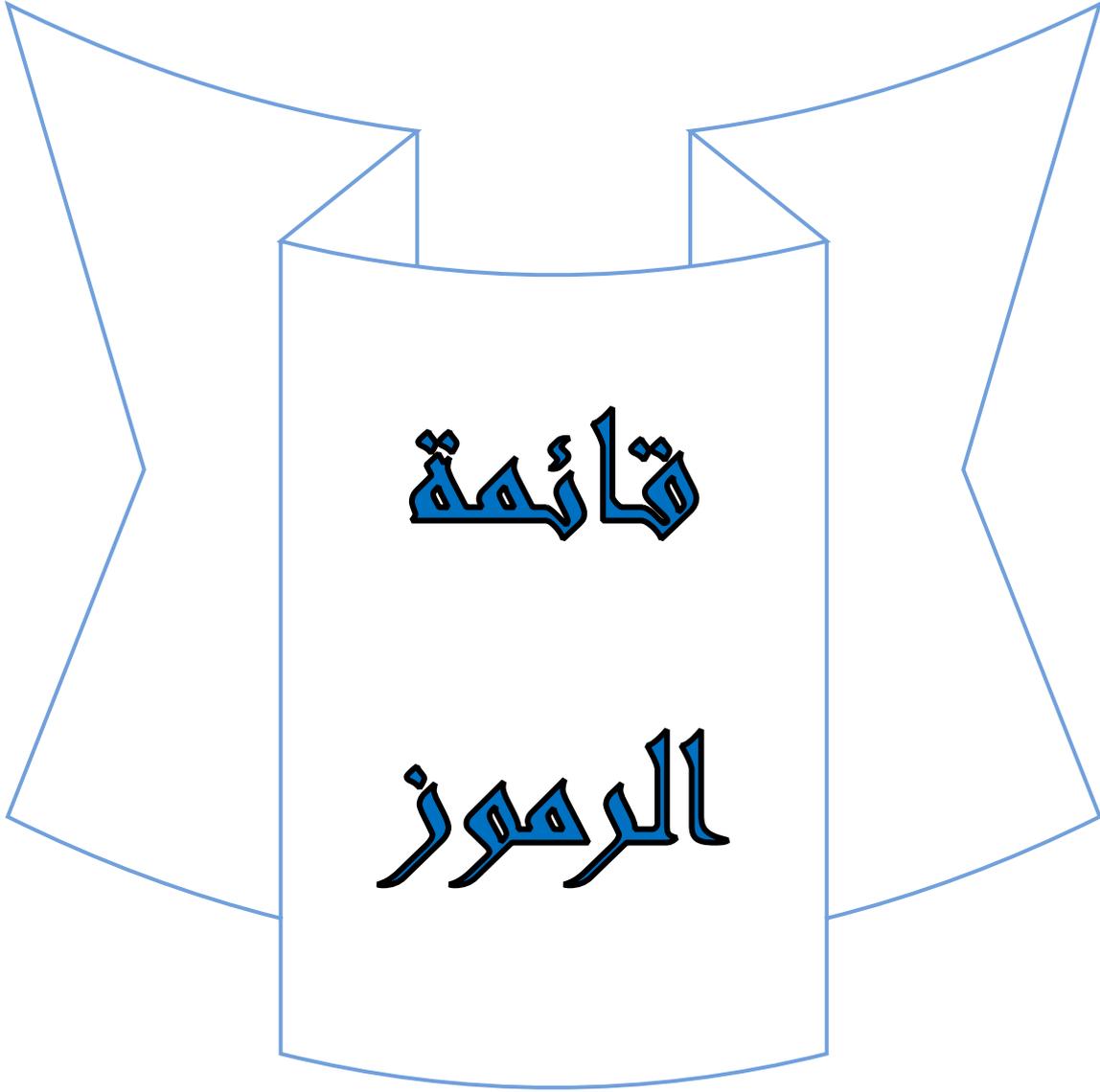


قائمة

الأشغال

قائمة الأشغال

الصفحة	إسم الشكل	الشكل
06	أشكال نمو الأغشية الرقيقة	01-I
11	مخطط موجز للتقنيات المستخدمة في ترسيب الأغشية الرقيقة	01-II
14	هيكل تقنية التتضيد الجزيئي الموجه	02-II
14	مختلف المضخات المستخدمة في غرفة النمو	03-II
16	مخطط يوضح مبدأ انعراج الأشعة السنية	04-II
18	منحنى انعراج الأشعة السنية بالزوايا الصغيرة	05-II
22	مخطط توضيحي لبلورة أكسيد المغنيزيوم (001) MgO	06-II
23	رسم تخطيطي لترتيب طبقات العينة (أ) الأولى و (ب) الثانية	07-II
26	طيف انعراج الأشعة السنية للنمط ω	01-III
27	طيف انعراج الأشعة السنية للزوايا الصغيرة لكل عينة	02-III
29	طيف انعراج الأشعة السنية للزوايا الكبيرة	03-III
31	تأثير التشوه خلال نمو الطبقات على مواقع حافة براغ في طيف الأشعة السنية	04-III



قائمة

الرموز

قائمة الرموز

الرمز	المعنى
CfC	مكعب متمركز الأوجه
Cc	مكعب متمركز الجسم
DRX	انعراج الأشعة السينية
EJM	تقنية التنضيد الجزيئي الموجه
CVD	الترسيب الكيميائي للطور البخاري
PVD	الترسيب الفيزيائي للطور البخاري
λ	الطول الموجي
m	عدد صحيح موجب ويمثل رتبة الحيود
d_{hkl}	البعد الشبكي البيني
hkl	معاملات ميلر
A.S.T.M	الجمعية الأمريكية للاختبار و المواد
D	الحجم الحبيبي
β	عرض منتصف الشدة
a	الثابت الشبكي
θ	زاوية براغ
$\Delta a/a$	عدم الانتظام الشبكي

التشوه المجهري	ε
نسبة الشدة	$\frac{I_b}{I_p}$

المقدمة

العامّة

مقدمة عامة

يشهد العالم منذ القرون السابقة تسارعاً ملحوظاً وغير مسبوق في التطور التقني في كل مجالات الحياة، لدرجة أن الناس في كثير من الأحيان أصبحوا غير قادرين على مواكبة سرعة هذا التطور الذي تقوده جهات كبرى في العالم.

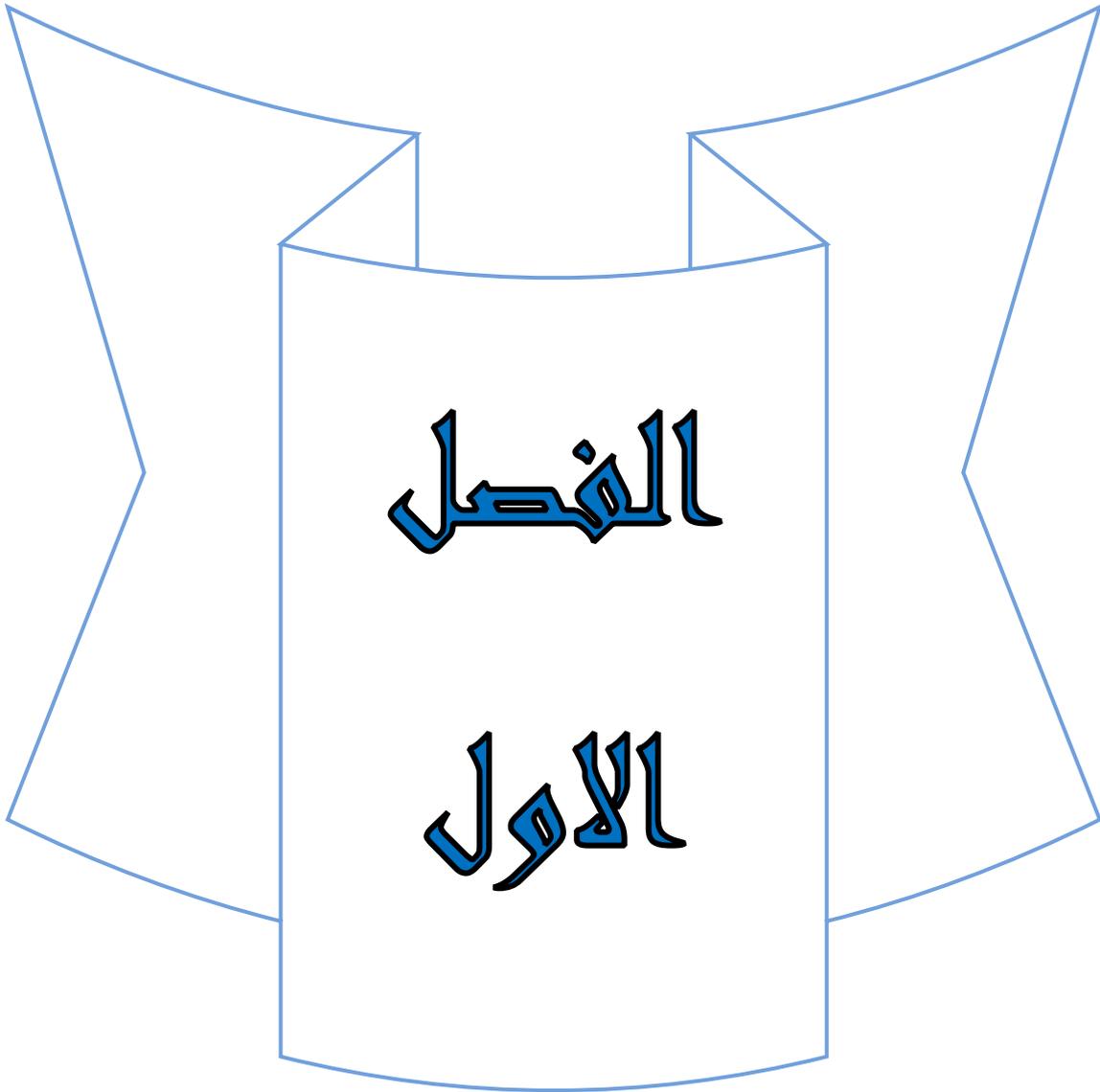
وبات من المسلم به أن نرى اختراعات أو تطبيقات صناعية في مختلف المجالات تظهر إلى ساحة الواقع بعد أن كانت حلمًا قبل سنين، وهكذا كان اختراع الليزر أو إلكترونيات السليسيوم التي قادت إلى اختراع الحاسوب الإلكتروني الحديث كلا على حدة يمثل انعطافاً حاداً في مسار التطور التقني، واليوم نشهد إطلاقة بل إشراقاً جديدة في أفق التقنية ألا وهي تقنية الأغشية الرقيقة حيث تعد أهم التقنيات التي عرفت تطوراً سريعاً في مجال الميكرو إلكترونيك ولقد استخدمت في الكثير من التطبيقات العملية منها تصنيع الخلايا الشمسية والضوئية و صناعة الكواشف [1].

ولقد أثبتت تقنية الترسيب بالتنضيد الجزيئي الموجه (EJM) ريادتها في مجال تحضير الأغشية الرقيقة واكتشاف خصائص جديدة لم تكن موجودة في المواد الصلبة، حيث تسمح هذه الأخيرة بالسيطرة على النمو الفوقي للأفلام ذات سمك النانومتر، وقد استخدمت منذ 20 سنة لنمو المعادن، وتتمثل عملية التنضيد في علاقة التنظيم للمواد البلورية بين الركيزة والمادة التي تترسب عليها والتي تسمح بتحقيق الأنظمة البلورية غير المستقرة وذلك في ظل الظروف الطبيعية من درجة الحرارة والضغط. وأعطى تنضيد المعادن فكرة في البداية لعلماء الفيزياء الصلبة القدرة على الدراسة التجريبية للروابط بين البنية البلورية والخصائص المغناطيسية للمواد.

في هذا العمل سنتطرق إلى دراسة تأثير مادة الكروم البينية (seed layer) على الخصائص البنيوية للأغشية الرقيقة $Ag(100\text{\AA}) / Fe(300\text{\AA})$ التي حضرت بواسطة التنضيد الجزيئي الموجه فوق الركيزة أحادية التبلور $MgO(001)$

قسمنا هذا العمل إلى ثلاثة فصول بالإضافة إلى مقدمة وخاتمة عامة.

الفصل الأول من هذا البحث، خصص لتعريف الأغشية الرقيقة وآلية تشكيلها والعوامل المؤثرة في هذه الأخيرة دون أن ننسى ذكر بعض تطبيقاتها. أما في الفصل الثاني درسنا بالتفصيل تقنية التنضيد الجزئي الموجه المستخدمة في تحضير العينات حيث عرفنا معنى الترسيب بالتنضيد الجزئي الموجه ومبدأ عمله وأنواع النمو الناتجة من هذا الترسيب فضلا عن ذكر بعض الخصائص التي تتميز بها تقنية EJM. ثم تطرقنا إلى تقنية انعراج الأشعة السينية من حيث مبدأها ومختلف أنماطها، والخصائص البنوية التي يمكن أن نتعرف عليها بتحليل طيف كل نمط. وبالنسبة للعينات المدروسة فقد وضحنا كيفية تحضير و ترسيب الطبقات في كل عينة. وفي الفصل الثالث والآخر من هذه المذكرة خصص لدراسة النتائج المتحصل عليها ومناقشتها.



1-1- مقدمة

تقنية الأغشية الرقيقة تتمثل في تحويل المادة من حالتها الصلبة أو السائلة أو الغازية إلى طبقات

رقيقة جداً حيث حقق التطور العلمي قفزة واسعة في مجال التقنيات العلمية بدراسته هذه المواد وتطبيقاتها،

وتعد دراسة المواد المدروسة بشكل أغشية رقيقة إحدى الوسائل المناسبة لمعرفة العديد من الخصائص

الفيزيائية والكيميائية لهذه المواد التي يصعب الحصول عليها بشكلها الطبيعي.

في هذا الفصل سنحاول عرض معلومات عامة حول الأغشية الرقيقة وتلخيص بعض تطبيقاتها

1-2- تعريف الاغشية الرقيقة

يستخدم مصطلح الأغشية الرقيقة لوصف طبقة واحدة أو عدة طبقات من ذرات المادة التي لا يتعدى

سمكها ميكرونًا واحدًا و يستخدم هذا المصطلح أيضا على المواد التي لها أحد الأبعاد مهمل جدًا بالنسبة

للأبعاد الأخرى وفي اغلب الحالات يكون هذا البعد عبارة على السمك الذي يكون صغير جدًا من رتبة

الأنغستروم (Å)، وتعد اليوم دراسة المواد المرسبة بشكل أغشية رقيقة إحدى الوسائل المناسبة لمعرفة العديد

من الخصائص الفيزيائية والكيميائية التي يصعب الحصول عليها إذا كانت المادة في شكلها الطبيعي

[03,02]. تتعلق هذه الخصائص المضافة بالعديد من العوامل ولعل طرق تحضير هذه الأغشية تعد من

العوامل الرئيسية والمؤثرة بشدة في خصائص الغشاء الناتج وصفاته [04].

1-3- الفرق بين الاغشية الرقيقة و المادة الصلبة.

الفرق الجوهرى بين المواد الصلبة والأغشية الرقيقة هو ان خصائص المادة في الحالة الصلبة لا تتأثر

بمعامل الحدود(الاسطح) ، بينما في حالة الطبقات الرقيقة، فان هذا العامل هو المهيمن على جميع

الخصائص، ومن الواضح تماما انه كلما كان سمك العينة صغير جدا كلما زاد تأثير السطح على الخصائص الناتجة. بالإضافة الى انه في حالة دراسة الاغشية الرقيقة و بغض النظر عن طريقة انتاج هذه الاخيرة فإنها تحتاج دائما الى ما يسمى بالمسند و التي تؤثر تأثيرا قويا على الخصائص الهيكلية للطبقة المودعة. حيث نجد طبقة رقيقة من نفس المادة، و بنفس السمك لها خصائص فيزيائية مختلفة بشكل كبير اعتمادا على نوع المسند المعتمد. دون ان ننسى ايضا الدور الذي تلعبه الطريقة المتبعة في انتاج الاغشية الرقيقة في الاختلاف في الخصائص الناتجة.

4-1- آلية تشكل الاغشية الرقيقة.

لترسيب غشاء رقيق على سطح مسند صلب يجب أن تمر جسيمات المادة المكونة للغشاء عبر وسط ناقل متصل مباشرة مع هذا الأخير، فبمجرد وصول الجسيمات لسطح المسند جزء منها يتمسك بالسطح من خلال قوى فاندرفالس او يتفاعل معه كيميائيا. حيث تكون هذه الجسيمات إما أيونات أو جزيئات وقد تكون ذرات، أما بالنسبة للوسط الناقل فقد يكون سائل (طريقة سائل - هلام) أو غازي أو في الفراغ (طريقة الترسيب بالتبخير الكيميائي او الترسيب بالتبخير الفيزيائي). و تجدر الإشارة إلى أنه لا توجد طريقة مرجعية لترسيب الطبقات الرقيقة ، حيث يمكن استخدام طرق متنوعة تشترك جميعها في ثلاث المراحل التالية:

- ❖ إنتاج المواد المترسبة المناسبة (الأيونات، الجزيئات، الذرات...الخ).
- ❖ نقل هذه المواد إلى المسند.
- ❖ تكثيف هذه المواد المترسبة على الركيزة و غالبا ما يحدث في هذه الخطوة الأخيرة المراحل ثلاث

الآتية وهي: التنويه، الالتحام و النمو [05].

1-4-1- التنويه

لحدوث هذه المرحلة ، ينبغي لهذه الذرات المثارة ان تفقد ما فيه الكفاية من الطاقة الحركية لكي تستطيع الاستقرار على السطح ومن ثم التكاثر [06]. والتفاعل معه لتشكيل ما يعرف باسم التجمعات او الانوية المتشكلة.

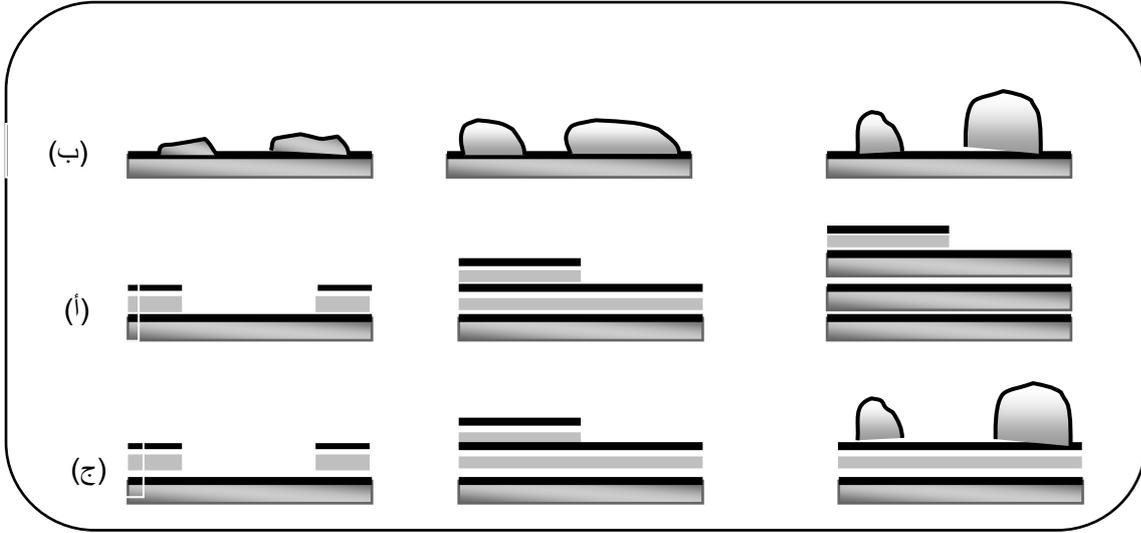
1-4-2- الالتحام

في هذه المرحلة يتم التحام الانوية ، لتشكيل الجزر [07].

1-4-3- النمو

مرحلة النمو هي مرحلة التحام مجموعات الجزر فيما بينها لتشكيل طبقة مستمرة رقيقة على سطح الشريحة و يفصل بين الجزر ما يسمى بحدود الحبيبات [07]. يتم نمو الأغشية الرقيقة من خلال ثلاثة انواع (الشكل 1-1):

1. النوع ثنائي البعد (2D): ينتج عنه سطح ناعم تمامًا بتموضع الذرات طبقة طبقة ويسمى بالنمو فرانك فاندرمارف (Frank-Van der Merwe) (الشكل 1-1(أ)).
2. النوع ثلاثي البعد (3D): (الشكل 1-1(ب)). يحدث منه عدد من العيوب خلال نتيجة النمو العمودي للذرات على سطح الركيزة و يسمى بالنمط فولمير-ويبر (Volmer- Weber).
3. النوع المختلط (2D-3D): وهو مزيج من النوعين السابقين حيث تبدأ الذرات بالتموضع طبقة فوق طبقة في بداية الترسيب ثم تبدأ بالتجمع في جزر عمودية على السطح (الشكل 1-1(ج)). ويسمى سترنسكي-كريستانوف (Stranski-Krastanov).



الشكل (ا - 01) أشكال نمو الأغشية الرقيقة [08]

1-5- العوامل المؤثرة على تكوين الأغشية الرقيقة

1-5-1- البنية البلورية للمسند

يلعب المسند دورًا هامًا في تشكيل الغشاء ويؤثر في تبلوره وتحديد بنيته البلورية، لذلك يشترط في

اختيار ما يلي:

❖ أن يكون عدم الانتظام الشبكي صغيرًا جدًا بين مادة المسند ومادة الغشاء، بمعنى أن يكون هناك

تقارب في الأبعاد.

❖ درجة حرارة التبخير يجب أن تكون أقل من نقطة الانصهار ونقطة الانتشار لمادة الركيزة.

❖ درجة حرارة الركيزة يجب أن تكون مناسبة لعملية تموضع ذرات الغشاء و توزيعها بشكل متجانس

بحيث لا تكون عالية لدرجة إعادة تبخر الغشاء بعد أن يتشكل، ولا باردة تتسبب في توزيع غير

متساو للسلك.

- ❖ بعد المسند على الهدف يجب ان يكون مناسب للحصول على السمك الذي نبحث عنه حيث أن المساند المتواجدة فوق الهدف مباشرة تمكننا من الحصول على أعلى تموضع ممكن لذرات الغشاء ومنه سمك اكبر والمساند البعيدة على الهدف تؤدي ال تقليل قيمة السمك.
- ❖ إضافة إلى أن كبر مساحة الركيزة المتموضع عليها الغشاء يسبب تباين في السمك بشكل واضح لذلك نلجأ إلى قص الركائز إلى مساحات صغيرة في محاولة للحصول على أغشية منتظمة السمك بشكل تقريبي [03].

1-5-2- طريقة التحضير

تعد طريقة تحضير الاغشية الرقيقة واحدة من اهم العوامل المؤثرة على نوعية العينة الناتجة، حيث ان صفات نفس العينة تختلف حسب الطريقة المتبعة في ترسيبها، وبذلك يجب اعتماد الطريقة المناسبة للهدف المناسب او للتطبيق المناسب

1-5-3- سرعة الترسيب

باختلاف طرق ترسيب الاغشية الرقيقة فان سرعة ترسيب هذه الاخيرة تختلف، حيث ان السرعة المنخفضة تمكن من التموضع المرتب لذرات الغشاء المرسب مما يؤدي الى تحسين نوعية الاسطح في العينة الناتجة و امكانية التحكم في سمك هذه الاخيرة

1-5-4- نوعية الطبقة العازلة

في كثير من الاحيان يكون هناك تباين كبير بين ثابت الشبكة البلوري لكل من الغشاء الرقيق و المسند، ولذلك يجب اختيار مادة تعزل الغشاء على المسند ويشترط فيها ان يكون عدم الانتظام الشبكي بينها

وبين الغشاء المرسب و بين الركيزة اقل ما يمكن للحصول على تبلور جيد لذرات الغشاء وبالتالي تحسين الخصائص الفيزيائية للعينة الناتجة

6-1- تطبيقات الأغشية الرقيقة

إن استعمالات الأغشية الرقيقة كثيرة ومتنوعة فمنها الأقراص الصلبة و أنصاف النواقل والسيراميك و الطلاء لبصري و تصنيع الخلايا الشمسية و الضوئية ، صناعة الكواشف و الوقاية من التآكل و التآكسد [09]. وغيرها من التطبيقات المهمة، فلا يخلو جهاز أو منظومة إلكترونية منها. وإن استعمال الأغشية الرقيقة لها فوائد كثيرة منها تقليل التكلفة وتقليل الحجم والوزن وتحسين المواصفات [08]. ونخص بالذكر في مجال التخزين المغناطيسي الذاكرة المغناطيسية الصلبة حيث تعتبر عملية تخزين البيانات من أهم العمليات في وقتنا الحالي، وكذلك محركات الأقراص الصلبة وهو أكبر تطبيق لهذا القطاع التكنولوجي حيث أن هوس التسابق الحالي يكمن في آلية الحصول على مواد فائقة القدرة (كبيرة السعة) على تخزين البيانات وبأحجام مادية صغيرة قدر الإمكان، ومنه أصبحت الأغشية الرقيقة المغناطيسية موضوعا لعدة أبحاث في هذا المجال [10].

7-1- الاستنتاج

الفكرة الاساسية المدروسة في هذا العمل هو دراسة تأثير طبقة سمكها 75\AA من الكروم على الخصائص البنوية للعينة $(\text{Fe}(300\text{\AA})/\text{Ag}(100\text{\AA}))$ ، ولكي يتم فهم هذا التأثير كان من الواجب ان نذكر اولاً بعض المفاهيم الاساسية المتعلقة بالأغشية الرقيقة ومنها الاشارة الى تعريف هذه الاخيرة و معرفة

الفرق بينها وبين المادة في الحالة الصلبة وكيفية ترسيبها بالإضافة الى العوامل المؤثرة على عملية تموضعها
واخيرا تطرقنا باختصار الى بعض من تطبيقاتها.

الفصل

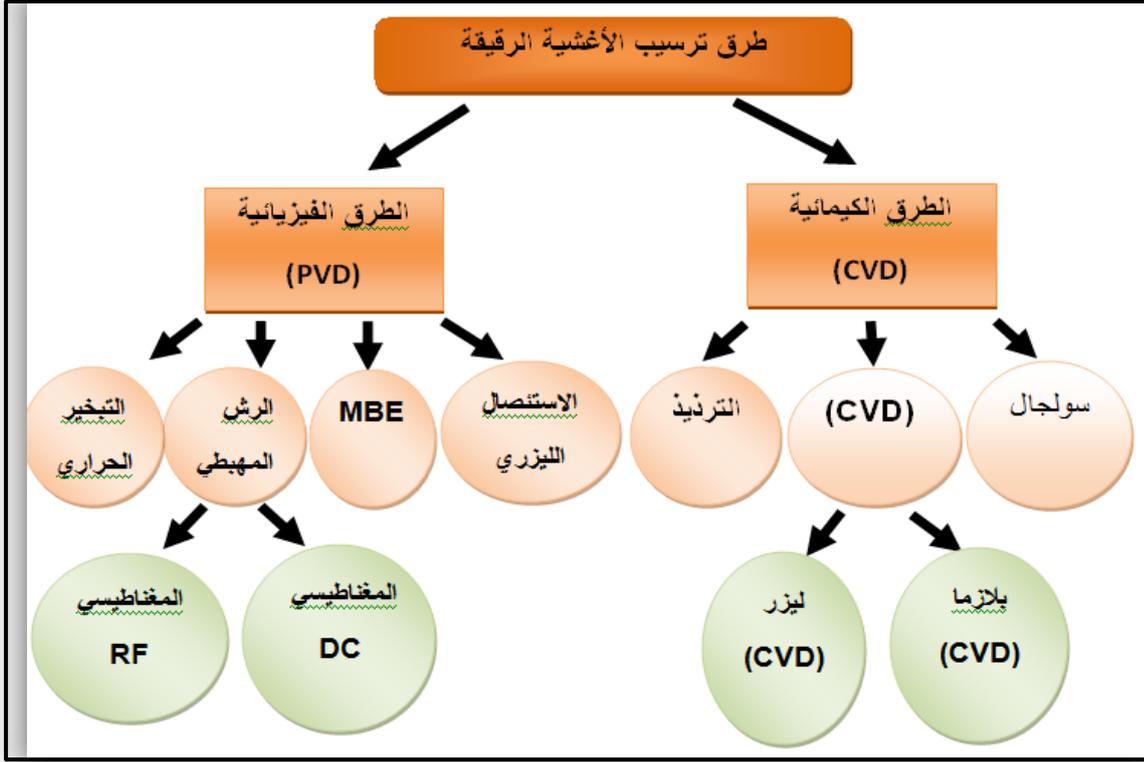
الثاني

1-1- مقدمة

إن التطبيقات الواسعة والمهمة في مجال الأغشية الرقيقة دفعت الباحثين إلى استحداث طرق مختلفة لتحضير هذه الأغشية، فمنها الطرق الكيميائية مثل الترسيب بالتبخير الكيميائي (CVD) و تقنية السائل-هلام (sol-gel)، كذلك الطرق الفيزيائية كالترسيب بالتبخير الفيزيائي (PVD)، ومنها التريذ بالأموح الراديوية (RF-pulvérisation)، و تقنية الترسيب بالتتزيد الجزئي الموجه (EJM) الذي استخدمناها في ترسيب العينات المدروسة في هذا العمل. و يعتمد استخدام طريقة دون غيرها على عوامل عدة من أهمها نوع الأغشية المستخدمة ومجال استخدامها وكلفة تحضيرها، إذ تكون بعض الطرق مناسبة لمواد معينة وغير مناسبة لمواد أخرى وبعضها تكون سهلة الاستعمال وبعضها الأخر تكون معقدة [11].

2-1- الطرق العامة لترسيب الاغشية الرقيقة

سننظر في الفقرات التالية إلى عرض موجز لمبدأ عمل بعض الطرق التقليدية المستخدمة في ترسيب الأغشية الرقيقة. ثم نستعرض بالتفصيل كيفية إعداد الطبقات رقيقة بطريقة التتزيد الجزئي الموجه. ويمثل الشكل (11-01) مخطط موجز للتقنيات المستخدمة في ترسيب الأغشية الرقيقة



الشكل II-01: مخطط موجز للتقنيات المستخدمة في ترسيب الأغشية الرقيقة [4].

II-2-1- الترسيب الكيميائي للطور البخاري (CVD)

يكمن مبدأها في التفاعل الكيميائي بين مكونات الغاز لترسب على المسند مشكلة طبقة رقيقة حيث تتحكم في هذه الطريقة عدة وسائط كالضغط، ودرجة الحرارة،.... الخ ، وهذا ما يميز تصنيفها إلى عدة أصناف فمنها ما يتم في درجة الحرارة أو ضغط مرتفعين و منها ما يتم في درجات حرارة أو ضغط منخفضين [12،13].

II-2-2- الترسيب الفيزيائي للطور البخاري (PVD)

هي عملية ترسيب بواسطة التبخير الحراري للمواد تحت الفراغ وتتميز على الطريقة السابقة كون الطبقات المترسبة تكون أقل تلوثا والذرات المتموضعة أكثر كثافة. ومن بين طرق الترسيب البخاري للطور الفيزيائي الأكثر كفاءة نجد طريقة التنفيد الجزئي الموجه، وهي الطريقة المعتمدة في عملنا هذا، والتي سنتكلم عنها بشكل موسع في الفقرات الموالية [1].

II-2-2-1- التتضيد الجزئي الموجه (EJM)

أ- تعريف التتضيد الجزئي الموجه

كلمة تتضيد الفوقي أصلها يوناني وتعني "épi"-فوق و "taxie"- النظام، اقترحت في أعوام الثلاثينات من قبل العالم الفرنسي " L. Royer " و تشير لتجاوز منتظم لنوعين من البلورات. والتتضيد الفوقي نوعان: نمو متماثل التتضيد (homo-épitaxie) في حالة كون المادة المترسبة و الركيزة متماثلتان مثل (MgO/MgO...)، و اما اذا كانتا من مادتين مختلفتين ، فإننا نتكلم عن التتضيد المغاير (hétéro-épitaxie) كما في حالة العينتين المدروستين في هذا العمل (Ag / MgO) و (Cr/MgO) [14].

ب- مبدأ التتضيد الجزئي الموجه

أول من استخدم هذه التقنية كان العالم جونتر (Günther) في أواخر الخمسينيات حيث نجح في ترسيب الأغشية الرقيقة لكل من InAs و InSb على ركيزة الزجاج ثلاثية التبلور. مبدأ الترسيب بتقنية التتضيد الجزئي بسيط جدا حيث يتم تبخير المواد المراد ترسيبها تحت الفراغ الفائق (10^{-11} torr)، إما عن طريق التسخين بتأثير جول، أو بواسطة القذف الإلكتروني، فتنتقل ذرات المادة من الضغط المرتفع نحو الضغط المنخفض أين تتواجد مادة الركيزة بحيث ينتج تدفق اتجاعي لهذه الذرات فتتحرك وفق خط مستقيم دون أن تصطدم بأي حاجز سواء أكان جدار أو ذرات المتبقية في الحجرة نتيجة الفراغ الفائق المتواجد داخل هذه الأخيرة و هذا هو الدافع الذي يجعلنا نتحدث عن الحقن (التتضيد) الجزئي أو الذري . تقنية التتضيد الجزئي تحت الفراغ تسمح بترسيب أغشية رقيقة من معظم المواد سواء أكانت أنصاف ناقلة، معادن أو حتى عوازل بواسطة التفاعل بين سطح المسند و الحزمة الجزئية أو الذرية و بسرعات منخفضة ومن رتبة طبقة واحدة لكل ثانية

(1MC/S)، مما يساعد على انتشار جيد لذرات المادة المترسبة و يسمح بتكوين أسطح ملساء ذات

نوعية جيدة خالية من التضاريس الخشنة [08،15،14].

ت- وصف هيكل تقنية التنفيد الجزيئي الموجه

يتكون هيكل تقنية التنفيد الجزيئي الموجه من الغرف المرتبة كالتالي (الشكل II-02):

✓ **الغرفة التمهيدية** تستخدم أساسا لإدخال الركائز إلى الغرفة الرئيسية والتي ينخفض الضغط فيها

حتى 10^{-8} Torr بواسطة مضخة تيربو-جزيئية (turbo moléculaire).

✓ **غرفة التخزين** تساعد على تخزين ستة عينات.

✓ **غرفة النمو** تتكون من حامل فائق الفراغ ينخفض الضغط فيها إلى 10^{-11} Torr بواسطة أنواع

مختلفة من المضخات:

✚ **المضخة الدوارة** توصل الضغط من الجوي إلى الضغط الابتدائي (الشكل II-03(أ)).

✚ **مضخة التيربو-جزيئية** تخفض الضغط من الابتدائي إلى الضغط الثانوي

(الشكل II-03(ب)).

✚ **المضخة الأيونية** التي تشغل دائما و تكون في صيغة تأهب في حالة توقف أو تعطل في

الليل، أو في نهاية الأسبوع أو العطلة لتجنب عودة الزيت من المضخة الدوارة وتجمعه في

منبع مضخة التيربو (الشكل II-03(ج)).

✚ **مضخة التبريد** وهي حلقة مبردة محيطة بغرفة النمو أين يسري النيتروجين السائل عند 77

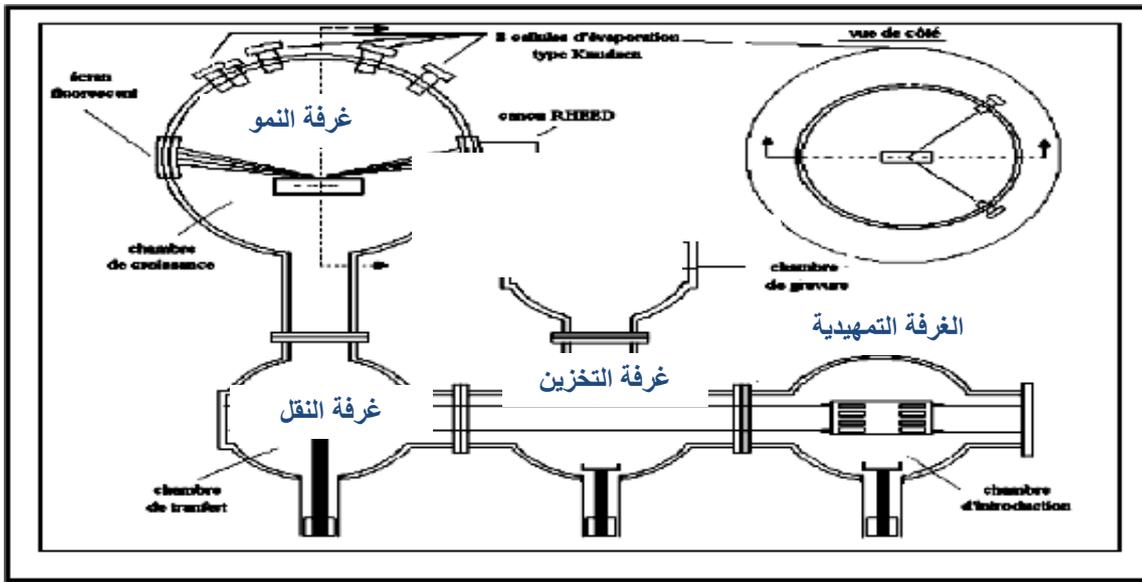
كلفن و تعد كمصيدة لامتصاص الجزيئات المتبقية على الجدران من أجل المحافظة على

10^{-10} Torr من الفراغ في غرفة النمو [15].

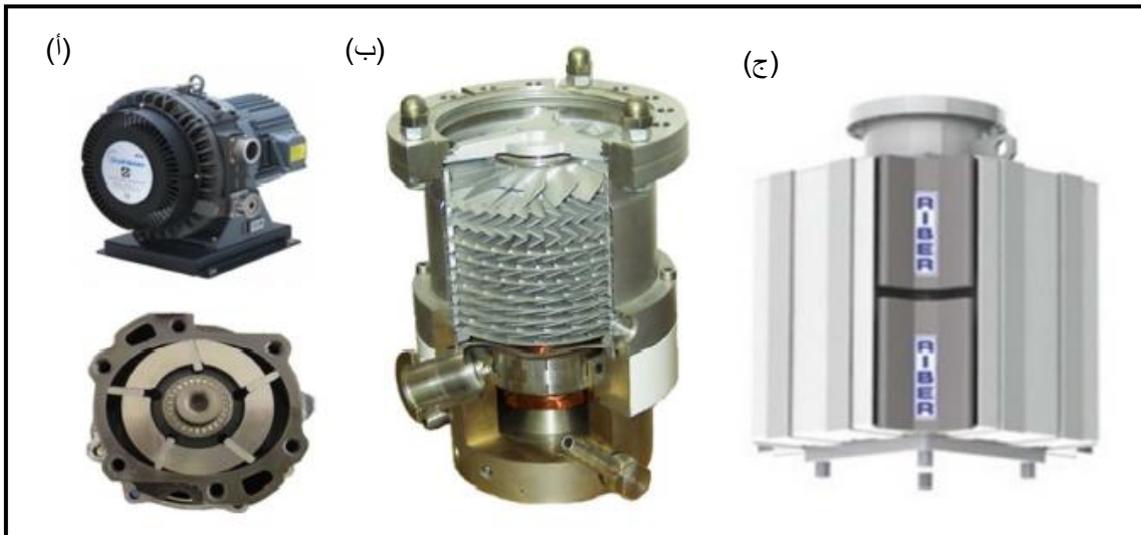
✓ غرفة النقل تستخدم كغرفة عزل بين غرفة النمو (الترسيب) و الغرفة الأخرى.

تحتوي تقنية التمزيد الجزيئي من نوعين مختلفين من مصادر التبخير وفقا لطبيعة المادة التي يتم ترسيبها: النوع الاول تستخدم القذف الإلكتروني لتبخير المعادن التي درجة انتشارها أعلى من 1200°C مثل Cr, Fe, MgO, ...و يتعلق النوع الثاني المسمى بخلايا كنودسن والذي يستخدم فقط التبخير عن طريق

تأثير جول بتبخير المواد التي درجة انتشارها أقل من 1200°C مثل Pd, Cu, Ag.



الشكل II-02: هيكل تقنية التمزيد الجزيئي الموجه [08].



الشكل II-03: مختلف المضخات المستخدمة في غرفة النمو [15].

ث- مزايا تقنية التنضيد الجزئي الموجه

تقنية التنضيد الجزئي الموجه لديها المزايا التالية :

- تستخدم فيها سرعة نمو بطيئة تتراوح عموماً بين 0.1Å/s إلى 10Å/s مما يسمح لنا من المراقبة الجيدة لسماك الطبقات، وكذلك مراقبة مركبات الخلائط و بنية اسطح الاغشية المتكونة في نفس وقت التحضير وذلك باستخدام تقنية RHEED مثلاً.
- ترسيب الاغشية في درجات حرارة منخفضة و تحت الفراغ المطلق يقلل من تواجد الشوائب في الأغشية المترسبة [17.16].

II-3- طريقة دراسة الخصائص البنيوية للأغشية الرقيقة

الخصائص البنيوية للعينات المحضرة في هذا العمل درست عن طريق تحليل منحنيات انعراج الاشعة السينية [18].

II-3-1- مبدأ عمل طريقة انعراج الاشعة السينية

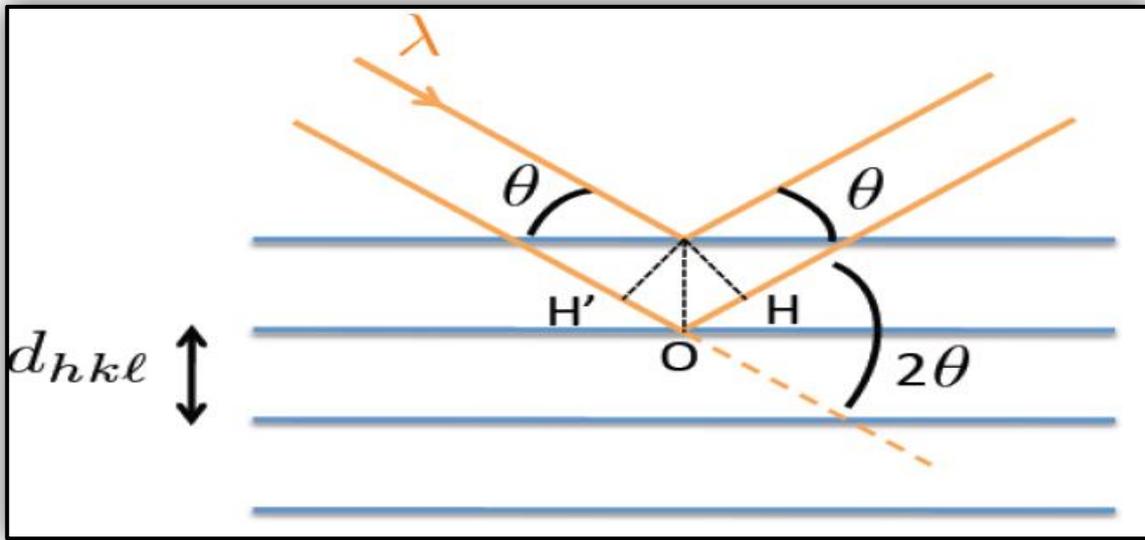
يتم انعراج الأشعة السينية عند انعكاسها على المستويات الشبكية التي تحتوي على عدد من الذرات المكونة للبلورة بحيث جزء من الأشعة ينعكس والجزء الآخر يكمل طريقه لينعكس على أسطح أخرى [4]. وقد تمكن العالم براغ من استنتاج قانونه المبني على أساس ان الفرق في المسير للأشعة الساقطة و المنعكسة مساو لطول موجة واحدة أو عدد كامل من الأطوال الموجية و وصفه بالمعادلة التالية:

$$m \lambda = 2 d_{hkl} \sin \theta \dots\dots\dots (II - 1)$$

θ : زاوية براغ λ : الطول الموجي m : عدد صحيح موجب و يمثل مرتبة الإنعراج

d_{hkl} : المسافة بين المستويين ذريين متعاقبين في التركيب البلوري (البعد البيني)

إن الشرط الأساسي لحدوث انعكاس براغ هو تحقيق المتباينة ($\lambda \leq 2d_{hkl}$). ومن خلال معادلة براغ نلاحظ وجود متغيرين هما (θ, hkl) وبالتحكم في قيمتهما يمكننا التوصل إلى تحديد قيمة (d_{hkl}) وبذلك التعرف على البنية فضلا عن تحديد العيوب الموجودة فيها في (الشكل II-04) [3]. يوجد نمطين من انعراج الأشعة السينية سنذكرهما باختصار في الفقرتين التاليتين.



الشكل II-04: مخطط يوضح مبدأ انعراج الأشعة السينية [19]

II-3-1-1- الانعراج @

في هذا النمط من المسح، الكاشف ثابت في زاوية معينة θ ، والعينة تدور حول محور عمودي بزاوية 2θ حيث يسمح طيف الانعراج X بإعطائنا معلومات حول التوزيع العشوائي للمستويات الجانبية للغشاء، ونوعية التبلور.

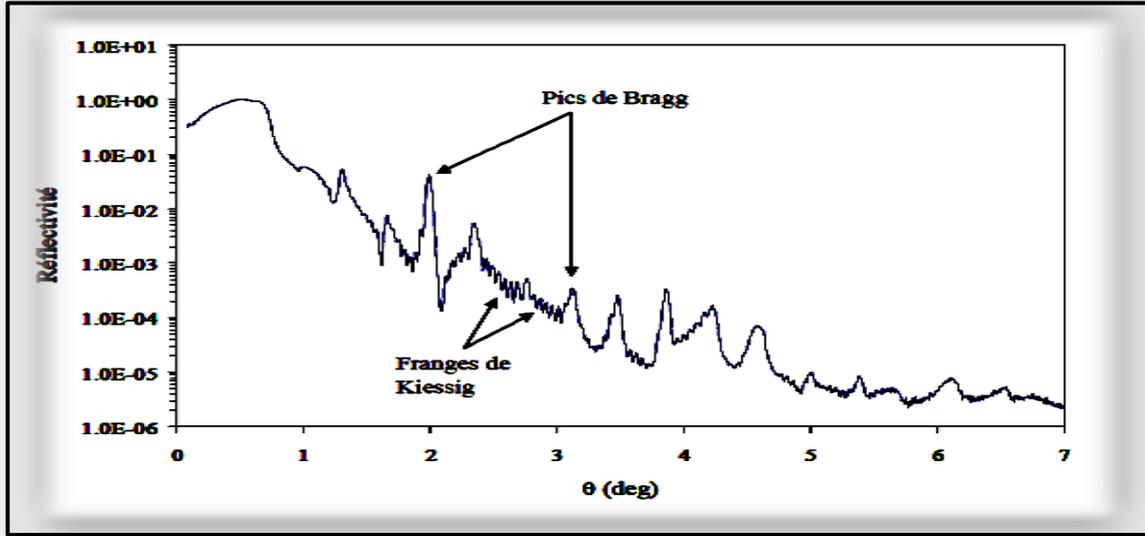
II-3-1-2- الانعراج 0-20

يعتبر هذا الأبسط و الأكثر شيوعا هندسيا، في هذا النمط، العينة تدور حول محورها العمودي بسرعة زاوية θ و الكاشف الذي يسجل شدة الانعكاس يدور على طول الزاوية بسرعة 2θ ، حيث شعاع التشتت دوما يكون عمودي على العينة، في هذا النوع من الإنعراج نستعمل نمطين يعتمدان على قيمة زاوية الانعراج وهما: انعراج الزوايا الصغيرة $10^\circ-0^\circ=2\theta$ ، و انعراج الزوايا الكبيرة $75^\circ-30^\circ=2\theta$ [20].

أ- الانعراج بالزوايا الصغيرة

يمثل الشكل II-05 الطيف المسجل في هذا النمط من الانعراج و يمكننا تحليل طيف هذا الانعراج من معرفة مدى خشونة الأسطح و الواجهات.

نلاحظ في هذا الطيف قمم براغ الناتجة من التداخل بين الأشعة X المنعكسة من الأسطح البينية وتلك المنعكسة من السطح الحر للعينة. كما يظهر لنا أيضا أهداب كيسيغ الناتجة عن تداخل الأشعة المنعكسة من سطح المسند والسطح الحر للطبقات المترسبة فوقه فكلما كان عدد الأهداب كبير كانت العينة تحتوي على عدد كبير من الطبقات مما يدل على انعدام خشونة الأسطح وجودة العينة .



الشكل II-05: منحنى انعراج الأشعة السينية بالزوايا الصغيرة [08].

ب- الانعراج بالزوايا الكبيرة

تحليل طيف هذا النمط من الانعراج تعطينا معلومات على نوع التبلور واتجاهه من خلال معرفة زاوية و ثابت ميلر لحواف براغ [21]. اين يسمح لنا بحساب البعد البيني d_{hkl} و استنتاج الثابت الشبكي الناتج على النمو a_1 وبالتالي نستطيع ايجاد عدم الانتظام الشبكي الواقع بين كل طبقتين متتاليتين Δa .

خشونة سطح الاغشية والجودة البلورية للطبقات نستطيع استنتاجهما كذلك من تحليل هذا النوع من الطيف وخاصة من حواف التشويش (Pics satellites) حيث يدل ارتفاع عددها على الجودة البنيوية العالية وانخفاض نسبة الخشونة. بالإضافة الى المعلومات السالفة الذكر التي نستطيع التوصل اليها يمكننا استنباط بعض الخصائص الميكانيكية الهامة مثل الحجم الحبيبي D ونسبة التشوه ϵ . جميع الخصائص المذكورة في هذه الفقرة سنتطرق باختصار الى كيفية حسابها في الفقرات الموالية .

ب-1- البعد البيني وثابت الشبكة

نستطيع حساب البعد البيني d_{hkl} للأغشية الرقيقة المكونة للعينة بمعرفة زاوية انعراج براغ لكل مادة و مقارنة قيمتها مع المعلومات النظرية المعطاة في الملف A.S.T.M وبتطبيق قانون براغ المذكور في المعادلة (I-II) وبالتالي نستطيع حساب البعد الشبكي a_{hkl} من العلاقة (II-2). التي تربط بين البعد البيني وزاوية الانعراج. التغير في قيمة البعد الشبكي هو دليل على وجود ضغط او تشوه ناتج من عملية النمو للطبقات بعضها فوق بعض او من تأثير المسند على الطبقات المترسبة فوقه.

$$a = \lambda^2 (h^2 + k^2 + l^2) / 4 \sin^2 \theta \dots\dots\dots (II - 2)$$

ب-2- عدم الانتظام الشبكي

ينتج عدم الانتظام الشبكي من النمو بنوعيه المتماثل او المتغاير التتضيد ويرمز له بالرمز $\Delta a/a$ وهو يؤثر على نوعية الترسيب و الاغشية الناتجة فاذا كانت قيمته كبيرة فانه يؤدي الى تشوه في العينة الناتجة. وفي عملنا هذا استخدمنا عبارة فرانك وفاندرماوف (Frank et Van der Merwe) التي تصف عدم الانتظام الشبكي بين الطبقة المكعبة B (ثابت شبكتها a_B) و الطبقة A (ثابتها a_A) المترسبة فوقها سواء كانت الطبقة B عبارة على المسند او طبقة اخرى عادية. تعطى العبارة بالشكل التالي:

$$\Delta a/a = (a_A - a_B) / a_B \dots\dots\dots (II - 3)$$

الشبكات البلورية كالتغير في قيمة ثابت الشبكة وهو الاجهاد الذي حسبناه بالنسبة لعيناتنا وذلك بتطبيق العلاقة التالية [25,24,23]:

$$\varepsilon = \beta \cos \theta / 4 \dots\dots\dots (II - 5)$$

θ زاوية الانعراج

β عرض نصف الارتفاع المقاسة بالراديان

II-4-1- كيفية تحضير العينات

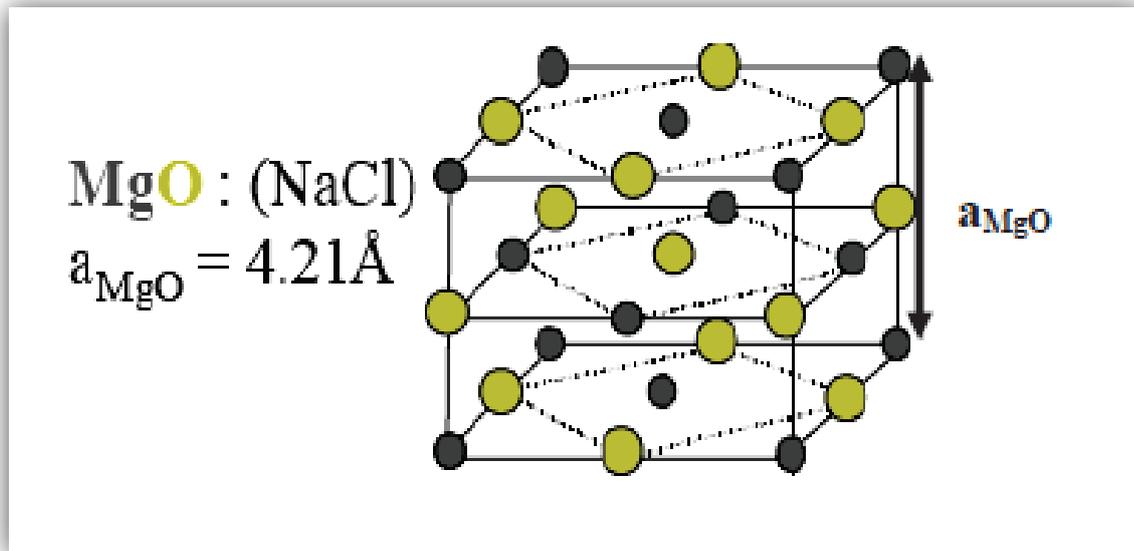
حضرت العينات المدروسة في هذا العمل من طرف البروفيسور الدكتور شمام فيصل في مخبر فيزياء الجسم الصلب و المغناطيسية (VSM) في جامعة لوفن (Leuven) البلجيكية.

II-4-1- تحضير المسند MgO(001)

المسند عبارة على أوكسيد المغنيزيوم MgO الصناعي احادي التبلور بأبعاد $15 \times 15 \text{ mm}^2$ و مصقول على المستوى (001).

وهو بلورة مكعبة من النوع NaCl كما هو مبين في الشكل (II-06). ثابت الشبكة الناتجة هو $a_{\text{Mgo}}=4,213\text{\AA}$. ولقد اخترنا هذا المسند لسهولة تحضيره وتنظيفه وكذلك صغر قيمة عدم التباين الشبكي بينه وبين كل من الفضة و الكروم المترسبة عليه [28,27,26].

تم تنظيف المسند بواسطة بروبانول-2 و جفف بغاز الازوت قبل إدخاله في الغرفة التمهيدية لتقنية التنضيد الجزئي الموجه. ثم خضع هذا الاخير لمعالجة حرارية لمدة 20 دقيقة عند درجة حرارة 600°C تحت فراغ 10^{-7}torr لغرض إزالة الشوائب على السطح.



الشكل II-06: مخطط توضيحي لبلورة اكسيد المغنيزيوم $\text{MgO}(001)$ [29].

II-4-2- تحضير الطبقات

جميع الطبقات المترسبة كالحديد (Fe)، الفضة (Ag) والكروم (Cr) تم تحضيرها تحت الفراغ (10^{-10}Torr) و عند درجة حرارة الغرفة.

تم تبخير كل من الحديد و الكروم بالقذف الإلكتروني بتطبيق فرق كمون 10.6 كيلو فولط و تمرير تيار كهربائي شدته 1.7 امبير. سرعة الترسيب كانت 0.3 أنغستروم لكل ثانية. وفي المقابل تم تبخير الهدف المصنوع من مادة الفضة باستخدام مفعول جول بسرعة 1 أنغستروم لكل ثانية .

✚ سمك الطبقات المحضرة ثابت عند 300Å للحديد، 100Å للفضة و 75Å للكروم.

✚ استخدمنا غشاء رقيق بسلك 20Å من مادة الفضة لحماية العينتين من التأكسد [10].

✚ تحصلنا اخيرا على عينتين تمثل طبقة الكروم الفرق الوحيد بينهما، و هو السبب الجوهري الذي ادى

الى تباين في الخصائص البنيوية و الذي نسعى الى دراسته ويمثل الشكل II-07 تخطيط توضيحي

للسلك النهائي للعينتين اللتان لهما الصيغ التالي:

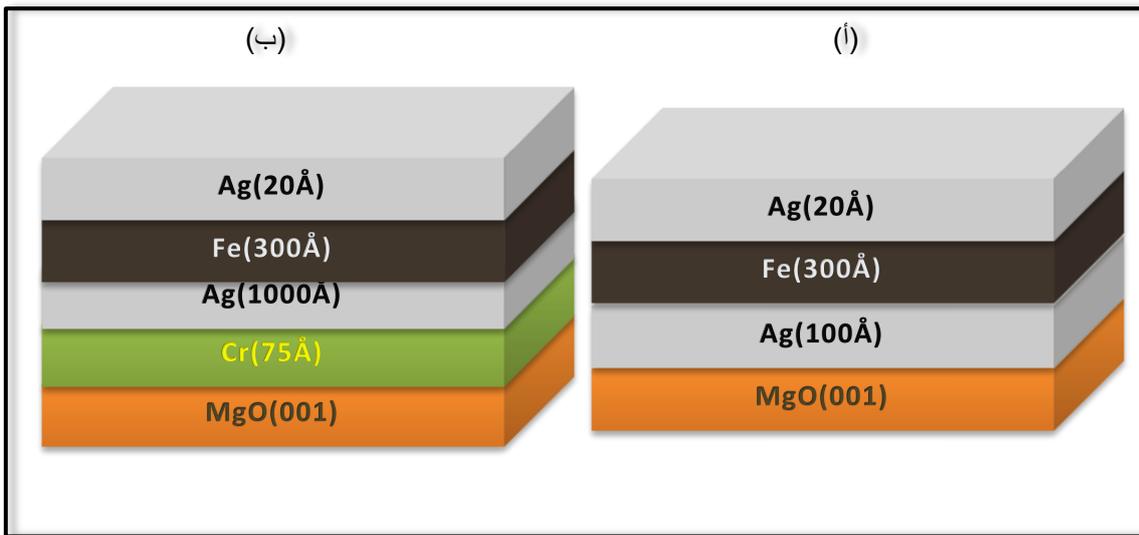
العينة 1: $Ag (20 \text{ \AA}) / Fe (300 \text{ \AA}) / Ag (100 \text{ \AA}) // MgO (001)$

العينة 2: $Ag (20 \text{ \AA}) / Fe (300 \text{ \AA}) / Ag (100 \text{ \AA}) / Cr (75 \text{ \AA}) // MgO (001)$

✚ العلاقة بين المحاور البلورية للأغشية المترسبة والموضحة في العلاقة (II-06) اكدت وجود دوران

لكل من طبقتي الحديد والكروم بزاوية 45° بالنسبة لطبقتي الفضة والمسند [26].

$\langle 110 \rangle Fe (001) // \langle 100 \rangle Ag (001) // \langle 110 \rangle Cr (001) // \langle 100 \rangle MgO (001) \dots (II - 6)$



الشكل II-07: رسم تخطيطي لترتيب طبقات العينة (أ) الاولى و (ب) الثانية

II-5- الاستنتاج

سمحت لنا تقنية التتزيد الجزئي الموجه (MBE) بترسيب جميع الطبقات الرقيقة المغناطيسية كالحديد والكروم وغير المغناطيسية كالفضة في درجة حرارة الغرفة وتحت الفراغ فوق مسند احادي التبلور لأكسيد المغنيزيوم، وتحضير نوعين من العينات الفرق الوحيد بينهما هو ان في العينة الثانية تم ادخال الطبقة الرقيقة من الكروم مباشرة فوق المسند وبالتالي سوف نتحصل على تباين في كل من الجودة البلورية و خشونة الاسطح وقيمة التشوه. وهذا ما سنراه في الفصل الثالث بالتفصيل.

الفصل

الثالث

III-1-1- مقدمة

سيتم تخصيص هذا الفصل لتقديم النتائج التجريبية المتحصل عليها بتقنية انعراج الأشعة السينية ومحاولة مناقشتها لمعرفة كيفية تأثير الطبقة الرقيقة للكروم Cr على الخصائص البنيوية للأغشية الرقيقة (Fe(300Å)/Ag(100Å)) , ولتحقيق ذلك سنستخدم أسلوب المقارنة بين العينتين التاليتين:

العينة 1: $Ag (20 \text{ \AA}) / Fe (300 \text{ \AA}) / Ag (100 \text{ \AA}) // MgO (001)$

العينة 2: $Ag (20 \text{ \AA}) / Fe (300 \text{ \AA}) / Ag (100 \text{ \AA}) / Cr (75 \text{ \AA}) // MgO (001)$

III-2- تحليل طيف انماط انعراج الأشعة السينية

III-2-1- النمط ω

منحنيات المسح الاهتزازي ω للعينتين مقدمة في الشكل III-01، اين نلاحظ وجود قمة واحدة بارزة في كلتا العينتين تختلف فقط في قيمة الشدة, مما يدل على تباين في نوعية الطبقات وجودتها اين تكون نسبة خشونة الأسطح عالية في العينة الاولى مما ادى الى امتصاص الأشعة المسلطة و تخفيض شدتها ولكن بعد اضافة طبقة الكروم فان قيمة خشونة الاسطح تلاثت وتحسنت نوعيه الطبقات وترتيبها الفسيفسائي مما ادى الى ارتفاع شدة الأشعة المنعرجة وهذا ما يبدو واضحا في طيف هذه الاخيرة بالنسبة للعينة 2.

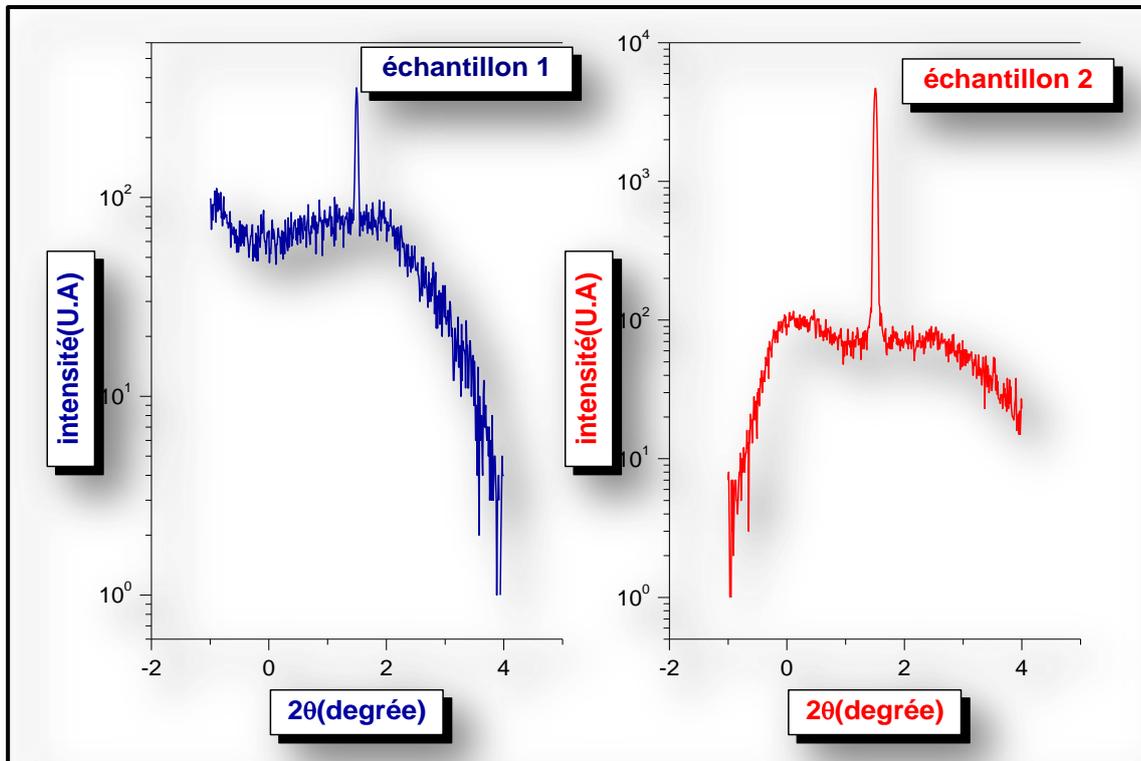
من خلال هذا النوع من طيف الانعراج نستطيع استنتاج نسبة الشدة بين قاعدة الحافة وقمتها والتي

نرمز لها بالرمز $\frac{I_b}{I_p}$ حيث I_b شدة الانعراج عند القاعدة و I_p القيمة الأعظمية للشدة او الشدة عند القمة

ولقد وجدنا القيمة بالنسبة للعينة 1 هي $(\frac{I_b}{I_p} = 0,61)$ وهي أكبر من القيمة في العينة 2 والتي وجدناها

$(\frac{I_b}{I_p} = 0,51)$ مما يؤكد ان العينة الاولى ذات خشونة .أسطح اكثر منها في العينة الثانية اي ان اضافة

75Å من Cr على العينة 1 قام بتحسين خصائص أسطح العينة وانقاص نسبة الخشونة فيها.



الشكل III-01: طيف انعراج الأشعة السينية للنمط 01

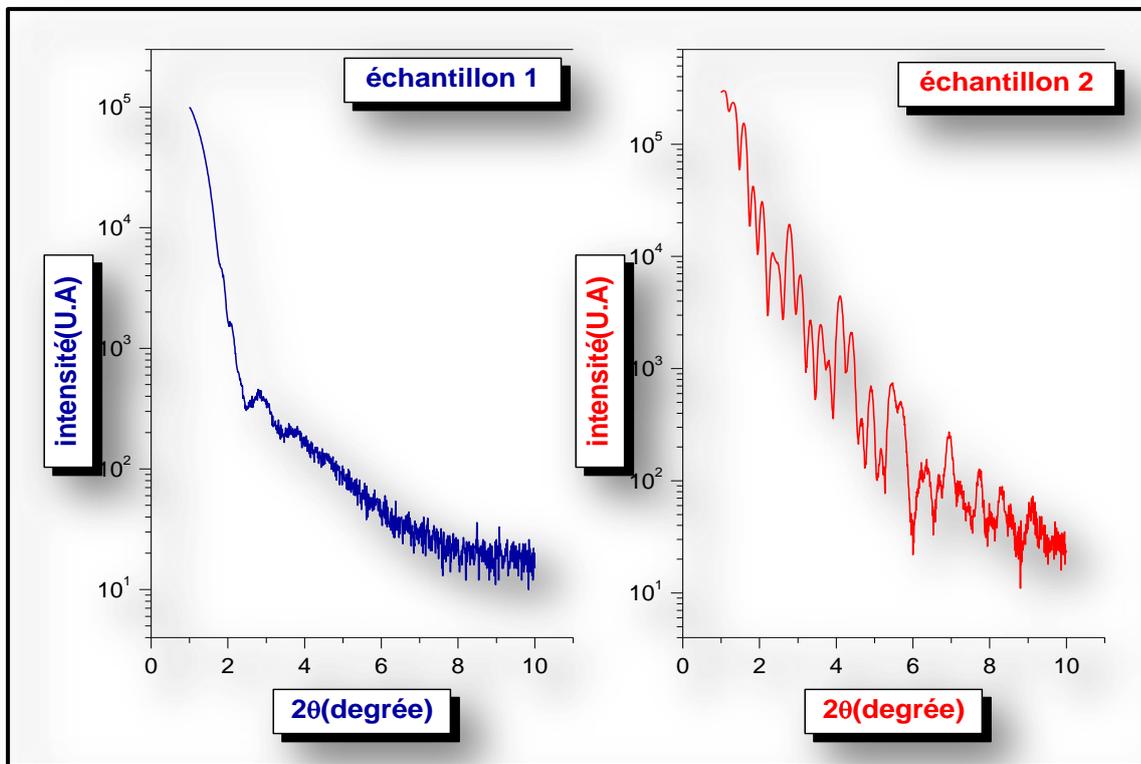
III-2-2- النمط 2θ-θ

III-2-2-1- الانعراج بالزوايا الصغيرة (θ=0°-10°)

طيف الانعراج للأشعة السينية للزوايا الصغيرة للعينتين مبينة في الشكل (III-02) حيث نلاحظ ان شدة

اهداب كيسينج (Franges Kiessig) مرتفعة و عددها كبير في طيف الانعراج للعينة 2 مما يدل على أن

هذه الاخيرة ذات بنية طبقية (صفيحيه) و تتسم بأسطح ملساء وبالتالي عينة ذات نوعية جيدة عكس الطيف الناتج على الانعراج من العينة 1 والتي توضح انها ذات خشونة اسطح عالية وواجهات رديئة النوعية ادت الى امتصاص شدة الاشعة وحالت دون تداخلها وبالتالي تناقص عدد الاهداب او انعدامها مما يدل على وجود عيوب خلال النمو و عدم تجانس بين الطبقات وهذا ما يؤكد النتيجة المتحصل عليها من انعراج الاشعة على العينتين بالنمط (0).



الشكل III-02: طيف انعراج الأشعة السنية للزوايا الصغيرة لكل عينة

III-2-2-2- الانعراج بالزوايا الكبيرة ($\theta=30^{\circ}-75^{\circ}$)

الشكل (III-03) يبين أطياف انعراج الأشعة السنية عند الزوايا الكبيرة للعينتين 1 و 2 و نلاحظ في هذه المخططات ظهور قمم براغ للشبكات البلورية ($Fe(200)$, $Ag(200)$, $MgO(200)$), و $Cr(200)$ مما يدل على نمو احادي التبلور للعينتين وفق الاتجاه (200). الفرق الموجود بين الطيفين هو قيمة شدة حافة براغ

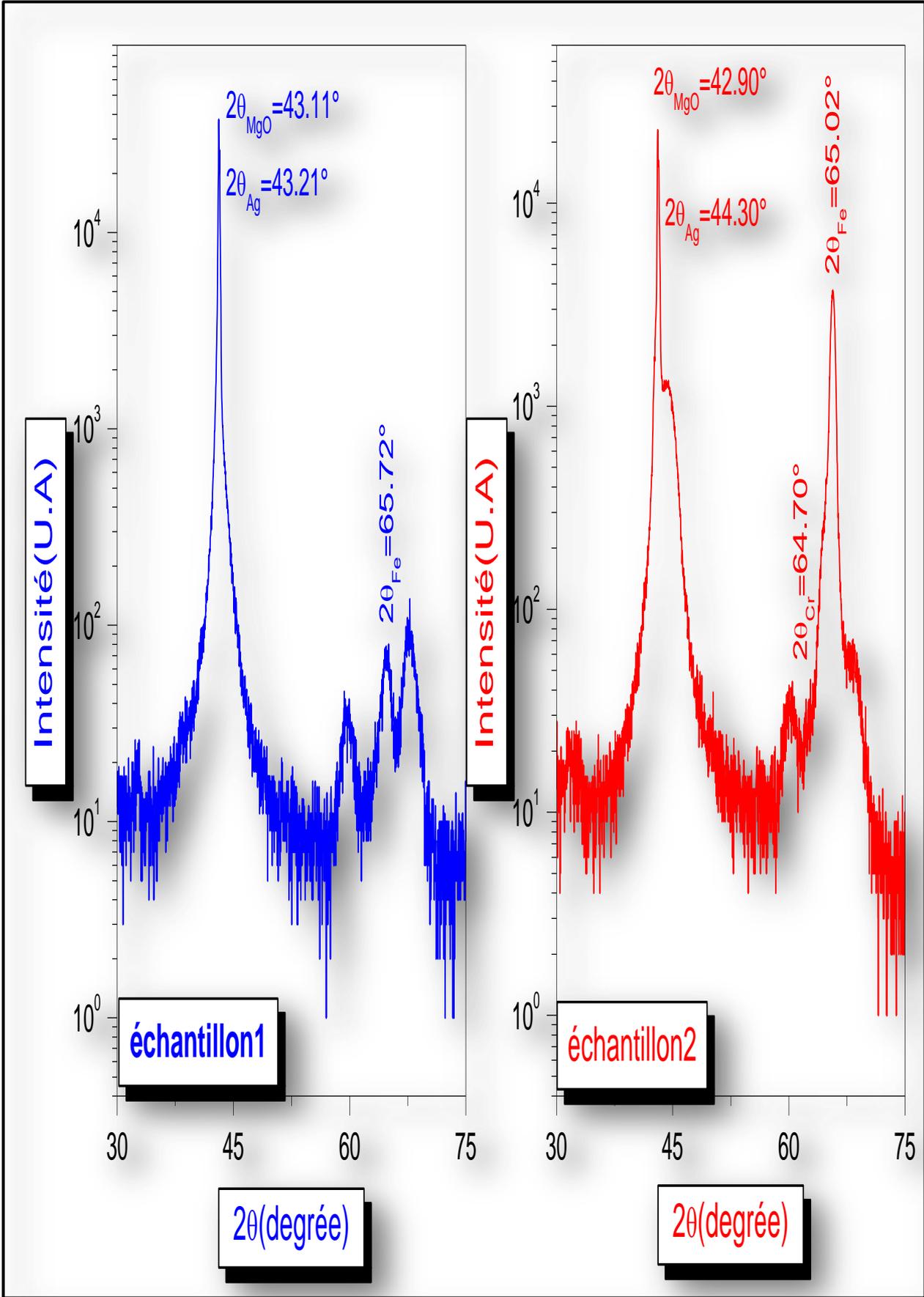
اين تكون في العينة الاولى اقل منها في العينة الثانية مما يؤكد على رداءة نوعية الاسطح في العينة الاولى و جودتها العالية في العينة الثانية. و يظهر لنا كذلك من خلال الطيفين ان ترتيب قيمة شدة حافة براغ لكل طبقة هو نفسه مثل ترتيب القيم التجريبية المستنبط من المعطيات المقدمة في ملف ASTM و المدون في العلاقة التالية [30] :

$$I_{MgO} \rangle I_{Ag} \rangle I_{Cr} \rangle I_{Fe} \dots\dots\dots (III - 1)$$

يبدو جليا ايضا ان شدة حافة براغ لطبقة الحديد في العينة الثانية اكثر انحدارا و نعومة و اقل عرضا من حافة براغ للحديد الموجود في العينة الاولى مما يؤكد على سلاسة نمو هذه الطبقة وانعدامها من الشوائب و كبر حجم الحبيبات فيها بعكس الطبقات المترسبة في العينة الاولى والتي تحتوي على خشونة كبيرة في اسطحها زادت من شدة امتصاص الاشعة المسلطة.

نلاحظ كذلك في الطيف الخاص بالعينة 1 انعدام ظهور حواف التشويش مما يؤكد النسبة الكبيرة من العيوب النقطية الناتجة من عدم الانتظام الشبكي و صغر حجم الحبيبات, والذي يدل على النوعية الرديئة لأسطح الطبقات عكس العدد الكبير من حواف التشويش البارزة في الطيف المتعلق بالعينة 2 مما يعزز الجودة البلورية الجيدة لهذه الاخيرة.

استطعنا ايضا من خلال الشكل III-03 وباستخدام Origin8 ان نستخرج قيم مواقع حواف براغ التجريبية للشبكات البلورية Fe(200), Ag(200), MgO(200), Cr(200) والتي بدورها مكنتنا من حساب البعد البيني d وذلك بالاستعانة بالعلاقة (II-1) المذكورة في الفصل الثاني. وضعنا النتائج في الجدول III-01 .



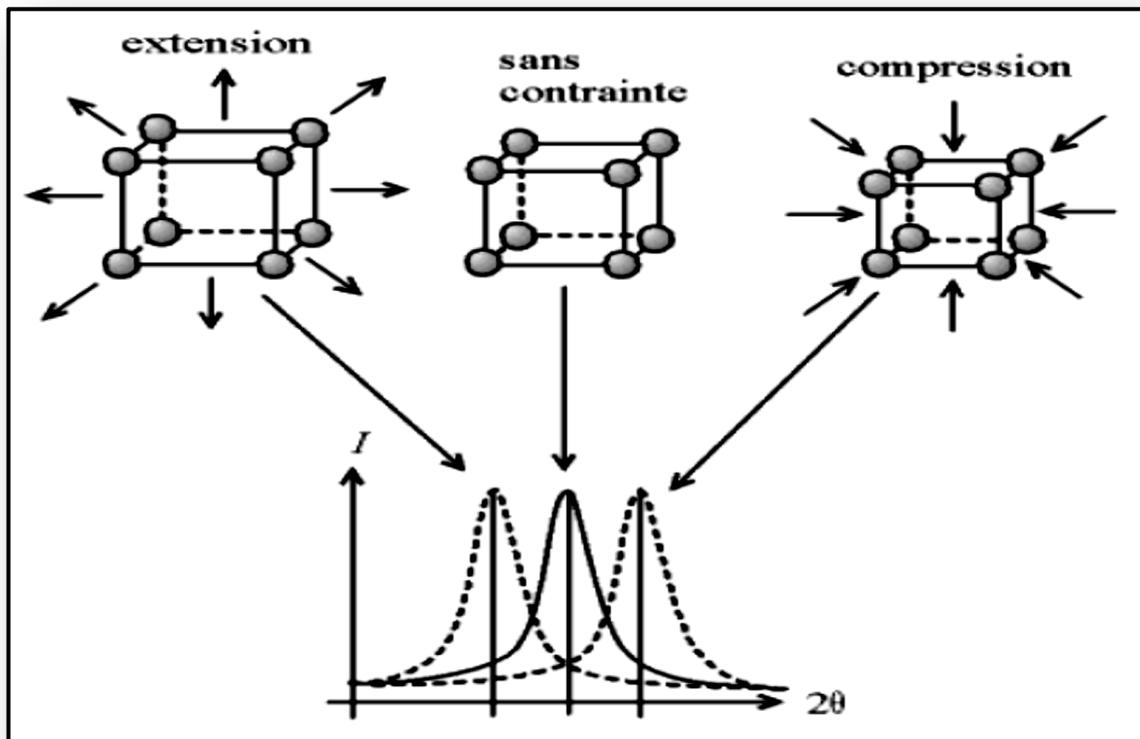
الشكل III-03: طيف انعراج الأشعة السينية للزوايا الكبيرة

d_{MgO} (Å)	$2\theta_{MgO}$ (°)	d_{Ag} (Å)	$2\theta_{Ag}$ (°)	d_{Fe} (Å)	$2\theta_{Fe}$ (°)	d_{Cr} (Å)	$2\theta_{Cr}$ (°)	
2,0966	43.11	2,0919	43.21	1,4196	65. 72	/	/	العينة 1
2,1064	42.90	2,0430	44.30	1,4332	65. 02	1.4395	64.70	العينة 2
القيم النظرية								
2,0988	42.855	2,0499	44 .298	1,4331	65 .019	1,4552	64,65	

الجدول III-01 قيم مواضع حواف براغ و البعد البيني للشبكات البلورية , Fe(200), Cr(200) ,
Ag(200) و MgO(200) على الترتيب

يتبين لنا جليا بالنسبة للعينة 1 و من خلال القيم المدونة في الجدول السابق ان مواقع حواف براغ التجريبية للشبكات البلورية Fe(200), MgO(200) ، منزاحة بشكل كبير الى الجهة اليمنى من المنحنى مما جعلها اكبر من القيم النظرية المبينة في نفس الجدول وهذا ان دل على شيء فإنما يدل على نشوء تشوه من نوع الانضغاط لهتين الطبقتين. وبما ان حافة براغ لطبقة الفضة (200)Ag انزاحت الى الجهة اليسرى، فإننا نستنتج ان الانضغاط الموجود في طبقة المسند MgO سببه اتساع للشبكة البلورية لطبقة الفضة (الشكل III-04) [31]، نتج عنه تشوه في البنية الاساسية لطبقات هذه العينة والذي امتد الى غاية طبقة الحديد و من الممكن نتج عنه تداخل كبير للذرات السطحية بين الطبقات ، وهذا ما تسبب في رفع قيمة عدم الانتظام الشبكي بين الطبقات و زيادة خشونة اسطح العينة وعليه رداءة كبيرة في هذه الاخيرة. لكن حقن 75Å من الكروم ادى الى استرخاء الطبقات ونعومتها وخلصها من التشوه وادى الى نمو ثنائي البعد او طبقة فوق طبقة لأسطح العينة. فتسليط اشعة السينية على هذه العينة وجدنا المواضع التجريبية لحواف براغ لكل

الشبكات البلورية المكونة للعينات 2 لها بالتقريب نفس قيمتها الحقيقية مما يشير الى ان الطبقة البينية للكروم حسنت من طبيعة الاسطح و نوعية النمو.



الشكل III-04: تأثير التشوه خلال نمو الطبقات على مواقع حافة براغ في طيف الاشعة السينية

III-2-2-2-1- تأثير طبقة الكروم على ثابت الشبكة

ايجاد زاوية انعراج لأي شبكة بلورية يسمح لنا بحساب الثابت الشبكي وذلك بتطبيق العلاقة (II-2) وهذا ما قمنا به لكلتا العينتين، حيث وجدنا مواقع حافة براغ لكل من $MgO(200)$, $Ag(200)$, $Cr(200)$ $Fe(200)$ كما هو موضح في الجدول III-02 حيث يبين وجود تشوه اثناء نمو العينة I من نوع الانضغاطي تلخص في تقلص قيمة الثابت الشبكي لكل من طبقتي MgO , Fe بالمقارنة مع القيم النظرية لهاتين البلورتين. بالنسبة لطبقة الفضة فان الاستنتاج المستنتج من انحراف حافة براغ الى القيم اليسرى والذي شرح في الفقرة السابقة تأكدنا منه بعد حساب ثابت البلوري لهذه الطبقة والذي كان اكبر من القيمة التجريبية

مما يدل على تمدد في شبكة الفضة خلال النمو و كل ما سبق يبرهن الحالة السيئة و عدم الانتظام في طبقات هذه العينة.

في العينة الثانية نلاحظ من الجدول، ان ادماج طبقة الكروم ادى الى اثناء جودة الأسطح وطبقات العينة و تبين ذلك في ايجاد قيم ثابت الشبكة مطابقة للقيم التجريبية. على سبيل المثال توصلنا الى ايجاد قيمة لثابت شبكة الحديد مساوية للقيمة النظرية المعروفة وهي $2,866\text{\AA}$ ونفس الملاحظة تنطبق على كل من طبقة الفضة و المسند اللذان حافظا على قيمة ثابت شبكتها مما يؤكد خلو هذه العينة من التشوهات اثناء النمو ويفسر التأثير الجيد و الواضح للطبقة الرقيقة للكروم على الخصائص البنيوية لجميع اغشية العينة ((Fe(300Å)/Ag(100Å)).

$a_{MgO(200)} (\text{\AA})$	$a_{Ag(200)} (\text{\AA})$	$a_{Fe(200)} (\text{\AA})$	$a_{Cr(200)} (\text{\AA})$	
4,193	4,184	2,839	/	العينة 1
4,213	4,085	2,866	2,885	العينة 2
4,213	4,085	2,866	2,885	القيم النظرية [32]

الجدول III-02 المقارنة بين القيم التجريبية و النظرية لثابت الشبكة لكل من، Fe(200), Cr(200) و Ag(200) و MgO(200) على الترتيب

III-2-2-2-2- تأثير طبقة الكروم على عدم الانتظام الشبكي

لحساب عدم الانتظام الشبكي بين مختلف الطبقات المترسبة في كلتا العينتين استخدامنا العلاقة (III-3)، و لقد لخصنا النتائج التجريبية والقيم النظرية في الجدول (III-03). حيث نلاحظ ان قيمة عدم الانتظام الشبكي بين طبقة الكروم و المسند الموجودة في العينة 2 (-0.31) اقل من قيمة عدم الانتظام

الشبكي الموجودة بين طبقة الفضة و المسند في العينة 1 (-0.0014) وهذا ما أدى الى تقليص قيمة الإجهاد الموجود بين الطبقات في العينة 1 وأدى الى انتاج عينة ذات اسطح جيدة البنية ذات قيم تجريبية مطابقة للقيم النظرية مما يؤكد أيضًا ان طبقة الكروم لها تأثير ايجابي على تحسين البنية البلورية للأغشية الرقيقة (Fe(300Å)/Ag(100Å)).

$\frac{Fe}{Ag}$	$\frac{Ag}{Cr}$	$\frac{Ag}{Mgo}$	$\frac{Cr}{Mgo}$	$\Delta a/a$ (%)
-0,32	/	-0,0014	/	العينة 1
-0,30	0,42	/	-0,31	العينة 2
-0.30	0.40	-0.03	-0.31	القيم النظرية

الجدول III-03: القيم التجريبية والنظرية لعدم الانتظام الشبكي بين الطبقات البلورية

III-2-2-2-3- تأثير طبقة الكروم على حجم الحبيبات و التشوهات

للتأكد من النتائج السابقة وجب علينا حساب كل من حجم الحبيبات و التشوه لطبقة الحديد في كلتا العينتين. فكما هو موضح في الجدول (III-04)، الحجم الحبيبي في العينة الثانية أكبر من العينة الأولى وهذا يبين أن اضافة الكروم قلل من التصدعات الموجودة بين الطبقات و خفض نسبة التداخل بين الذرات مما حسن التركيب الهيكلي لغشاء الحديد. وهذا ما يثبتته نقص قيمة التشوه في هذه العينة بالنسبة للعينة الاولى.

التشوه ε (%)	الحجم الحبيبي (nm)D	
0,17	6.3	العينة 1
0,05	9.9	العينة 2

الجدول III-04 : الحجم الحبيبي D و التشوه ε لطبقة الحديد في كل عينة

III-3- الاستنتاج

لقد قمنا في هذا الفصل من تحليل النتائج المتحصل عليها. ولقد استنتجنا ان العينة المكونة من طبقة الكروم اي العينة 2 لها خصائص بنيوية جيدة ، بحيث تطابقت القيم التجريبية و النظرية لكل من الثابت الشبكي و عدم الانتظام الشبكي واكتشفنا ان طبقة الحديد تحتوي على حبيبات حجمها اكبر و تشوه يكاد ينعدم. مما يعزز ان طبقة الكروم لها تأثير جد رائع على الخصائص البنيوية للطبقات.

الخاتمة

العامّة

الخاتمة العامة

درسنا في هذا الموضوع تأثير غشاء رقيق من مادة الكروم على الخصائص البنيوية العينة Fe/Ag المترسبة فوق ركيزة أحادية التبلور MgO(001) بواسطة تقنية التنضيد الجزئي الموجه عند درجة حرارة الغرفة. سمك كل الطبقات المكونة لهذه العينة ثابت عند القيم التالية: 300Å للحديد و 100 Å للفضة و 75 للكروم. أضفنا 20Å من مادة الفضة لتغطية العينات لحمايتها من الأكسدة ولتحقيق الهدف المذكور أعلاه حضرنا عينتين الأولى دون إدخال مادة الكروم والثانية تحتوي على طبقة الكروم مترسبة مباشرة فوق المسند، وللتمييز بين العينتين استخدمنا الترميز التالي:

العينة 1: $Ag (20 \text{ \AA}) / Fe (300 \text{ \AA}) / Ag (100 \text{ \AA}) // MgO (001)$

العينة 2: $Ag (20 \text{ \AA}) / Fe (300 \text{ \AA}) / Ag (100 \text{ \AA}) / Cr (75 \text{ \AA}) // MgO (001)$

الخصائص البنيوية لهتين العينتين استنتجت من تحليل طيف الأشعة السينية المنعرجة عند الزوايا الكبيرة ($30^\circ-75^\circ$) والزوايا الصغيرة ($0^\circ-10^\circ$) حيث توصلنا إلى الاستنتاجات التالية:

✓ ابتداء من انعراج الزوايا الصغيرة توصلنا إلى أن العينة الثانية ذات جودة عالية بالنسبة للعينة الأولى

حيث يحتوي طيف العينة 2 على عدد كبير من حواف كيسيغ وبشدة عالية بالنسبة للعينة 1 التي

تكاد تنعدم فيها هذه الحواف مما يدل على أن العينة 2 ذات بنية بلورية طبقية تمتاز بأسطح ملساء.

✓ ابتداء من انعراج الزوايا الكبيرة، تبين لنا أن العينتين ذات تبلور أحادي الاتجاه (200)، والذي يشير

إليه هو ظهور حافة براغ ذات الاتجاه (200) لجميع الشبكات البلورية المكونة لطبقات العينتين

الاختلاف بين طيفي العينتين كان في مواضع هذه الحواف، فبينما انزاحت مواقع هذه الأخيرة بالنسبة

للعينة 1 مما يدل على وجود تشوهات أثناء نموها، حافظت كل مادة مكونة للعينة 2

على زاوية انعراجها وثابت شبكتها الحقيقي. مما يشير لنا أن العينة الثانية ذات أسطح ملساء وبنية منتظمة خالية من التشوهات ، بالمقارنة مع قيمة الاجهاد الكبير الموجود في العينة الاولى.

✓ وأخيراً نستنتج أن سمك 75\AA من الكروم أدى إلى تحسين الخصائص البنيوية للأغشية الرقيقة $\text{Fe}(300\text{\AA})/\text{Ag}(100\text{\AA})$ المترسبة بواسطة التنضيد الجزيئي الموجه على مسند أحادي التبلور $\text{MgO}(001)$.

قائمة

المراجع

قائمة المراجع

[1] بلحاج حسيبة ،تأثير التركيب الكيميائي للمساند على التفاعل البيني بين طبقات الرقيقة من التيتان ومساند الفولاذية ، مذكرة ماستر أكاديمي ، جامعة قاصدي مرباح ورقلة كلية الرياضيات وعلوم المادة ، (2016).

[2] عبد المجيد عيادة إبراهيم ،دراسة تأثير التلدين والتشويب على بعض الخواص البصرية لأغشية كبريتيد الخارصين الرقيقة ، Kirkuk University Journal – ScientificStudies، 8 (2013).

[3] ردينه صديق عبد الستار الدليمي ، دراسة الخصائص التركيبية والبصرية للأغشية $Ni_{(1-x)}Zn_xO$ المحضرة بطريقة التحلل الكيميائي الحراري ،مذكرة الماجستير في العلوم الفيزياء ، جامعة دياليا لعراق كلية العلوم ، (2013).

[4] سماحي إيمان، تأثير المعالجة الحرارية على طبقات رقيقة من TiO_2 المرسبة على مساند من الزجاج، مذكرة ماستر أكاديمي ، جامعة قاصدي مرباح ورقلة كلية الرياضيات وعلوم المادة ، (2014) .

[5] I. Guesmi, Dépôt de couches minces de cuivre sur substrats polymère de formes complexes par pulvérisation cathodique magnétron avec ionisation de la vapeur, thèse de doctorat ,Université Paris Sud – XI, (2012).

[6] Hafdallah Abdelkader, Etude du dopage des couches Minces de ZnO Elaborées par spray ultrasonique, Mémoire de Magister , Université Mentouri – Constantine Faculté des Sciences Exactes ,(2007).

- [7] A. RAHAL, "Elaboration des verres conducteurs par déposition de ZnO sur des verres ordinaires", Mémoire de Magister, UNIVERSITE D'ELOUED, (2013)
- [8] Bendjeroudib Chafia, Effet de type de Substrat sur les propriétés de couche Mince Fe/Ag, Mémoire de Master, Université de Larbi Tébessi – Tébessa– Faculté des Sciences Exactes et des Sciences de la Nature et de la vie, (2016).
- [9] R. GHERIANI, Influence de la proportion de phases dans le domaine de températures (400°C–1000°C) sur des films de ti et de Cr, déposés sur des substrats en aciers, Thèse de Doctorat D'Etat, Université Constantine, (2005).
- [10] Boukhalfa Radhia, Thèse du doctorat, (Influence du substrat sur les propriétés structurales et magnétiques des bicouches Fe/Ag). Université de Constantine, (2014).
- [11] K.ZINE ALI. Thèse de magister, Université Houari Boumediene Alger, Cité par A, KABIR, Thèse de magister, Université Skikda,(2003).
- [12] Y. Jiang; "Pulvérisation cathodique assistée par ordinateur"; Thèse de doctorat, Université Pris xi Orsay (1992).
- [13] C. pedonssat, doctorat en science, université. Panl sabaties toulouse,(1999).

[14] Romain Dujardin, Epitaxie par jets moléculaires de nanostructures isolées de germanium sur silicium, Thèse de doctorat, Université Joseph Fourier de Grenoble, (2006).

[15] Lamis Louahadj, Développement de l'épitaxie par jets moléculaires pour la croissance d'oxydes fonctionnels sur semi-conducteurs, thèse de doctorat, École Centrale de Lyon, (2014).

[16] Khachab Hamid, Thèse de doctorat (Modélisation de la croissance épitaxiale par jet moléculaires (MBE) avec la méthode de Monte Carlo Cinétique (KMC)), Université Abou.Berk Belkad de Tlemcen,(2010).

[17] M. A. Herman, H. Sitter; Molecular Beam Epitaxy, Springer Series in Materials Science, 1 (1996) 454.

[18] V. Reymond ; Nouvelles couches minces et multicouches dérivées de BaTiO₃ : optimisation des propriétés diélectriques, thèse de doctorat, Université de bordeaux I, (2004).

[19] أ.د. نعيمة عبد القادر أحمد, أ.د. محمد أمين سليمان, علم البلورات و الأشعة السينية, دار الفكر العربي, (2005).

[20] M. Hehn ; Elaboration, étude des propriétés structurales et magnétiques de couches et réseaux de plots submicroniques a base de cobalt, Thèse de doctorat, Université strasbourg, (1997).

[21] Romaric V.P. MONTSOUKA ; Propretés structurales et magnétiques d'alliages ternaires (Fe_xNi_{1-x}) pt ; mécanismes atomistiques pour l'inter diffusion

de deux phase $L1_0$, Thèse de doctorat, Université Louis Pasteur de Strasbourg, (2008)

[22] B. Ghosh, M, P, Banerjee, S, Das, Appl. Surf. Sci. 254 (2008) 6436–6440.

[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 wily & Sons, (1974).

[25] F.YNINEB, « Contribution à l'élaboration de couches minces d'Oxydes Transparents Conducteurs (TCO) », Mémoire de magister, Université Mentouri Constantine, (2010).

[26] E. Kunnen, S. Mangin, V.V. Moshchalkov, Y. Bruynseraede, A. Vantomme, A. Hoser, K. Temst, Influence of strain on the anti-ferromagnetic ordering in epitaxial Cr (001) films on MgO, Thin solid Films. 414 (2) (2002) 262–269.

[27] P. Etienne, J. Massies, S. Lequien, R. Cabanel, F. Petroff ; Molecular beam epitaxial growth of Cr /Fe, Ag/Cr and Ag/Co super lattices on MgO (001) substrates, J. Crystal Growth. 111 (1–4) (1991) 1001–1010.

[28] S. Demuyneck, J. Meersschaut, J. Dekoster, B. Swinnen, R. Moons, A. Vantomme, S. Cottenier, M. Rots; Structural and Magnetic Ordering of Chromium in Ag/Cr Multilayers, Phys. Rev Lett. 81 (12) (1998) 2562–2565.

- [29] J. F-Vincent ; Transport tunnel polarisé en spin dans le système épitaxie Fe/MgO/Fe : Interactions magnétiques et Symétries électroniques, Thèse de doctorat, Ecole de nancy, (2004).
- [30] M. Li, a Y.-P. Zhao and G.-C. Wang, Effect of surface roughness on magnetization reversal of Co films on plasma-etched Si.100. Substrates, J. Appl. Phys., Vol. 83, No. 11, 1 (1998) 6288.
- [31] Intissar DJOUADA, Etude de propriétés structurales et magnétiques des couches minces ferromagnétiques à base de métaux de transition, Thèse de doctorat, Université Ferhat Abbas Sétif1 (UFAS) , (2012).
- [32] P. Etienne, J. Massies ; Basic considerations on the growth of metallic layers by molecular beam Epitaxy : application to Cr/Fe, Ag/Fe and Cu/Co multilayers, J. phys III (8). France 3 (1993) 1581-1588.