

**République Algérienne Démocratique et Populaire**  
**Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique**  
**Université de Larbi Tebessi – Tébessa**

**Faculté des Sciences Exactes et des Sciences de la Nature et de la Vie**  
**Département : Science de la matière**



**MÉMOIRE DE MASTER**

**Domaine : Sciences de la Matière**

**Filière : Physique**

**Option : Physique des matériaux**

**Thème :**

**Contribution à l'étude des propriétés microstructurales  
des couches minces  $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$  déposées sur des substrats  
silicium et verre.**

**Présenté par :**

**Guedri Sabrin**

**Toumi Hana**

**Devant le jury :**

Mohamed Elhadi MANSOUR	M.C.B	Université de Tébessa	Président
Amel KAIBI	M.C.B	Université de Tébessa	Rapporteur
Hana BILGHITH	M.C.B	Université de Tébessa	Examinateur

**Date de soutenance : 29/06/2020**

République Algérienne Démocratique et Populaire  
Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique  
Université de Larbi Tebessi – Tébessa

Faculté des Sciences Exactes et des Sciences de la Nature et de la Vie  
Département : Science de la matière



## MÉMOIRE DE MASTER

Domaine : Sciences de la Matière

Filière : Physique

Option : Physique des matériaux

Thème :

**Contribution à l'étude des propriétés microstructurales  
des couches minces  $Ni_{75}Fe_{25}$  déposées sur des substrats  
silicium et verre.**

Présenté par :

Guedri Sabrin

Toumi Hana

Devant le jury :

Mohamed Elhadi MANSOUR	M.C.B	Université de Tébessa	Président
Amel KAIBI	M.C.B	Université de Tébessa	Rapporteur
Hana BILGHITH	M.C.B	Université de Tébessa	Examineur

Date de soutenance : 29/06/2020



République Algérienne Démocratique et Populaire  
 Ministère de l'Enseignement Supérieur et de la Recherche Scientifique  
 Université Larbi Tébessa –Tébessa  
 Faculté des Science Exactes et des Sciences de la Nature et de la Vie



**Déclaration sur l'honneur de non-Plagiat**  
 (À joindre obligatoirement au mémoire; Remplie et signée)



Nous soussignons

Nom, prénom: Guedra Sabrina & Youmi Hana

N° de carte d'étudiant: (1) M 201534027865 (2) M 201534028586

Régulièrement inscrits (es) en **Master** au **Département Sciences de la Matière**

Année universitaire: **2019/2020**

Domaine: **Sciences de la matière**

Filière: **Physique**

Spécialité: physique des matériaux

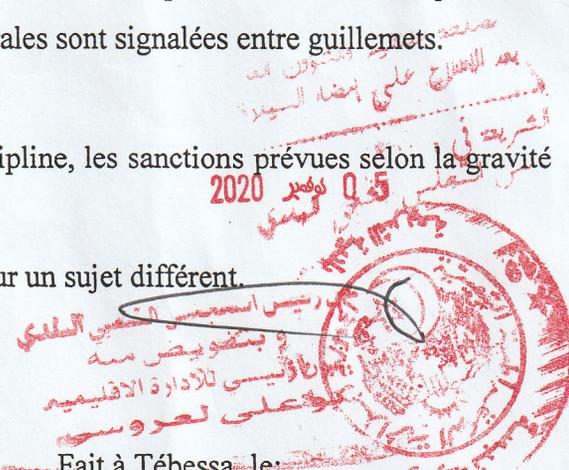
Intitulé du mémoire: Contribution à l'étude des propriétés microstructurales des couches minces Ni<sub>4</sub>Fe<sub>2</sub>S déposées sur des substrats silicium et de verre

Attestons que notre mémoire est un travail original et que toutes les sources utilisées ont été indiquées dans leur totalité. Nous certifions également que nous n'avons 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:

Les étudiants seront convoqués devant le conseil de discipline, les sanctions prévues selon la gravité du plagiat sont:

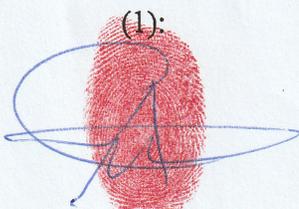
- L'annulation du mémoire avec possibilité de le refaire sur un sujet différent.
- L'exclusion d'une année du master.
- L'exclusions définitive.



Fait à Tébessa, le: 05 نوفمبر 2020

Signature des étudiants (es): 05 نوفمبر 2020

(1):



(2):



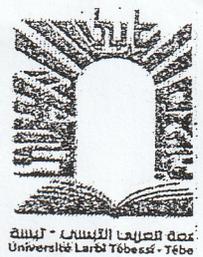


Département : *Sciences de la Matière*

Filière : *Physique*

Spécialité : *Physique des matériaux*

Année universitaire 2019/2020



## Formulaire de levée de réserves après soutenance d'un Mémoire de Master

**Données d'identification du candidats(es) :**

Nom et prénom du candidat : *Guedou Sabirin*

*Toumi Hana*

Intitulé du Sujet : *Contribution à l'étude des propriétés microstructurales des couches minces Ni<sub>2</sub>Fe<sub>2</sub> déposées sur des substrats silicium et verre*

**Données d'identification du membre de jury :**

Nom et prénom : *MANSOUR Mohamed EL-HADMI*

Grade : *M.C.B.*

Lieu d'exercice : Université Larbi Tébéssi - Tébessa

Vu le procès-verbal de soutenance de la thèse sus citée comportant les réserves suivantes :

*R.A.S*

Et après constatation des modifications et corrections suivantes :

Je déclare en ma qualité de président de jury de soutenance que le mémoire cité remplit toutes les conditions exigées et permet au candidat de déposer son mémoire en vue de l'obtention de l'attestation de succès.

Le *05/11/2020*

Président de jury de soutenance : (Nom/Prénom et signature)

*MANSOUR Mohamed EL-HADMI*

## **Remerciement**

*Nous remercions tout d'abord Allah le tout puissant de nous avoir donné la santé, la force et le courage de terminer ce travail.*

*Nous remercions très sincèrement Mme **Kaibi Amel**. Docteur à l'université de Larbi Tbessi, pour d'avoir accepté de nous encadrer, pour sa disponibilité entière, son soutien et son suivi au quotidien, et aussi pour ses aides, ses conseils, tout au long de ce modeste travail.*

*Nous adressons nos sincères remerciements à Mr. **Mansour Mouhamed Elhadi**. Maître de conférences à l'université de Larbi Tbessi, qui nous a fait l'honneur de présider le jury de soutenance et nous remercions à, Mme **Belghith Hana**. Docteur à l'université de Larbi Tbessi, pour avoir accepté d'examiner notre travail.*

*Nous adressons aussi nos vifs remerciements aussi à tous les enseignants du département de science de la matière spécialement Mme **Kaibi Amel**.*

*Nous remercions aussi tous nos amis et nos familles (Guedri et Toumi).*

*Enfin nous tiens à remercier tous ceux qui ont contribué de près ou de loin à la réalisation de ce travail.*

## **Merci !**

# *Sommer*

Introduction générale.....	1
<b>Chapitre I : Synthèse bibliographique et état de l'art sur les matériaux nanostructurés Ni-Fe</b>	
I. 1. Les matériaux cristallins et amorphes .....	5
I. 2. Les matériaux amorphes.....	5
I. 3. Les matériaux cristallins .....	5
I. 4. Généralités sur les matériaux nanostructurés .....	6
I. 4. 1. Classification des matériaux nanostructurés .....	7
I. 5. Les matériaux magnétiques nanostructurés .....	7
I. 5. 1. Présentation de quelques types de comportement magnétique.....	8
I. 5. 1. 1. Matériaux ferromagnétiques .....	9
I. 6. Cycle d'hystérésis.....	10
I. 7. Méthodes de synthèse des matériaux nanostructurés .....	13
I. 7. 1. Les méthodes mécaniques .....	14
I. 7. 2. Méthodes chimiques .....	14
I. 7. 2. 1. La méthode sol- gel .....	14
I. 7. 2. 2. La méthode électrodéposition.....	15
I. 7. 3. Les méthodes physiques .....	16
I. 7. 3. 1. Pulvérisation cathodique.....	16
I. 7. 3. 2. Ablation laser .....	16
I. 7. 3. 3 Évaporation.....	17
I. 8. Mécanisme de formation d'une couche mince .....	17
I. 8. 1. Cinétique contrôlée par la réaction.....	18
I. 8. 2. Cinétique contrôlée par la diffusion.....	18
I. 8. 3. Cinétique contrôlée par la nucléation .....	19
I. 9. La diffusion en couches minces .....	19
I. 10. Diffusion des métaux de transitions dans le silicium .....	20
I. 11. Système binaires Ni-Fe .....	20
I. 12. État de l'art des matériaux nanostructurés Ni <sub>75</sub> Fe <sub>25</sub> élaborées par voie physique .....	22

Conclusion.....	26
-----------------	----

## **Chapitre II : Méthode d'élaboration & Techniques de caractérisation**

II. 1. Méthode d'élaboration.....	31
II. 1. 1. Évaporation sous vide .....	31
II. 1. 1. 1. Évaporation par effet joule.....	31
II. 1. 1. 2. Description de l'évaporateur thermique sous vide.....	32
II. 1. 1. 2. 1. Enceinte d'évaporation .....	32
II. 1. 1. 2. 2. Groupe de pompage .....	32
II. 2. Nettoyage des substrats et élaboration des échantillons.....	32
II. 2. 1. Les substrats .....	32
II. 2. 2. Préparation des échantillons .....	33
II. 2. 2. 1. Nettoyage du substrat .....	33
II. 2. 3. Technique d'élaboration des couches minces .....	33
II. 2. 4. Mesure des épaisseurs par oscillateur à quartz.....	35
II. 3. Méthodes de caractérisation.....	36
II. 3. 1. Diffraction des rayons X (DRX).....	36
II. 3. 1. 1 Principe d'analyse .....	37
II. 3. 1. 2 Appareillage.....	38
II. 3. 1. 3. Dispositif expérimental et paramètres de mesure .....	39
II. 3. 2. Microscopie électronique à balayage (MEB) .....	39
II. 3. 3. Microscopie à force atomique (AFM).....	42
II. 3. 3. 1. Principe de la technique.....	42
II. 3. 3. 2. Appareillage.....	43

## **Chapitre III : Caractérisations structurales, microstructurales des couches minces de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>**

III. 1. Analyse structurale par la diffraction des rayons X en incidence rasante(GIXRD) : .	46
III. 1. 1. L'évolution du paramètre de maille.....	51
III. 1. 2. L'évolution de la taille des grains .....	52
III. 1. 3. L'évolution de contrainte .....	54
III. 2. Propriétés microstructurales .....	55
III. 2. 1. Microscopie électronique à balayage .....	56

**III. 2. 2. Microscopie à force atomique..... 59**  
**Conclusion ..... 61**  
**Conclusion générale ..... 64**

# Liste des figures

Figure I.1 : Les différentes structures des matériaux. ....	6
Figure I.2 : Représentation schématique des grains et joints de grains d'un nanomatériau ...	6
Figure I.3 : Types de nanomatériaux répertoriés en fonction de la dimension de la phase ou des phases nanométriques [8].....	7
Figure I. 4 : Classification des matériaux magnétiques selon leur susceptibilité .....	8
Figure I.5 : Un matériau ferromagnétique : a) Réseau ferromagnétique à basse température, b) Variation de l'aimantation spontanée $M_s$ [15]. ....	9
Figure I. 6 : Structure en domaine : a) Domaines de Weiss, b) Parois de Bloch. ....	10
Figure I.7 : Cycle d'hystérésis illustrant l'évolution de l'aimantation en fonction du champ appliqué [18] .....	10
Figure I.8 : Cycle d'hystérésis pour : a) Matériau magnétique dur et b) Matériau magnétique doux [19].....	11
Figure I.9 : Illustration des tendances entre le champ coercitif $H_c$ et la taille des grains $D$ [21]. ....	12
Tableau I. 1: Résumé des tendances entre le champ coercitif $H_c$ et la taille des grains $D$ [21]. ....	13
Figure I.10 : Techniques de dépôt des nanostructurés .....	14
Figure I.11 : Procédé de Sol-Gel. ....	15
Figure I.12 : Montage expérimentale d'électrodéposition [31] .....	15
Figure I.13 : Schéma de la technique de pulvérisation cathodique "Sputtering" .....	16
Figure I.14 : Le dispositif d'ablation laser .....	17
Figure I.15 : Schéma de la technique d'évaporation sous vide .....	17
Figure I.16 : Schéma des principaux mécanismes de diffusion : 1) Échange simple ; 2) Échange cyclique; 3) Lacunaire; 4) Interstitiel direct; 5) Interstitiel indirect « crowdion ». ....	19
Tableau I.2 : Propriétés physiques des deux éléments de Ni et Fe .....	21
Figure I.17: a) Diagramme de phase proposé par K.B. Reuter et al [24] et diagramme métastable représente la température de curie pour des alliages NiFe obtenus par fusion en fonction de la teneur en nickel. b) Les types d'ordres de système NiFe de structure cubique à face centrée [25]. ....	22
Figure I.18 : L'évolution de la taille des grains $D$ avec $x$ la % Fe.....	23
Figure I.19 : L'évolution du paramètre de maille avec $x$ la % Fe .....	23

<b>Figure I.20 : Les micrographies MEB des couches minces NiFe (100nm) déposées sur n-Si, (b) SEM image of recuit à 250 °C, (c) images AFM de (a), (d) image AFM de (b).</b>	<b>24</b>
<b>Figure II.1 : Principe de l'évaporation thermique</b>	<b>32</b>
<b>Figure II.2 : Appareillage utilisé pour l'élaboration des couches minces de Py par voie physique : a) Evaporateur MECA 2000, b) La chambre de dépôt.</b>	<b>35</b>
<b>Figure II.3 : Famille de plans cristallins en condition de Bragg.</b>	<b>37</b>
<b>Figure II.4 : Configuration du montage de diffraction des rayons X en incidence rasante ...</b>	<b>38</b>
<b>Figure II.4 : Diffractomètre du type Bruker 4-cercle D8 Discover en géométrie Bragg Brentano (<math>\theta</math>-<math>2\theta</math>) [8]</b>	<b>39</b>
<b>Figure II.5 : Différents types des particules émises par l'interaction entre les électrons incidents et l'échantillon [10]</b>	<b>40</b>
<b>Figure II.6 : Schéma de principe de microscopie électronique à balayage</b>	<b>41</b>
<b>Figure II.7 : a) Principe du microscopie à force atomique AFM [12]. b) Model instrument.</b>	<b>43</b>
<b>Figure III.1 : Diagramme de diffraction des rayons X de couche mince Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposée sur substrat de Si(100) d'épaisseur 45 nm</b>	<b>47</b>
<b>Figure III.2 : Diagrammes de diffraction des rayons X des échantillons avec les épaisseurs : a) 127 nm et b) 250 nm</b>	<b>48</b>
<b>Figure III.3 : Diagramme de diffraction des rayons X de couche mince Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposée sur substrat de verre d'épaisseur 45 nm</b>	<b>49</b>
<b>Figure III.4 : Diagramme de diffraction des rayons X d'échantillon Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposée sur substrat de verre d'épaisseur 127 nm</b>	<b>50</b>
<b>Figure III.5 : L'évolution du paramètre de maille des films de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> en fonction des épaisseurs : a) déposé sur un substrat de Si (100), b) déposé sur un substrat de verre</b>	<b>52</b>
<b>Figure III.6 : L'évolution de la taille des grains des films de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> en fonction d'épaisseur : a) déposé sur un substrat de Si, b) déposé sur un substrat de verre</b>	<b>54</b>
<b>Figure III.7 : L'évolution des contraintes des films de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> en fonction de l'épaisseur : a) déposé sur un substrat de Si, b) déposé sur un substrat de verre</b>	<b>55</b>
<b>Figure III. 8 : Micrographies MEB de la surface des films Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> pour l'épaisseur 45 nm déposée sur des différents substrats : a) Substrat de Si (100), b) Substrat de verre</b>	<b>57</b>
<b>Figure III. 9 : Spectre EDX des couches de permalloy Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> d'épaisseur 45 nm déposées sur différents substrats : a) Substrat de Si (100), b) Substrat de verre</b>	<b>58</b>
<b>Figure III. 10 : Image par AFM des surfaces des films de Py Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> d'épaisseur 45nm sur substrat de silicium</b>	<b>59</b>

# Liste des symboles

<i>Si-a</i>	Si-amorphe
$\chi$	La susceptibilité magnétique
M	L'aimantation.
H	Le champ magnétique appliqué.
C	La constante de Curie
$T_c$	La température de Curie
$M_s$	Le point de saturation
$M_r$	Aimantation rémanente
$H_c$	Champ coercitif
PVD	Dépôt physique en phase vapeur
CVD	Dépôt chimique en phase vapeur
Py	Permalloy
Fcc	Cubique face centre
a	Paramètre de maille
D	Taille des grains
$\varepsilon$	Contrainte
XRD	Diffraction des rayons X
GIXD	Grazing X-ray Incidence Diffraction
MEB	Microscopie électronique à balayage
EDX	Spectromètre de dispersion d'énergie

AFM	Microscopie à force atomique
RBS	Rutherford Backscattering Spectroscopy
BE	Bombardement électronique
$f_0$	Fréquence de résonance
N	Constante donné par la relation.
Dq	Epaisseur de quartz.
N	L'ordre de diffraction.
N	Indice de réfraction du film
$\lambda$	Longueur d'onde des rayons X incident.
$d_{hkl}$	Distance interréticulaire
$\theta$	L'angle de diffraction.
$\beta$	La largeur à mi-hauteur.
$\lambda$	La longueur d'onde

# *Introduction générale*

### Introduction générale

La science des nanomatériaux et des nanotechnologies est l'un des domaines les plus largement utilisés en raison de ses diverses applications, elle est constamment étudiée et développée par les scientifiques. Ces matériaux sont caractérisés par une taille des grains de l'ordre du nanomètre, car ils ont pris un large domaine d'application technologique [1].

Les nanomatériaux sont un coup distinct dans le domaine physique qui vise à produire une nouvelle classe qui correspond aux exigences des nouvelles technologies pour l'application de ces matériaux tels que, ces applications appartiennent à divers domaines, notamment le magnétisme, l'électronique, l'optique...etc [2].

De nos jours, les matériaux magnétiques ont repris beaucoup d'intérêt en raison de leurs applications potentielles dans diverses technologies magnétiques. Parmi ces matériaux, les couches minces nanostructurés de NiFe ont reçu beaucoup d'attention, en raison de leurs propriétés magnétiques intéressantes [3]. En effet d'un point de vue technologique en particulier, les films nanostructurés de permalloy ( $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ ) sont des matériaux ferromagnétiques doux connu depuis longtemps qui sont utilisés dans un grand nombre d'applications en raison de ses propriétés distinctives d'aimantation à saturation et perméabilité élevée et de faible coercivité, qui sont différent par rapport à ceux que l'on trouve dans les matériaux cristallins. Enfaite que les propriétés structurales et microscopiques de ces films dépendent fortement des conditions d'élaboration, du substrat, de l'épaisseur, de la qualité et de l'orientation des cristaux. Ces films ont fait l'objet de nombreuses recherches pour produire des dispositifs d'enregistrement haute densité, des capteurs magnétiques à haute sensibilité et des résistances magnétiques, des capteurs, une mémoire à accès aléatoire et des inductances.

Dans ce travail, nous avons mené une étude sur les couches minces de permalloy en utilisant la méthode d'évaporation sous vide. Les propriétés physiques dépendent des conditions de dépôt, du substrat et de l'épaisseur. Nous nous intéressons à étudier l'effet de différentes conditions de préparation et les types des substrats qui ont été utilisées, sur les couches de permalloy nanostructures. En utilisant différentes méthodes de caractérisation, la diffraction des rayons X (DRX), la microscopie électronique (MEB) et la microscopie à force atomique (AFM).

Ce travail de manuscrit a comme objectif d'étudié l'effet de substrat et de l'épaisseur sur les films nanostructures NiFe et en particulier sur ces propriétés structurales et microstructurales dans le but de l'application dans le domaine magnétique.

## Introduction Générale

---

Cette mémoire contient trois chapitres en plus d'une introduction et d'une conclusion générale :

- Le premier chapitre contient des généralités et quelques notions sur les nanomatériaux magnétiques et les différentes méthodes du dépôt des couches minces. À la fin de ce chapitre, nous avons présenté des recherches bibliographiques des couches minces NiFe.
- Le deuxième chapitre décrit le dispositif d'élaboration des couches minces Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> et les multiples techniques de caractérisation utilisées pour déterminer les propriétés structurales, morphologiques de nos couches minces, la diffraction de rayon X, la technique de Microscopie électronique à balayage (MEB) et microscopie à force atomique (AFM).
- Le troisième chapitre présente les résultats relatifs à l'étude de l'effet de substrat et de l'épaisseur sur les propriétés physiques des couches minces de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposées par évaporation sous vide. Nous avons étudié pour différentes épaisseurs, les propriétés structurales, microstructurales des couches minces Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>

Enfin, ce mémoire a été conclu avec une conclusion générale qui résume les principaux résultats obtenus à travers cette étude.

### References bibliographies

- [1] W. Szmaja, J.Balcerski, W.Kozłowski, M.Cichomski, J.Grobelny, M.Smolny, P.J. Kowalczyk, Study of thermally evaporated thin permalloy films by the Fresnel mode of TEM and AFM, 521, 174-177 (2012).
- [2] W.Chern, K.Hsu, I.S.Chun, B.P.deAzeredo, N.Ahmed,K.H. Kim, J.M.Zuo, N. Fang, P. Ferreira, X. Li, nonlithographic patterning and metal-assisted chemical etching for manufacturing of tunable light-emitting silicon nanowire arrays, 10, 1582-1588 (2010).
- [3] A.Kaibi, élaboration et étude des propriétés structurales microstructurales, hyperfines et Magnétiques des nanomatériaux NiFe, thèse de doctorat, Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene (USTHB) - Alger, 2019.

# **Chapitre I :**

**Synthèse Bibliographique et état de l'art sur les Matériaux  
Nanostructurés Ni-Fe**

Dans ce chapitre, nous présentons des généralités sur les matériaux magnétiques et les nanostructurés de manière précise. Nous allons faire un rappel de la classification des matériaux magnétiques puis une présentation de quelque types de comportement magnétique qui nous intéressons aux matériaux ferromagnétiques en suit nous présentons les techniques et les méthodes de dépôt de ces matériaux. Enfin, nous passons en revue des différents résultats obtenus par des chercheurs sur les couches minces nanostructurés NiFe élaborés par évaporation thermique.

### **I. 1. Les matériaux cristallins et amorphes :**

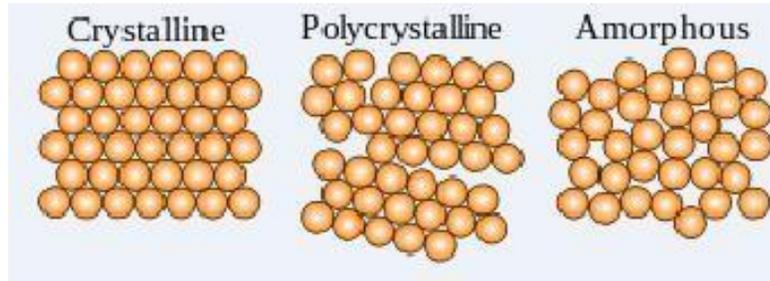
Les matériaux sont tous ceux qui ont une masse et un volume, constitué d'unités de base spécifiques appelées molécules, qui sont des collections de petites particules appelées atomes qui sont distribuées dans la composition structurale avec une certaine distribution qui permet de déterminer le type de structure de ces matériaux. Les matériaux peuvent être de structure cristalline (mono, poly) ou amorphe (Figure I.1).

### **I. 2. Les matériaux amorphes :**

Les matériaux amorphes sont des substances isolées dans lesquelles la distribution des atomes est irrégulière, c'est-à-dire les atomes constitutifs perdent une telle périodicité, ce qui signifie simplement qu'il y a un ordre atomique à courte portée dans le réseau. La structure du réseau dans ces matériaux représente quelques déviations de l'arrangement périodique parfait qui sert à détruire la périodicité globale du solide comme le verre et amorphe-Si (a-Si). Utilisé dans le domaine optique et aussi le domaine de technologique.

### **I. 3. Les matériaux cristallins :**

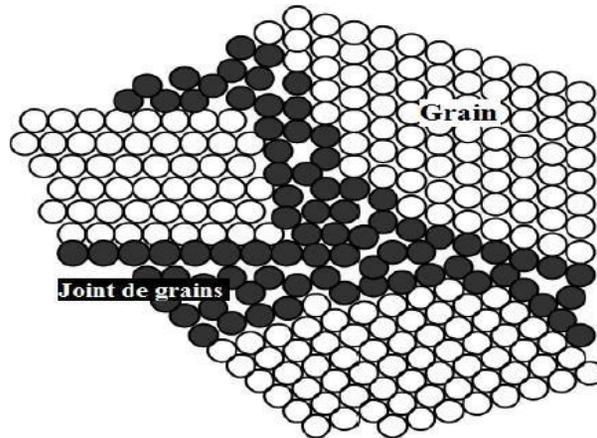
Le matériau cristallin est défini comme un corps solide qui contient un certain nombre des atomes constitutifs avec une forme géométrique spécifique et se compose de petites unités qui se répètent régulièrement en trois dimensions telles que le Fe et Si. Ces matériaux peuvent être monocristallins sont des substances solides dans laquelle le réseau cristallin s'étend du début à la fin pour former un grand cristal uniforme dans une direction. Ou aussi polycristallins qui sont des matériaux constitués de nombreux granules cristallins de différentes tailles et répartis aléatoirement.



**Figure I.1 :** Les différentes structures des matériaux.

### I. 4. Généralités sur les matériaux nanostructurés :

Les matériaux nanostructurés appelés aussi « nanomatériaux » sont définis comme des matériaux constitués de poly-cristaux qui peuvent être monophasés ou polyphasés, avec une taille cristalline comprise entre 1 et 100 nm [1]. Ces matériaux contiennent une fraction importante des atomes situés aux limites des grains (Figure I.2), qui peut donner des propriétés intéressantes qui ne se retrouvent pas dans l'équivalent massif [2]. La structure des nanomatériaux peut être considérée comme formée de deux parties : un noyau cristallin (avec structure, paramètre de maille...etc.) et une partie extérieure formée par l'interface (joints de grain, lacunes, défauts, des impuretés etc.) [3, 4].



**Figure I.2 :** Représentation schématique des grains et joints de grains d'un nanomatériau[4].

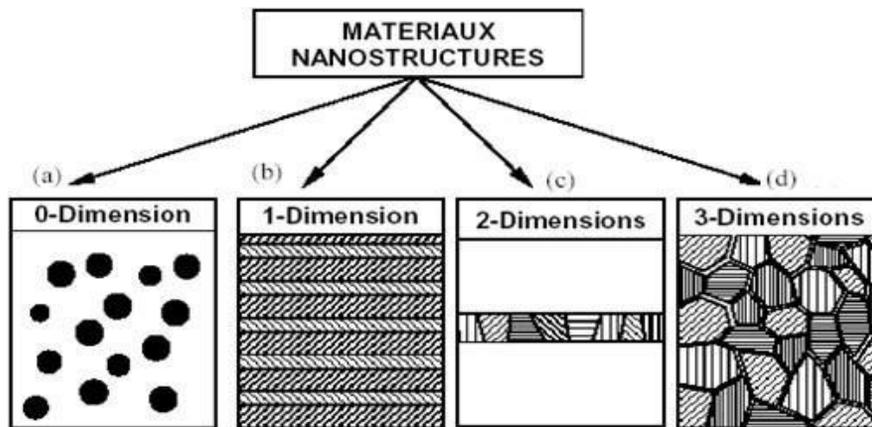
Les matériaux nanocristallins ont des propriétés supérieures aux matériaux ayant des tailles des grains plus grande, parmi lesquels on mentionne : dureté supérieure, diffusivité amplifiée, aimantation à saturation, champ coercitif, module élastique réduit, résistivité électrique supérieure, chaleur spécifique plus élevée, ductilité supérieure, densité réduite, coefficient de dilatation thermique plus élevé, conductivité thermique plus faible et meilleures propriétés magnétiques douces [5]. En raison de ces propriétés, les nanostructurés ont été largement étudiés et utilisés dans

de nombreux domaines et applications par exemple, à créer des filtres anti-pollution plus sélectifs, des composants électroniques plus fiables, des plastiques plus résistants ...etc.

### I. 4. 1. Classification des matériaux nanostructurés :

Les nanomatériaux peuvent être classés, selon la dimension de leur nanostructures en quatre familles (Figure I.3) [6,7] :

- Matériaux de dimension zéro : Une dimension zéro signifie que les matériaux est nanométrique dans les trois directions de l'espace, comme dans les fluides magnétiques ou les cristaux colloïdaux pour l'optique.
- Matériaux de dimension 1: Ces matériaux se présentent sous forme des nanofils et des nanotubes.
- Matériaux de dimension 2 : Ce sont des matériaux sous forme des couches minces.
- Matériaux de dimension 3 : Ce sont des matériaux sous forme des particules nanocristallines, comme dans les céramiques et les métaux nanostructurés.



**Figure I.3 :** Types de nanomatériaux répertoriés en fonction de la dimension de la phase ou des phases nanométriques [8].

### I. 5. Les matériaux magnétiques nanostructurés :

Les matériaux magnétiques se distinguent par la présence du moment magnétique des atomes, qui représente le comportement des moments magnétiques initiaux (atomes), où ils interagissent entre eux et sont organisés dans le réseau cristallin. Les moments magnétiques dépendent de l'environnement magnétique de chaque atome, qui est la nature et l'emplacement des atomes voisins [9]. Trois sources sont à l'origine du moment magnétique dans un atome : l'état quantique de spin des électrons, le mouvement orbital des électrons autour du noyau et l'état quantique de spin du

noyau. Dans un matériau magnétique, la contribution prédominante à son moment magnétique total, provient du spin et du mouvement orbital des électrons [10,11]. Chaque matériau à un comportement magnétique lié à sa nature, ils sont classés selon leurs comportements lorsqu'on applique un champ magnétique extérieur. Cette réponse est décrite par une grandeur sans unité qui est la susceptibilité magnétique  $\chi$ . Elle est définie comme suit [12] :

$$\chi = \frac{M}{H} \quad (\text{I. 1})$$

H : le champ magnétique appliqué.

M : l'aimantation.

On peut classer les matériaux magnétiques selon leur susceptibilité  $\chi$  comme suit :

Si ( $\chi < 0$ ) : Dans ce cas les matériaux sont non magnétiques et les atomes se caractérisent par un moment magnétique nul en absence de champ magnétique appliqué. Lors de l'application d'un champ magnétique, ils produisent une polarisation magnétique, c'est-à-dire l'apparition d'une faible aimantation dans la direction opposée du champ appliqué, la sensibilité magnétique est donc négative.

Si ( $\chi > 0$ ) : Dans ce cas les matériaux sont magnétiques et les atomes se caractérisent par un moment magnétique spontané, en présence ou en absence du champ extérieur [13].

### I. 5. 1. Présentation de quelques types de comportement magnétique :

Les matériaux sont divisés en deux catégories (Figure I.4) : matériaux magnétiques (ferromagnétiques, ferrimagnétiques, paramagnétiques, antiferromagnétiques) et matériaux non magnétiques (diamagnétiques).

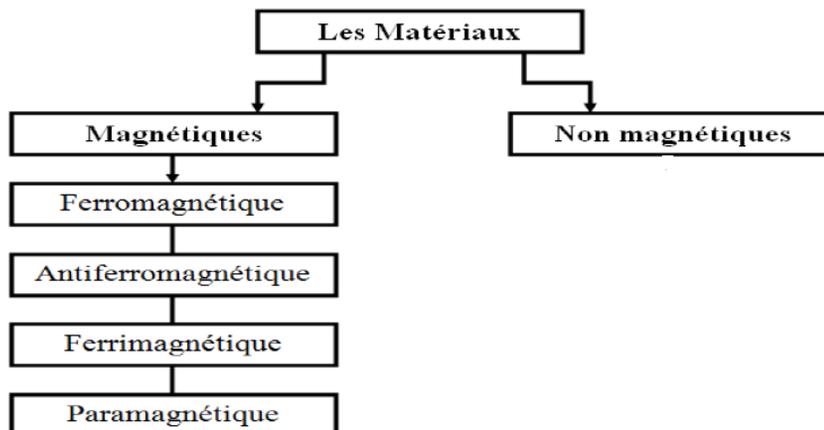


Figure I. 4 : Classification des matériaux magnétiques selon leur susceptibilité.

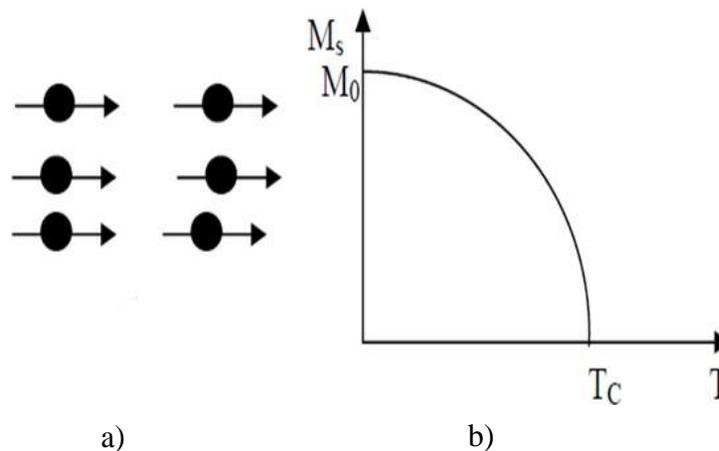
### I. 5. 1. 1. Matériaux ferromagnétiques :

Dans ces matériaux les moments magnétiques interagissent entre eux et tendent à s'aligner parallèlement (la même direction) les uns par rapport aux autres. Cette interaction des moments entre eux est appelée interaction d'échange (couplage ferromagnétique). Ils sont connus pour leurs grands intérêts en raison de leurs propriétés distinctives : possèdent un moment magnétique spontané, s'aimanter très fortement sous l'effet d'un champ extérieur et sous l'effet d'une température appelé température de Curie et d'entretenir leur aimantation même en absence de champ [14]. Ils possèdent aussi une susceptibilité élevée et positive [15], la sensibilité magnétique est donnée comme suit :

$$\chi = \frac{C}{(T-T_C)} \quad (\text{I. 2})$$

C : constant de curie [13].

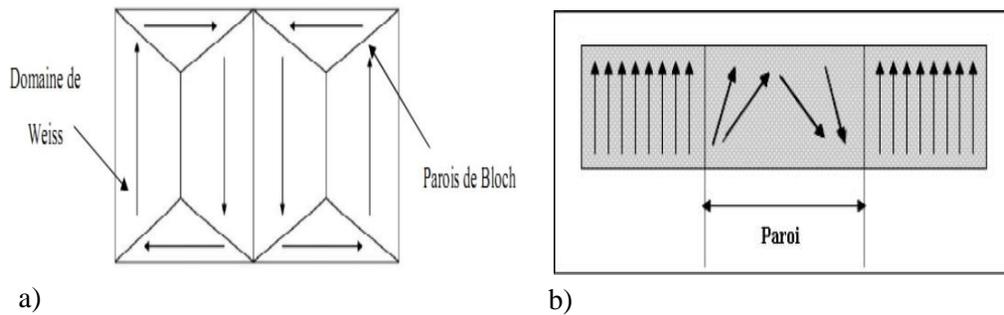
$T_C$  : la température de Curie est la température au-dessus de laquelle une substance perd spontanément son magnétisme dans une substance ferromagnétique. Le matériau devient dans un état désordonné dite paramagnétique, lorsque la température T est supérieure à la température de Curie  $T_C$  [16, 17].



**Figure I.5 :** Un matériau ferromagnétique : a) Réseau ferromagnétique à basse température, b) Variation de l'aimantation spontanée  $M_s$  [15].

Les parties internes des matériaux ferromagnétiques sont divisées en domaines magnétiques, les domaines de Weiss. Chaque domaine, qui contient un grand nombre des atomes, aimantés spontanément, de sorte que la direction des moments varie d'un domaine à l'autre et le moment magnétique total de l'échantillon est nul (voir figure I.6 (a)) [12]. L'interface entre un domaine et un autre est appelée " parois de Bloch " à travers lesquelles la direction des moments magnétiques

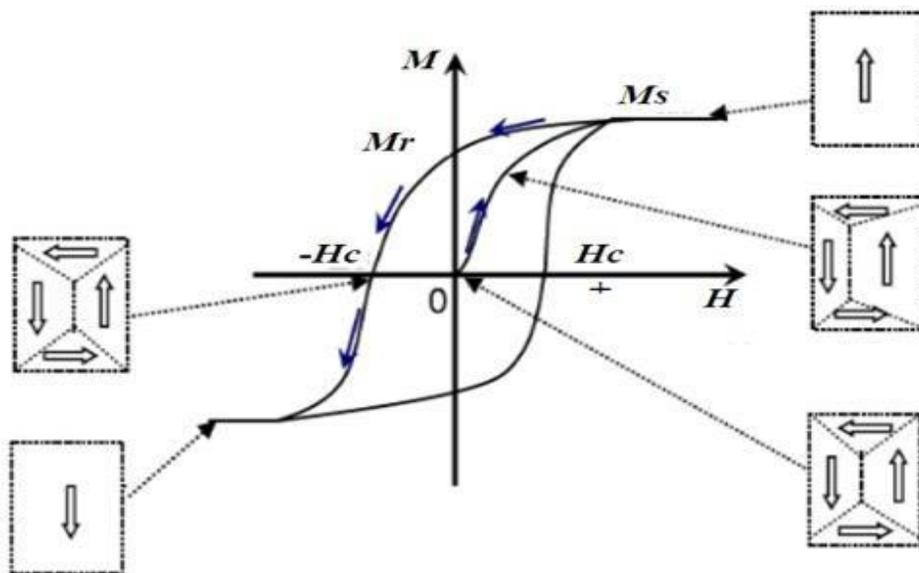
change progressivement d'une direction à l'autre (voir figure I.6 (b)). Cette " structure en domaine " est créée automatiquement pour réduire l'énergie magnétique totale du solide.



**Figure I. 6** : Structure en domaine : a) Domaines de Weiss, b) Parois de Bloch.

### I. 6. Cycle d'hystérésis :

L'évolution de l'aimantation en fonction du champ magnétique appliqué dans les matériaux ferromagnétiques fait apparaître une courbe fermée appelée cycle d'hystérésis (Figure I.7). Lors de l'application d'un champ magnétique, tous les moments magnétiques vont dans la même direction jusqu'à atteindre le point de saturation  $M_s$ . Après la saturation, le matériau garde une certaine aimantation dite aimantation rémanente  $M_r$ , après annulation du champ magnétique appliqué.

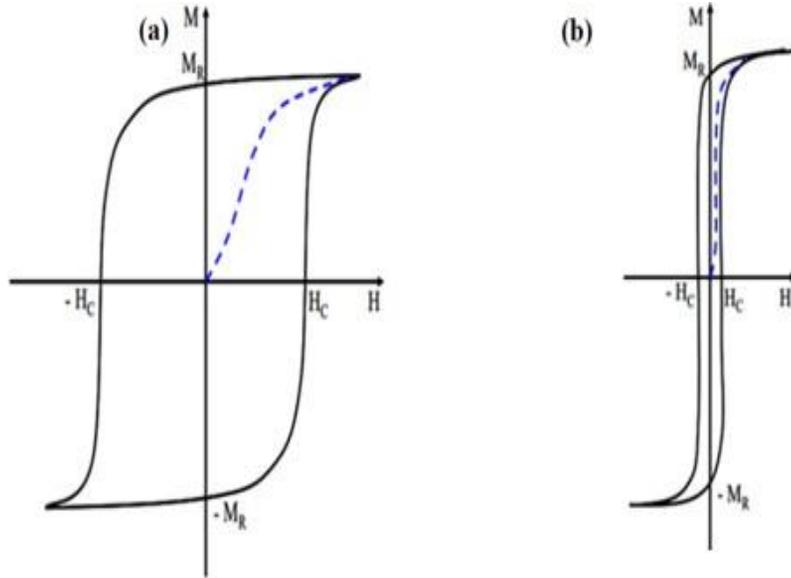


**Figure 1.7** : Cycle d'hystérésis illustrant l'évolution de l'aimantation en fonction du champ appliqué [18].

On peut réduire à zéro l'aimantation du matériau en appliquant un champ dans la direction opposée au premier champ. La valeur pour laquelle l'aimantation de la matière s'annule est appelée champ

coercitif  $H_c$ . Il est fortement affecté par les propriétés microstructurales de la couche telles que la taille et la forme des grains, la composition et la texture aussi concerne également la nature du substrat utilisé, qui est lié aux conditions de préparation.

On peut diviser les matériaux magnétiques selon la forme du cycle d'hystérésis en deux types principaux matériaux doux et matériaux durs :

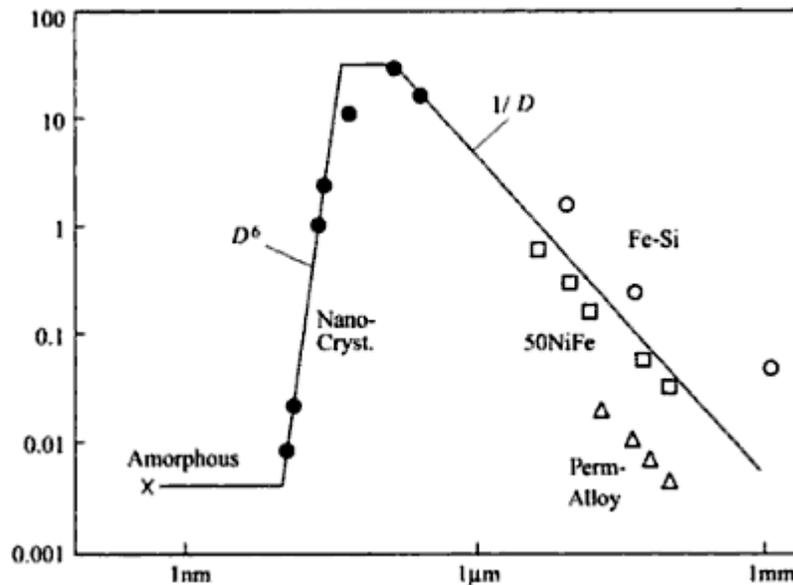


**Figure I.8 :** Cycle d'hystérésis pour : a) Matériau magnétique dur et b) Matériau magnétique doux [19].

- ✓ Matériaux magnétiques doux qui se caractérisent par des cycles d'hystérésis étroits (faible surface du cycle d'hystérésis), une très haute perméabilité (ils peuvent être aimantés et désaimantés facilement), le champ coercitif est faible (en générale inférieur à 1000 A/m) et une aimantation à saturation  $M_s$  élevée. Sous l'action du champ magnétique appliqué les parois de Bloch se déplacent facilement. Généralement ils ne sont pas aimantés après l'annulation du champ magnétique extérieur appliqué. Parmi les matériaux doux : le Ni, les alliages FeNi, les alliages FeCo etc. [20]
- ✓ Matériaux magnétiques durs qui ont un cycle d'hystérésis large, une faible perméabilité, et un champ coercitif élevé (généralement supérieur à 10 KA/m). Ils gardent une aimantation importante et cela, même après l'annulation du champ appliqué. Comme exemple des matériaux durs : le FeNdB, SnCo etc.

Tous les modèles confirment l'existence d'une relation entre les paramètres ferromagnétiques ( $H_c$ ,  $M_s$ ...) 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. Le champ coercitif traduit la facilité avec laquelle les domaines magnétiques vont pouvoir se former et les parois magnétiques se déplacer pour assurer le renversement de l'aimantation. Comprendre sa relation à la microstructure est fondamental donc, le champ coercitif est fortement influencé par la propriété microstructurale. Herzer établit le « Random Anisotropy Model » [21]. Il s'applique aux matériaux doux isotropes, c'est-à-dire dépourvu d'anisotropie uniaxiale ( $K_u$ ). Il considère un polycristal parfait constitué d'un assemblage spatialement désordonné de volumes unitaires  $V_{ex}$  eux même constitués d'un nombre fini de cristallites parfaitement couplées, il peut donc être utilisé pour expliquer ce phénomène. L'évolution du champ coercitif en fonction de la taille moyenne  $D$  des grains et ce pour différents types de matériaux magnétiquement doux, sont représentés par le modèle de Herzer dans la figure I.9 suivante :



**Figure I.9 :** Illustration des tendances entre le champ coercitif  $H_c$  et la taille des grains  $D$  [21].

- ❖ La première tendance est des plus classiques avec une dépendance en  $D^{-1}$  du champ coercitif. Elle figera longtemps l'image associant caractère doux avec gros grains ( $D > 10 \mu\text{m}$ ). Dans ce cas, observé pour des tailles de grains supérieures à 100 nm.
- ❖ La seconde tendance est beaucoup moins avec une dépendance en  $D^{-6}$ . C'est un tournant important puisqu'elle suggère d'aller dans la direction opposée à celle de l'état de l'art. Elle conduira à l'idée d'une possible anisotropie magnéto cristalline évanescence (vanishing anisotropy) si la taille des cristallites est suffisamment réduite ( $D < 50 \text{ nm}$ ).

Dans le cas des films minces, l'effet de la topographie de surface sur les propriétés magnétiques est un facteur important [22,23]. Ce facteur attire la curiosité des scientifiques. Certains travaux montrent une corrélation claire entre la topographie et le comportement des paramètres magnétiques ( $H_c$ ,  $M_s$  et  $H_s$ ) des couches minces et en donnent une approche qualitative [24,25]. Nous avons trois facteurs importants qui peuvent influencer sur le comportement magnétique des couches minces ferromagnétiques :

Le premier facteur est la rugosité de la surface, le deuxième facteur est la distribution et la taille des grains [26], le troisième facteur est la forme et la taille des grains [27].

Nous montrons, dans le Tableau I.1 les différentes variations de  $H_c$  avec la taille moyenne des grains  $D$  et la largeur des parois de Bloch  $\delta B$  pour le cas des matériaux massifs et des couches minces d'épaisseur  $t$ . A partir du Tableau I.1, on remarque que  $H_c$  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.

Si  $\delta B \ll D$ , les parois sont beaucoup plus fines que la microstructure. Elles s'alignent donc spontanément à l'intérieur de chaque grain selon la direction imposée.

A l'opposé, si  $\delta B \gg D$ , on est dans l'image moins classique de parois nettement plus larges que les cristallites.

Matériaux massifs		Couches minces	
$\delta B \ll D$	$\delta B \gg D$	$\delta B \sim D$	
		$D < t$	$D = t$
$H_c \propto \frac{1}{D}$	$H_c \propto D^6$	$H_c \propto \frac{D^2}{\sqrt{t}}$	$H_c \propto D$

**Tableau I. 1:** Résumé des tendances entre le champ coercitif  $H_c$  et la taille des grains  $D$  [21].

**I. 7. Méthodes de synthèse des matériaux nanostructurés :**

Les nanostructurés se présentent sous forme de couche mince ou sous forme de poudre ont été obtenues par différentes méthodes de synthèse. Ces méthodes peuvent être classées en trois catégories : méthodes mécaniques, méthodes chimiques et méthodes physiques. Le diagramme suivant représente les techniques les plus utilisées de dépôts des nanostructurés :

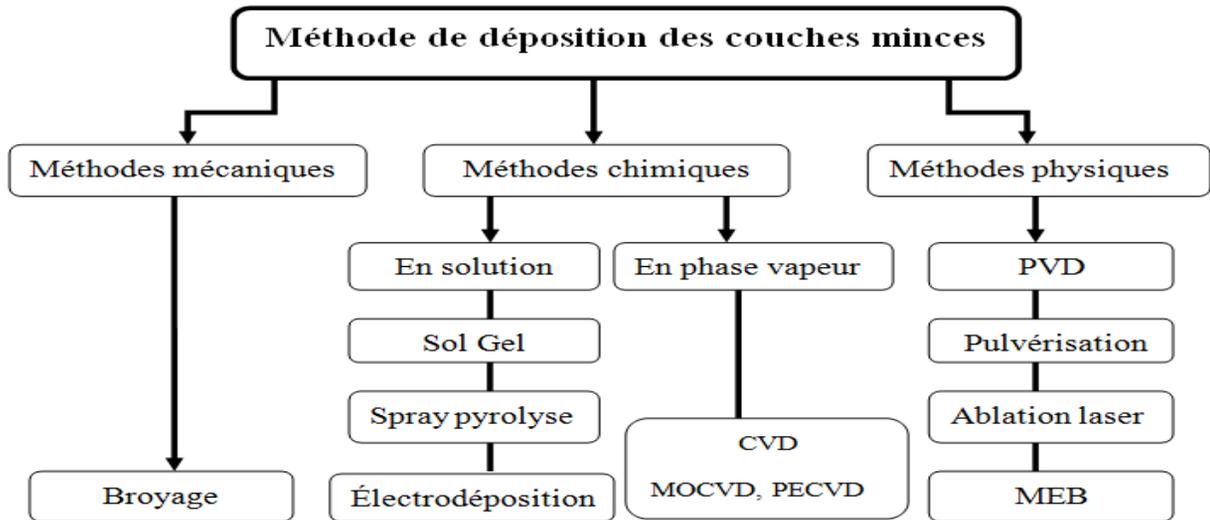


Figure I.10 : Techniques de dépôt des nanostructurés.

### I.7.1. Les méthodes mécaniques :

La méthode mécanique est utilisée pour l'obtention des alliages, principalement basée sur la technique de mécanosynthèse qui consiste généralement à broyer des poudres micrométriques pour des nombreux alliages. Il permet l'obtention de nano précipités ou nano objets dispersés de façon homogène.

### I.7.2. Méthodes chimiques :

Cette méthode consiste à évaporer le matériau à déposer sous vide on le chauffant à haute température. Le matériau évaporé est déposé sur le substrat par condensation suivant le mode de chauffage utilisé. Les méthodes chimiques ont l'avantage d'être plus simple à mettre en œuvre, moins coûteuses et elles permettent généralement un bon contrôle de la morphologie. Les méthodes les plus couramment utilisées sont : dépôt par spray pyrolyse, la méthode sol-gel, électrodéposition et la méthode hydrothermale.

#### I.7.2.1. La méthode sol- gel :

Le procédé de sol-gel est consisté d'élaborer des matériaux de type oxyde métallique tels que les céramiques, cette technique dépend de la conversion du liquide en gel puis en solide à température ambiante [28, 29].

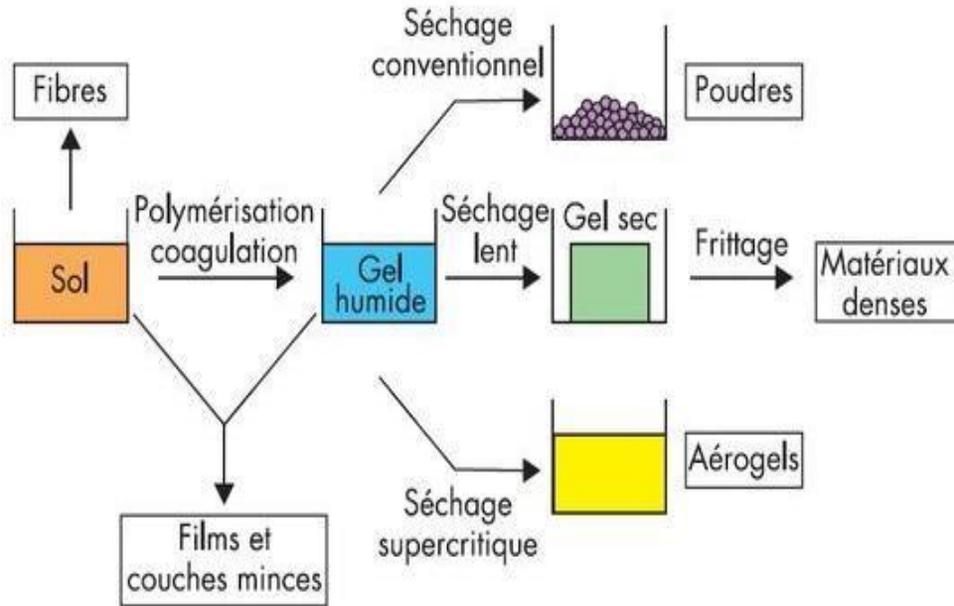


Figure I.11 : Procédé de Sol-Gel [29].

### I. 7. 2. 2. La méthode électrodéposition :

Il s'agit d'une solution d'électrolyte qui contient des ions métalliques qui se déposent entre l'électrode métallique et le substrat, créant ainsi un courant électrique. L'électrodéposition offre la possibilité d'obtenir des dépôts épais à des durées d'opération recors comparativement aux techniques physiques [30].

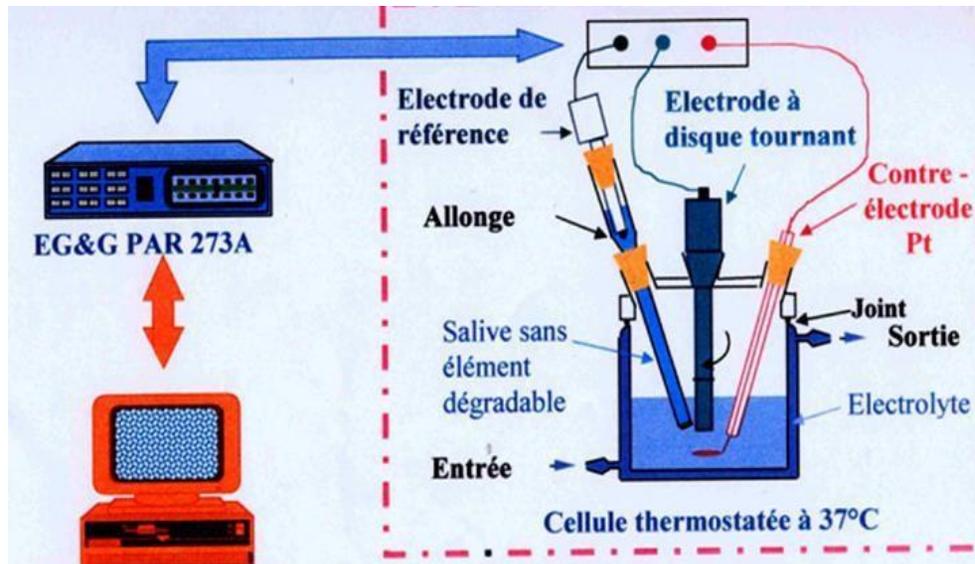


Figure I.12 : Montage expérimentale d'électrodéposition [30].

### I. 7. 3. Les méthodes physiques :

Le processus du dépôt physique en phase vapeur (Physical Vapor Deposition, PVD en anglais) dépendant des trois étapes fondamentales :

- Créer les types à déposer, sous forme des atomes ou des molécules.
- Transfert de ces espèces en phase vapeur de la source au substrat.
- Dépôt sur substrat et condensation de ces espèces et la croissance du dépôt.

En général, les différentes techniques PVD sont classées selon trois catégories : la pulvérisation cathodique, l'évaporation et l'ablation laser :

#### I. 7. 3. 1. Pulvérisation cathodique :

Appelé aussi (sputtering en anglais), c'est un procédé de dépôt et condensation d'une vapeur des atomes sur un substrat à partir de bombardement d'une source solide par l'action des ions accélérés à grandes énergies.

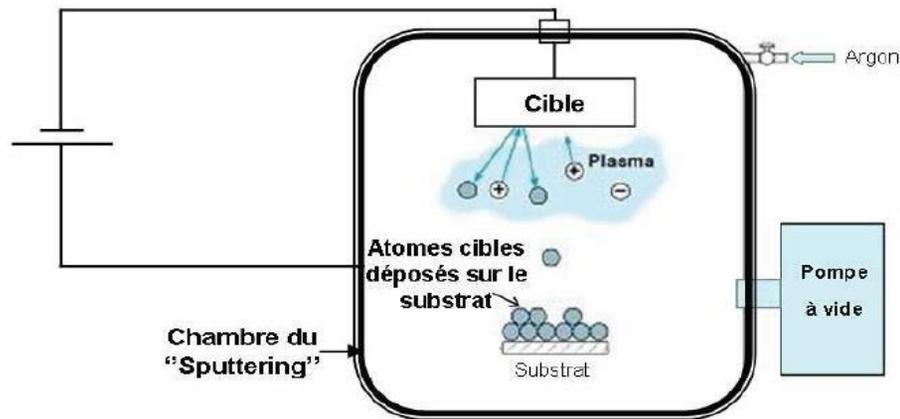


Figure I.13 : Schéma de la technique de pulvérisation cathodique "Sputtering"[30].

#### I. 7. 3. 2. Ablation laser :

L'ablation laser est une technologie qui permet la formation d'une couche mince en utilisant des lasers de haute énergie en impulsion pour vaporiser des clusters d'ions de la surface des solides.

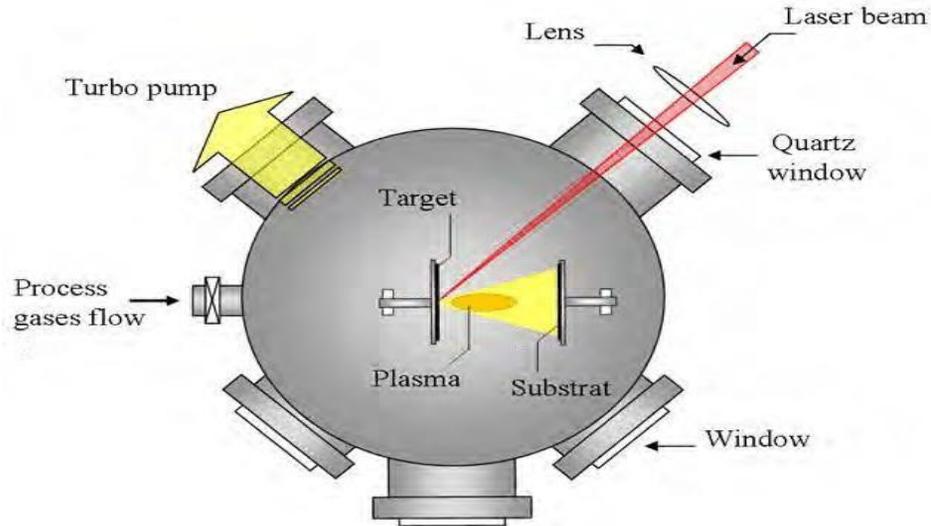


Figure I.14 : Le dispositif d'ablation laser[30].

### I. 7. 3. 3 Évaporation sous vide :

Le procédé d'évaporation utilisé pour l'obtention des couches minces, le principe consiste à chauffer le matériau à évaporer par effet de Joule ou par bombardement par un canon à électrons. La condensation de la vapeur sur un substrat froid conduit à la formation d'une couche mince solide.

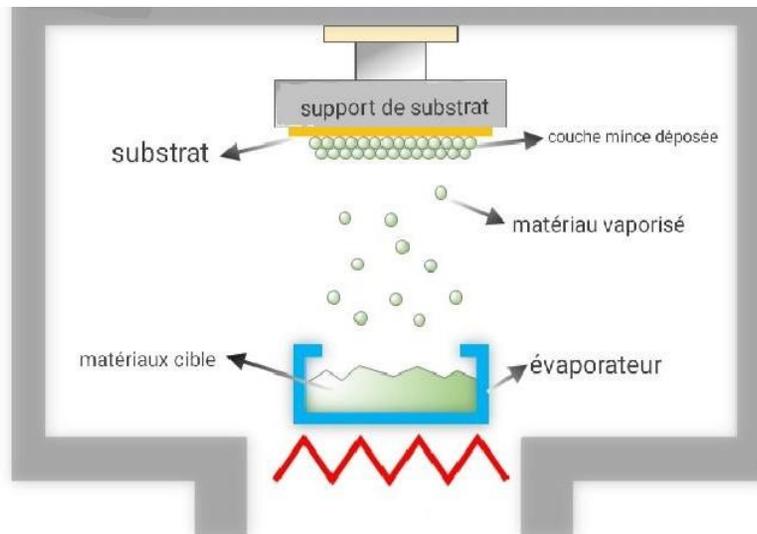


Figure I.15 : Schéma de la technique d'évaporation sous vide[29].

### I. 8. Mécanisme de formation d'une couche mince :

Quelle que soit la technique de dépôt utilisée, la formation de la couche au niveau de la surface du substrat passe par les étapes suivantes :

### I. 8. 1. Cinétique contrôlée par la réaction :

Dans ce cas, la méthode de croissance est latéralement homogène, donc l'épaisseur de la couche de silicate est une fonction linéaire par rapport au temps, sachant que ce processus est limité par l'interaction entre les faces. On déduit que le phénomène d'interaction qui se produit à l'interface M/Si est plus lent que le phénomène de diffusion.

Les différences d'épaisseur de la couche s'expriment comme suit :

$$e = D.t \quad \text{ou} \quad D(T) = D_0 \exp\left(-\frac{Ea}{KT}\right) \quad (\text{I. 3})$$

D : est le coefficient de la diffusion a la température T ( $\text{cm}^2/\text{s}$ ).

T : la température (K).

t: le temps de recuit (s).

e : l'épaisseur de la couche inter faciale( $\text{\AA}$ ).

La croissance de la vitesse linéaire est typique des processus limités par l'interaction.

Dans ce cas, nous disons généralement que le silicium est l'espèce qui se propage le plus rapidement et qu'il se propage à travers le siliciure formé, la réaction se produisant sur l'une des faces du stade de croissance [31].

### I. 8. 2. Cinétique contrôlée par la diffusion :

Lorsque le processus de diffusion est limité et contrôle la réaction la cinétique sera contrôlée par diffusion. L'épaisseur de la couche en croissance change parabolique avec le temps de recuit.

$$e^2 = D.t^2 \quad \text{ou} \quad D(T) = D_0 \exp\left(-\frac{Ea}{KT}\right) \quad (\text{I. 4})$$

La croissance des minéraux de siliciure de transition est contrôlée par diffusion. Pour que ce phénomène se produise, l'énergie d'activation doit être de 1,3ev à 1,5ev où la plus grande diffusion du siliciure de température dans la catégorie des silicates est sous température de fusion. La réaction M/Si conduit à diminution significative du volume, qui est à son tour responsable des tensions qui apparaissent dans le pesticide. Les tensions perçues peuvent subir une relaxation à haute température en raison de la méthode de production affectant différentes tailles.

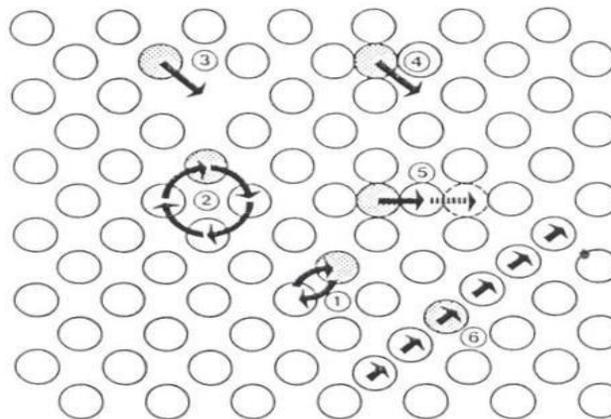
Les coefficients de dilatation thermique sont des facteurs très importants, car ils jouent un rôle crucial dans les tensions observées. Ces coefficients sont plus importants dans les siliciures que dans les minéraux [32].

### I. 8. 3. Cinétique contrôlée par la nucléation :

La nucléation est un processus de croissance lisse et côte à côte qui se produit rapidement sous une très petite température, entre 10 et 30 °C [33]. Elle dépend de la température au-dessus d'une certaine valeur appelée valeur critique et est considérée comme le résultat d'une formation très rapide de siliciure. La nucléation est la formation de groupes atomiques (grappes) qui se développent pour former des îles, qui à leur tour forment une couche continue [34]. Le mécanisme de nucléation se produit à une température critique, c'est-à-dire que la dépendance à la température est nécessaire pour la formation du siliciure avec son énergie énérgisante. Cela se passe donc à l'interface entre ces derniers.

### I. 9. La diffusion en couches minces :

Les couches minces sont des matériaux constitués des atomes qui se déplacent grâce aux vibrations des atomes dont l'amplitude augmente avec la température. Ce déplacement s'explique par plusieurs mécanismes différents (Figure I.16), mais seuls deux sont possibles : le mécanisme interstitiel, pour les atomes de petites dimensions (C, H, O, N, B) et le mécanisme lacunaire pour les autres. La diffusion s'opère suivant ces deux mécanismes, on parle de diffusion en volume. Lorsque le matériau diffuse sur une surface spécifique, les particules du matériau diffus interagissent avec les atomes de la surface, où la vitesse de diffusion augmente par différentes voies tel que : les courts-circuits de diffusion, qui sont par exemple les dislocations, mais surtout les joints des grains, cette diffusion accélérée dans les joints des grains a des conséquences importantes dans le phénomène de changement de phases dans les couches minces.



**Figure I.16 :** Schéma des principaux mécanismes de diffusion : 1) Échange simple ; 2) Échange cyclique; 3) Lacunaire; 4) Interstitiel direct; 5) Interstitiel indirect « crowdion ».

### Diffusion des métaux de transitions dans le silicium :

La diffusion des métaux dans le silicium doit précéder la nucléation de nouveaux composés lors de l'interaction des espèces diffuses à l'interface, ce qui conduit à des défauts dans le réseau du silicium. Par conséquent la diffusion des métaux dans le silicium monocristallin se fait principalement par l'intermédiaire des interstices et des lacunes. Ces défauts augmentent lors de recuits thermiques et induisent des modifications de concentration dans les grains, ce qui accroît la mobilité du métal dans le silicium. Ainsi les métaux nobles et presque nobles présentent un coefficient de diffusion supérieur au coefficient d'autodiffusion dans le silicium [35]. Il est établi que, par rapport aux couches épaisses, les grains des films minces polycristallins génèrent une grande proportion de combinaisons atomes-défauts, associées à l'existence de zones limites telles que les dislocations, les imperfections de surface, les limites interraciales et surtout les joints des grains. Dans ces régions, les atomes présentent une diffusivité plus élevée que dans les réseaux parfaits du fait que les sauts de diffusion ont lieu avec une énergie plus basse que  $E_L$ .

Ainsi, les hétérogénéités et les défauts servent de chemin de diffusion sur des longueurs égales à  $2(Dt)^{1/2}$ .

### Systèmes binaires Ni-Fe :

Les alliages binaires de métaux de transition Ni-Fe est un mélange de deux éléments très proches l'un de l'autre (rayons atomiques voisins, structures électroniques semblables...etc) le tableau suivant représente quelques propriétés physiques des deux éléments nickel et fer (Tableau I.2). Ils sont connus depuis longtemps, ils ont été intensivement étudiés et utilisés dans beaucoup d'applications technologie et dans l'industrie.

**Tableau I.2 :** Propriétés physiques des deux éléments de Ni et Fe.

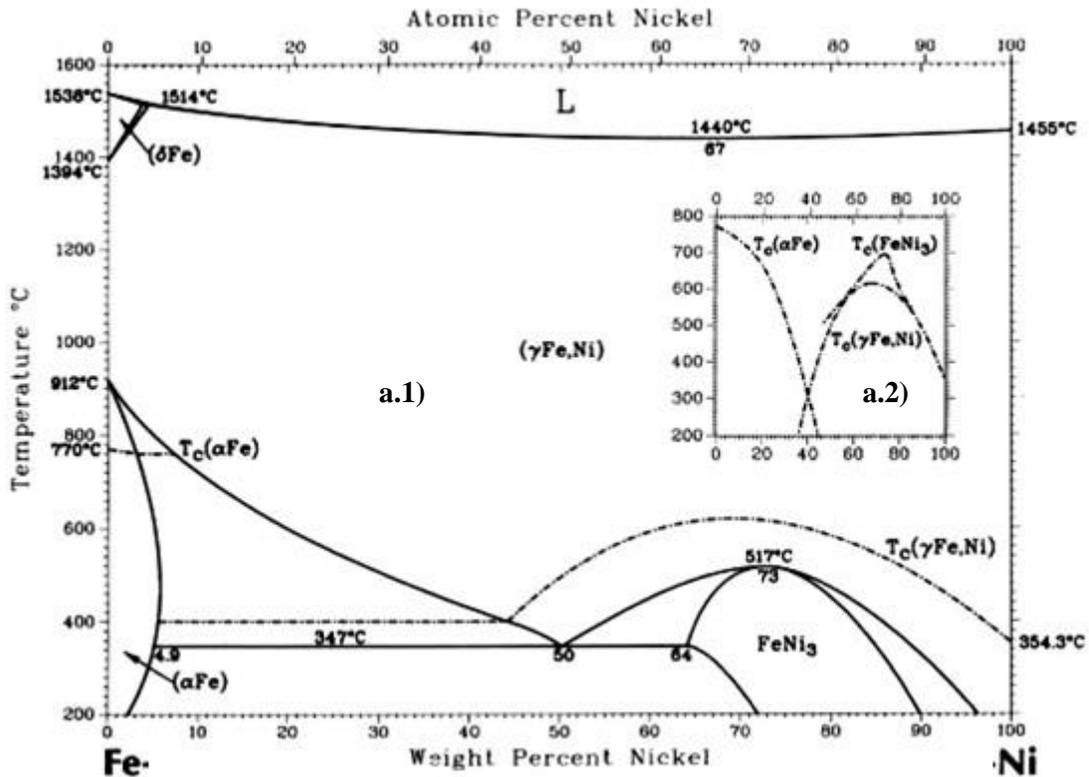
Propriétés physiques	Fe	Ni
Configuration électronique	3d6 4s2	3d8 4s2
Réseau cristallin	cc	cfc
Numéro atomique (Z)	26	28
Rayon métallique (Å)	1.27	1.24
Point de fusion (°C)	1553	1453
Dilatation thermique 20 °C ( $10^{-6}/^{\circ}\text{C}$ )	12	13
Résistivité à 20 °C ( $10^{-8}\Omega\text{m}$ )	10	7.8

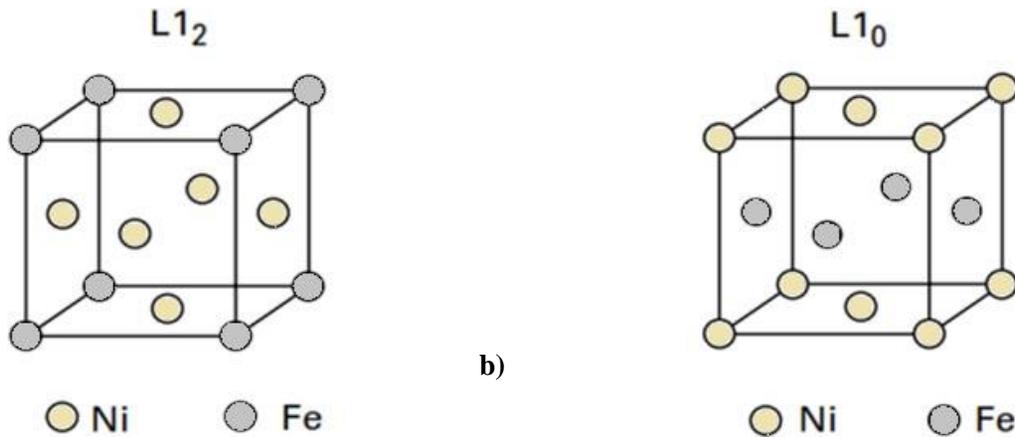
Température de Curie (°C)	770	350
Moment magnétique ( $\mu_B$ )/atome	2.274	0.6

L'étude des leurs propriétés est importante car elle nous permet de comprendre et de prévoir leurs comportements de base dans différentes circonstances [36].

Le diagramme de phase du système Ni-Fe, montré sur la figure I. 17 (a), révèle la présence de plusieurs types de phases : la phase  $\alpha$ (cc), la phase  $\gamma$ (cfc),  $\gamma_1$  la phase paramagnétique de Ni faible,  $\gamma_2$  la phase ferromagnétique riche en Ni,  $\gamma'$  la phase ordonnée  $Ni_3Fe$  et  $\gamma''$   $FeNi$  ordonné.

Le système nickel-fer cfc présente deux types d'ordres. Le premier type  $L1_2$  la composition est similaire à la composition  $Ni_3Fe$  a été découvert depuis très longtemps et le second type  $L1_0$  au voisinage de  $NiFe$  n'est connu que depuis les années soixante (Figure I.17 (b)) [37]. On distingue que les alliages NiFe contenant une proportion autour de 80% de Ni (ou Permalloy) sont caractérisés par une très faible coercivité, une perméabilité importante et une magnétostriction nulle [38].

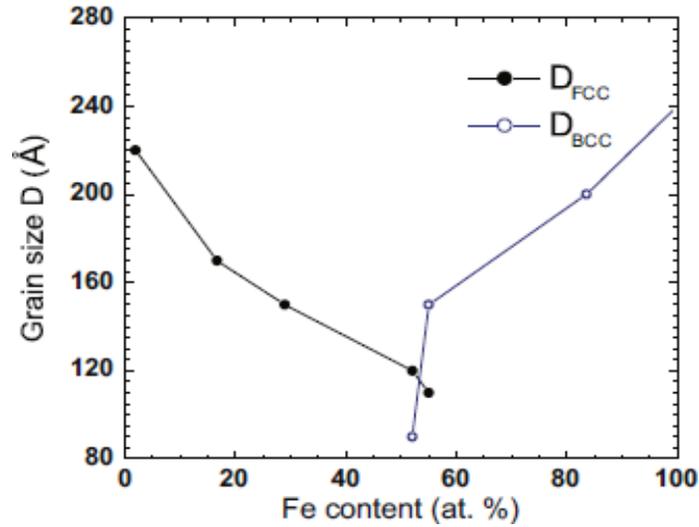




**Figure I.17:** a.1) Diagramme de phase proposé par K.B. Reuter et al [24], a.2) diagramme métastable représente la température de curie pour des alliages NiFe obtenus par fusion en fonction de la teneur en nickel. b) Les types d'ordres de système NiFe de structure cubique a face centrée [25].

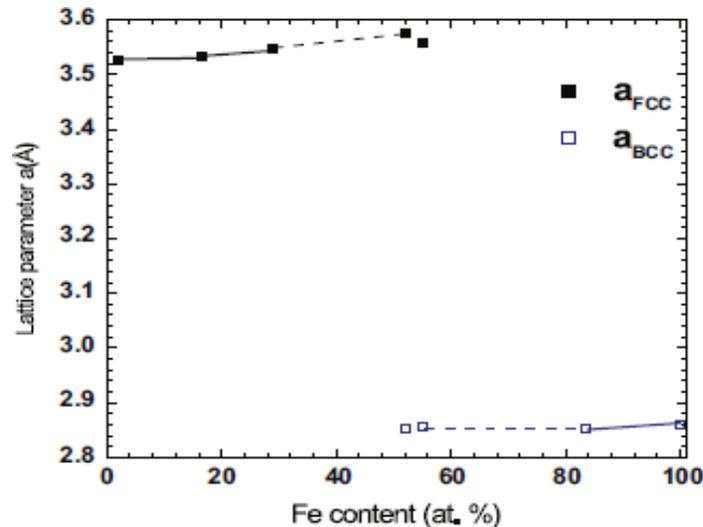
### I. 12. État de l'art des matériaux nanostructurés $Ni_{75}Fe_{25}$ élaborées par voie physique :

Les alliages de  $Ni_{75}Fe_{25}$  appelés communément permalloy sont connus depuis longtemps, ils ont été étudiés et utilisés dans des nombreuses applications et domaines. En raison de la diversité des technologies et des différentes conditions de production de ces alliages, nous mentionnerons quelques travaux récents liés aux couches minces de permalloy. On peut citer les travaux de Svalov et al. [39] ont intéressé a étudié des couches minces de permalloy de 100 nm déposées sur du verre par pulvérisation. Les auteurs ont remarqué un champ coercitif inférieur à 2Oe et une texture des couches minces de Py selon la direction (111). Gao et al. [40] ont utilisé le silicium (111) comme substrat pour déposées des couches minces de permalloy par voie électrochimique. Les auteurs ont étudié la composition des films, leurs structures et leurs propriétés magnétiques. N. Guechi et al. [41] ont utilisé la méthode d'évaporation pour préparer des couches minces  $Fe_xNi_{100-x}$  ( $2 < x < 100$ ) avec des épaisseurs comprises entre 110 nm à 150 nm et évaporées sur substrat en Si(100). Les autres ont observé la présence des deux pics (111) et (200) correspondent à la phase cfc dans la région riche en nickel ( $x = 2, 10, 17, 28\%$ ) avec une texture de  $\langle 111 \rangle$  et  $\langle 110 \rangle$  dans les régions riches en nickel et riches en fer respectivement. Cette étude a révélé que les films présentent une structure polycristalline. La variation de la taille des cristallites peut expliquer par les nombres des atomes de fer ( $Fe_x$ ) participant de à la formation de la phase cristalline, ce nombre diminue dans la région riche en Ni. La taille des cristallites diminue à partir 220Å pour ( $x = 2$ ) à 110Å pour ( $x = 55$ ) en raison de la diminution du volume de la phase formée d'une structure cfc. Il aussi a montré que le champ coercitif diminue de 90Oe pour la plus faible teneur en fer à 0,67Oe pour le film  $Ni_{85}Fe_{15}$ .



**Figure I.18 :** L'évolution de la taille des grains D avec x la % Fe [41].

Ils ont observé une diminution de la taille des grains avec l'augmentation du pourcentage de fer (x), la taille des cristallites passe de 220Å (x=2%) à 110Å (x=55%) en raison de la diminution du volume de la phase formée d'une structure cfc, la variation de contrainte est augmenté avec le pourcentage de fer (Relation de corrélation directe). Ils ont aussi remarqué une augmentation du paramètre de maille  $a=3.52\text{Å}$  à  $a=3.57\text{Å}$  (x=52%).



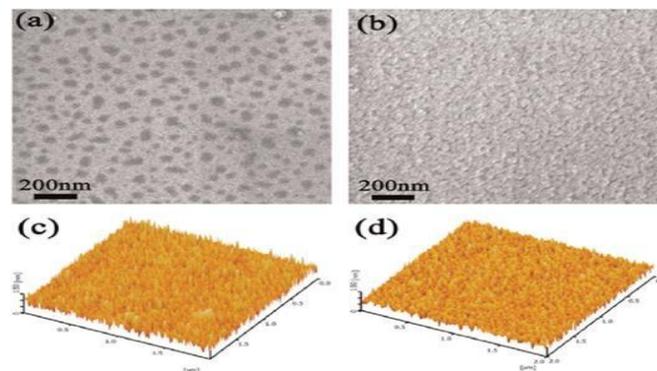
**Figure I.19 :** L'évolution du paramètre de maille avec x la % Fe [41].

O. Cherrad [42] a étudié l'effet de l'épaisseur sur la composition structurale, la morphologie de surface et les propriétés électriques des couches minces de permalloy (Py)  $Ni_{80}Fe_{20}$  déposées sur du

substrat Si(100) pour des épaisseurs allant de 110 nm à 505 nm. Il a observé qu'avec la croissance de l'épaisseur, l'analyse des spectres XRD révèle qu'une structure polycristalline. Le paramètre de maille égal 3.5385Å et la taille des grains se situe entre 56 Å à 134 Å.

A. Guittoumet al. [43] ont déposé une série des films minces Py ( $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ ) sur différents substrats de verre, Si (100) et Si (111) avec une épaisseur allant de 13 nm à 190 nm. Les auteurs ont montré les films ont été évaporés sur Si (111) fournit une forte direction préférée dans la direction (111) pour les échantillons de plus de 85 nm et les films évaporés sur verre et Si (100) présentent une faible orientation suivante (111). Les auteurs ont obtenu également pour la plupart de ces échantillons et la taille des grains des films permalloy pour les trois substrats utilisés varie entre 100 Å et 480 Å. D. V. Murzin et al. [44] qui se sont intéressé à l'étude des propriétés magnétiques de permalloy à base de cristaux pour l'application de capteurs. Dans cette étude les films de permalloy ( $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ) fabriqué par la technique pulvérisation magnétron DC en utilisant un substrat de Si. Les auteurs ont étudié l'effet de la composition des films sur les propriétés structurales et magnétiques de films. Ils ont obtenu une diminution de défauts comme aspect structural de l'échantillon et ont observé la présence de structure morphologique homogène pour ces couches.

Q.H. Lu et al. [45] qui ont étudié l'effet de recuit de et l'anisotropie magnétique des films minces de  $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$  déposées sur du Si(100) type n par pulvérisation. Les auteurs ont montré, à partir des micrographies MEB et AFM une surface aplatie et la rugosité de la surface RMS, diminue de 0,23 nm à 0,15nm après le recuit (voir Figure I. 20).



**Figure I.20 :** Les micrographies MEB des couches minces NiFe (100nm) déposées sur n-Si, (b) SEM image of recuit à 250 °C, (c) images AFM de (a), (d) image AFM de (b) [46].

On peut également citer les travaux de A. R. Chavan et al. [47] qui ont utilisé la technique de pyrolyse par pulvérisation chimique pour déposer des couches minces de ferrite de nickel

## **Chapitre I : Synthèse Bibliographique et état de l'art sur les Matériaux Nanostructurés Ni-Fe**

---

(NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>) sur des substrats de verre. Les films recuits ont été caractérisés par diffraction des rayons X (XRD), le champ microscopie électronique à balayage (FE-SEM). L'analyse du diagramme DRX a révélé la formation d'une structure cubique monophasée et le NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> est orienté dans le plan (311). Les micrographies FE-SEM montrent que la taille des grains augmente avec l'augmentation de la température de recuit et qui varie entre 19 et 28 nm, ce qui confirme la nature nanocristalline du produit préparé.

### **Conclusion :**

Dans ce chapitre, nous avons présenté les concepts de base des matériaux magnétiques et des nanomatériaux, ainsi que les différentes méthodes utilisées pour produire ces matériaux et nous avons pris connaissance de quelques travaux antérieurs qui ont examiné les couches minces de Permalloy, qui est la base de notre étude.

### References bibliographies

- [1] S. C. Tjong and H. Chen, nanocrystalline materials and coatings, 45, 1-88 (2004).
- [2] K. Lu, nanocrystallization, structure and properties, 16, 161-221 (1996).
- [3] L. Darozczi, D. L. Beke, G. Posgay, G. F. Zhou and H. Bakker, nanostructured materials, 2, 515(1993).
- [4] H. Gleiter, nanocrystalline materials, 33, 223-315 (1989).
- [5] N. Boukherroub, effet des conditions de broyage sur les propriétés structurales et magnétiques des nanomatériaux FeAl élaborés par mécanosynthèse, thèse de doctorat, Université M'Hamed Bougara, 2015.
- [6] D. Bloch, AFSSET (agence française de sécurité de l'environnement et du travail), 253, (2006).
- [7] A. Zelenakova, D. Oleksakova, J. Degmova, J. Kovac, P. Kollar, M. Kusy, and P. Sovak, journal of magnetism and magnetic materials, 316, 519–522 (2007).
- [8] R.W. Siegel, nanostructured materials, 3, 1–6 et 1–18 (1993).
- [9] N. Nahouli, étude et réalisation d'un hystérésis-graphe d'un système de mesure du cycle d'hystérésis, mémoire d'ingénieur CNAM en électrotechnique, Université Libanaise, 2014.
- [10] C. Kittel, fourth edition (John Wiley & Sons) increases, (1971).
- [11] B. D. Cullity, Addison - wesley, reading MA, (2009).
- [12] M. Cyrot et J. P. Yonnet, édition EDP (équation aux dérivées partielles) sciences, 40- 110 (2000).
- [13] C. Kittel, 7ème édition dunod, 415-483 (1998).
- [14] A. Mansri, processus d'aimantation dans les matériaux doux à base de fer- représentation des pertes en régime dynamique, thèse de doctorat, Université Badji Mokhtar, 2014.
- [15] S. Mlle. Benayed, étude des propriétés structurales et mécaniques de l'alliage Heusler quaternaire CoFeScP, mémoire de master, Université Abdelhamid Ibn Badis, 2017.
- [16] B. V. Neamtu, matériaux compacts magnétiques doux obtenus à l'état nanocristallin à partir de poudres d'alliages Ni-Fe-X issues de mécanosynthèse, thèse de doctorat, Université de Grenoble, 2010.
- [17] S. Benmoussa, étude de l'aimantation et de l'hystérésis des matériaux ferromagnétiques doux (Fe, FeSi), mémoire de master, Université Kasdi-Mermah, 2017.

- [18] W. Maalej, caractérisations physicochimiques et structurales, propriétés et structures magnétiques de séléniates et molybdates basiques de métaux de transition, thèse de doctorat, Université de Strasbourg, 2011.
- [19] F. Popa, élaboration et étude de poudres magnétiques douces (Ni-Fe, Ni-Fe-X, Ni-Fe-X-Y) à l'état nanocristallin par broyage mécanique de haute énergie, thèse de doctorat, Université Technique de Cluj-Napoca (Roumanie) et Université Joseph Fourier de Grenoble, 2008.
- [20] A. Miouat, identification-optimisation paramétrique et quantification des pertes dans les matériaux ferromagnétiques doux, thèse doctorat, Université de Batna, 1996.
- [21] G. Herzer, institute of electrical and electronics engineerstransaction on magnetics, 26, 1397-1402 (1990).
- [22] M. E. McHenry, M. A. Willard and D.E. Laughlin, progress in materials science, 44, 291-433 (1999).
- [23] G. T. Stauf, D. C. Driscoll, P. A. Dowben. thin solid films, 153, 421 (1987).
- [24] T. Kada, M. Ishikawa, H. Machida, A. Ogura, Y. Ohshita, K. Soai, journal Crystal. Growth, 275, 1115– 1119(2005).
- [25] A. Richardt, A. M Durand, Edition INFINE Paris, 1994.
- [26] AFSSET (Agence Française de Sécurité Sanitaire de l'Environnement et du Travail), « les nanomatériaux », France, 2006.
- [27] Y. Clavel, revue de salon international des microtechniques, France, (2006).
- [28] G. K. Wehner, physical review, 690 (1971).
- [29] L. Baghriche, élaboration et caractérisation des couches minces d'oxyde de zinc et sulfure de zinc préparées par spray ultrasonique, thèse de doctorat, Université Frères Mentouri, 2015.
- [30] S. Lamarni, étude des propriétés structurales et magnétiques des couches minces de permalloy élaborées par évaporation sous vide et électrodéposition, thèse de doctorat, Université Mouloud Mammeri, 2016.
- [31] R. Buiz and G. W. Rub-off, physical review, 15, 115 (2015).
- [32] N. Benouattas, thèse de magistère, Université de Constantine, 1993.
- [33] M.A. Nickolet, G. einspenech and B.Larrae, academic press, 330, (1983).
- [34] A.Richard and I.Richard, Edt INFINIE, (2000).
- [35] R. W. Ballufi and J. M. Makeley, thin solid films, 25, 363 (1975).
- [36] A. J. Panas and D. Panas, high temperatures-high pressures, 38, 63-78 (2009).
- [37] J. P. Eymery and J. Teillet, techniques de l'ingenieur, 2600 (1994).

- [38] A. Guittoum, étude des propriétés structurales, microstructurales et magnétiques des nanoparticules FeNi, thèse de doctorat, Université du Sétif, 2008.
- [39] A.V. Svalov, G.V. Kurlyandskaya, B. González Asensio, J. M. Collantes and A. Larrañaga, materials letters, 152, 159-162 (2015).
- [40] L. J. Gao, P. Ma, K. M. Novogradez, and P. R. Norton, journal applied physic, 81, 7595-7599 (1997).
- [41] N. Guechietal, A. Kharmouche, A. Guittoum and S. Colis, the european physical journal applied physic, 441, 47–53 (2014).
- [42] O. Cherrad, materials and thin films synthesis, characterizations and applications structural, surface morphology and electrical properties of evaporated permalloy Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub> /Si (100) thin films, these de doctorate, Universities de Ferhat Abbas, 2018.
- [43] A. Guittoum, A. Layadi, A. Bourzami and G. Schmerber , the european physical journal applied physic, 58, 20301(2012).
- [44] D. V. Murzin, V. K. Belyaev, F. Groß , J. Gräfe , M. Rivas and V. V. Rodionova , japanese journal of applied physics, 59, 1-6 (2020).
- [45] Q.H. Lu, R. Huang, L. S. Wang, Z. G. Wu, C. Li, Q. Luo, S. Y. Zuo, J. Li, D.L. Peng, G.L. Han, P.X. Yan, journal of magnetism and magnetic material, 394, 253–259(2015).

**Chapitre II :**  
**Méthode d'élaboration & Techniques de**  
**Caractérisation**

Ce chapitre comprend deux parties. Dans la première partie, nous exposons brièvement la méthode d'élaboration utilisée pour la préparation des couches minces nanocristallines ( $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ ), l'évaporation sous vide et dans la seconde partie, nous présentons de façon détaillée l'intérêt, le principe de fonctionnement d'appareillage et la description du dispositif expérimental de chaque technique de caractérisation utilisée : la diffraction des rayons X en mode rasante (GIXRD), la technique de Microscopie électronique à balayage (MEB) et microscopie à force atomique (AFM).

### **II. 1. Méthode d'élaboration :**

#### **II. 1. 1. L'évaporation sous vide :**

L'évaporation sous vide est un processus de dépôt par voie physique en phase vapeur (PVD), cette technique utilisée pour déposer des couches minces. Le principe de la méthode de l'évaporation sous vide repose sur deux processus élémentaires, l'évaporation d'une source chauffée et la condensation à l'état solide de la matière évaporée sur le substrat. La vapeur créée se présente sous forme des atomes ou des molécules, cette vapeur est le matériau que nous voulons déposer, la source peut être activée par chauffage direct par bombardement électronique (BE) ou par effet joule (couplage d'une génératrice haute fréquence) [1].

#### **II. 1. 1. 1. L'évaporation par effet joule :**

L'évaporation thermique est utilisée car elle est capable de fabriquer des films minces granulaires dans le domaine de nano. Les matériaux obtenus sont généralement homogènes, ce qui les rend bien adhérents aux substrats. Les matériaux évaporés sont placés dans un élément chauffant sur lequel passe un très fort courant électrique, dans le cas où les films sont déposés pour chaque composant que l'individu vaporise indépendamment des autres éléments selon la préférence de Raul. Les alliages ont différents composants, le taux d'évaporation est plus élevé pour le composant avec une pression de vapeur plus élevée. Par conséquent, nous ne pouvons pas utiliser cette source à long terme. Pour réduire cet effet : nous utilisons soit une évaporation directe à court terme si les composants sont comprimés à proximité (des poudres granulaire), soit nous utilisons une évaporation flash qui peut vaporiser les films en petites quantités, car elle dépose les petits granules des alliages un par un sur une bande de tantale ou de tungstène. Une source d'alliage spécifique peut être utilisée car chaque composant est évaporé séparément. La source est contrôlée par un courant électrique [2-4].

### II. 1. 1. 2. Description de l'évaporateur thermique sous vide :

#### II. 1. 1. 2. 1. L'enceinte d'évaporation :

Il s'agit d'un cylindre en verre ou en acier inoxydable d'un diamètre de 0,37 m et d'une hauteur de 0,5 m. Le bas et le haut du cylindre sont sur des disques en duralumin. La nacelle a un couvercle gainé sphérique, de l'alumine ou de tungstène insérée entre deux barres de l'électrode à l'intérieur du boîtier. Ces deux barres sont chauffées jusqu'à un courant de 200 ampères, selon la forme et la nature de la nacelle et des résistances connectées. La partie extérieure est traitée avec un couvercle mobile portable sur l'unité de rouille, pour réduire le temps de dépôt. Le support de substrat est placé à une hauteur de 0,17 m, ce qui nous permet d'uniformiser l'épaisseur des couches.

#### II. 1. 1. 2. 2. Groupe de pompage :

Il est composé d'une pompe à plumes primaire et d'une pompe à huile secondaire ou turbo-moléculaire en forme de chaîne. Le vide initial a une échelle de Pirani sous une pression inférieure à  $10^{-3}$  mbar. Le vide secondaire est contrôlé par l'échelle de Penning, qui atteint une pression primaire de  $7.10^{-7}$  mbar après décharge.

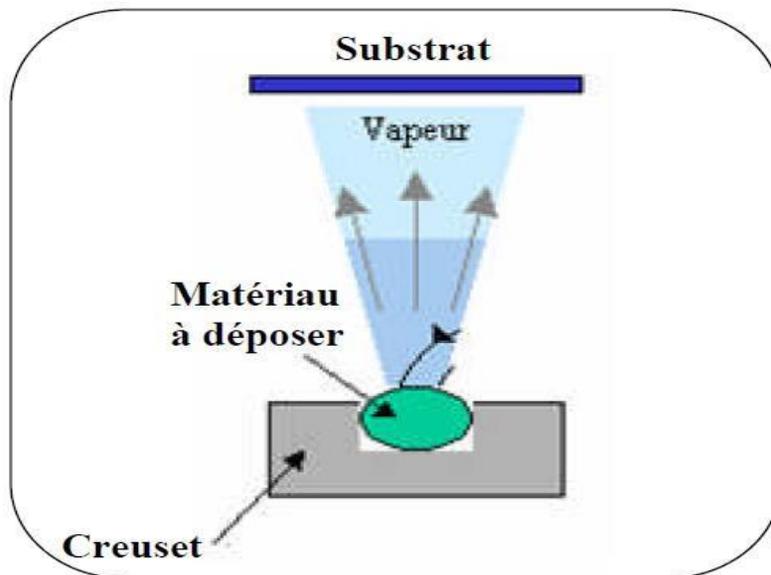


Figure II.1 : Principe de l'évaporation thermique.

### II. 2. Nettoyage des substrats et élaboration des échantillons :

#### II. 2. 1. Les substrats :

Les substrats sont des bases matériaux utilisées pour soutenir et développer des films minces dans la physique et sont utilisés dans des nombreux domaines tels que la géologie (substrat géologie est la

formation géologique), électronique (un substrat est un support de silicium pur) et mécanique...etc. Pour la fabrication de l'alliage sous forme de couche mince, le silicium s'avère être intéressant comme substrat car il permet l'intégration d'une méthode pratique pour fabriquer des couches minces magnétiques avec la technologie du silicium. Il existe un grand nombre des types des substrats tels que : silicium, quartz et le verre. Dans ce travail, les substrats utilisés sont le silicium monocristallin commercialisé (Si (100)) et les lames de verre d'épaisseur de 1 mm. Ces substrats ont des faces parallèles et ont été découpés sous forme de carrés de dimensions de dimension 1cm x 1cm.

### II. 2. 2. Préparation des échantillons :

#### II. 2. 2. 1. Nettoyage du substrat :

Le nettoyage des substrats est essentiel pour des couches minces de bonne qualité. Il s'agit d'une étape importante, visant à éviter la contamination des surfaces et à séparer les couches des dépôts. Il ne devrait pas y avoir de rayures sur la surface du substrat. Le processus de nettoyage élimine toutes les impuretés sur le substrat (graisse, poussière ...etc) [5].

Les échantillons ont été nettoyés dans un bain à ultrasons en suivant ces étapes :

- Rincer à l'eau distillée.
- Placer le substrat sous ultrasons au centre de l'acétone pendant 15 minutes, car il a été lavé à température ambiante. Ensuite, mettez dans le bain de méthanol pendant 15 minutes pour éliminer les impuretés à la surface du substrat, puis nettoyez sous ultrasons avec de l'eau distillée.
- Séchage du papier optique.
- Dans le cas des substrats réactifs à l'air (silicium), ils sont décapés dans un bain d'acide fluorhydrique dilué pour éliminer la couche oxydante à la surface, et ce processus est effectué immédiatement avant le dépôt. Pour éviter la formation d'oxyde lors du stockage du substrat.

#### II. 2. 3. Technique d'élaboration des couches minces :

Pour l'élaboration des couches minces de permalloy  $Ni_{75}Fe_{25}$  sur deux types des substrats, nous avons utilisé un évaporateur de marque MECA 2000 disponible au laboratoire ENMC à l'université de Ferhat Abbas de Sétif (Figure II.2).

## Chapitre II : Méthode d'élaboration & Techniques de caractérisation

---

L'évaporateur est principalement constitué d'une chambre de dépôt et d'un système de vide. Il est équipé des éléments suivants :

a) L'enceinte de l'évaporateur MECA 2000 est constituée d'une chambre cylindrique en acier, de 29 cm de diamètre interne, de 31 cm de diamètre externe et de 36 cm de hauteur.

A l'intérieur de l'enceinte, on peut créer un vide inférieur à  $3.10^{-7}$  mbar (voir la figure II.2 (b)). On trouve à l'intérieur de l'enceinte :

- Un porte substrat en acier, démontable, monté sur une tige en acier.
- trois électrodes en cuivre sont fixées au bas de l'enceinte. Les creusets sont fixés sur ces électrodes.
- Un cache mobile, qui est une tôle métallique, est placé entre le porte substrat et le creuset. Il est fixé à un bras mobile de l'extérieur. Ce cache est utilisé pour masquer le substrat lors du décapage ionique et lors de la pré-évaporation.
- Un autre cache monté sur le trou d'évacuation reliant l'enceinte au groupe de pompage pour éviter l'intrusion de corps étrangers dans ce dernier.
- Une microbalance à quartz de marque MAXTECH-TM 350-ASF140 qui permet de mesurer l'épaisseur des couches déposées et leurs vitesses d'évaporation, ceci après avoir injecté l'impédance acoustique et la densité du matériau que l'on désire évaporer et sa fréquence de résonance donnée par la relation :

$$f_0 = \frac{N}{d_q} \quad (\text{II.1})$$

N : constante donné par la relation  $N=1.6710$  Hz mm.

$d_q$ : épaisseur de quartz (mm)  $e=0.33$ mm.

La lecture de la vitesse d'évaporation et de l'épaisseur de la couche déposée et de la fréquence du pastis de quartz se fait directement sur le moniteur.

b) Grâce à un sélectionneur (Figure II.2(b)) on choisit les électrodes souhaitées pour les relier à l'alimentation. L'alimentation en courant est capable de délivrer un courant de 200A sous une tension de 20V.

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

d) 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

## Chapitre II : Méthode d'élaboration & Techniques de caractérisation

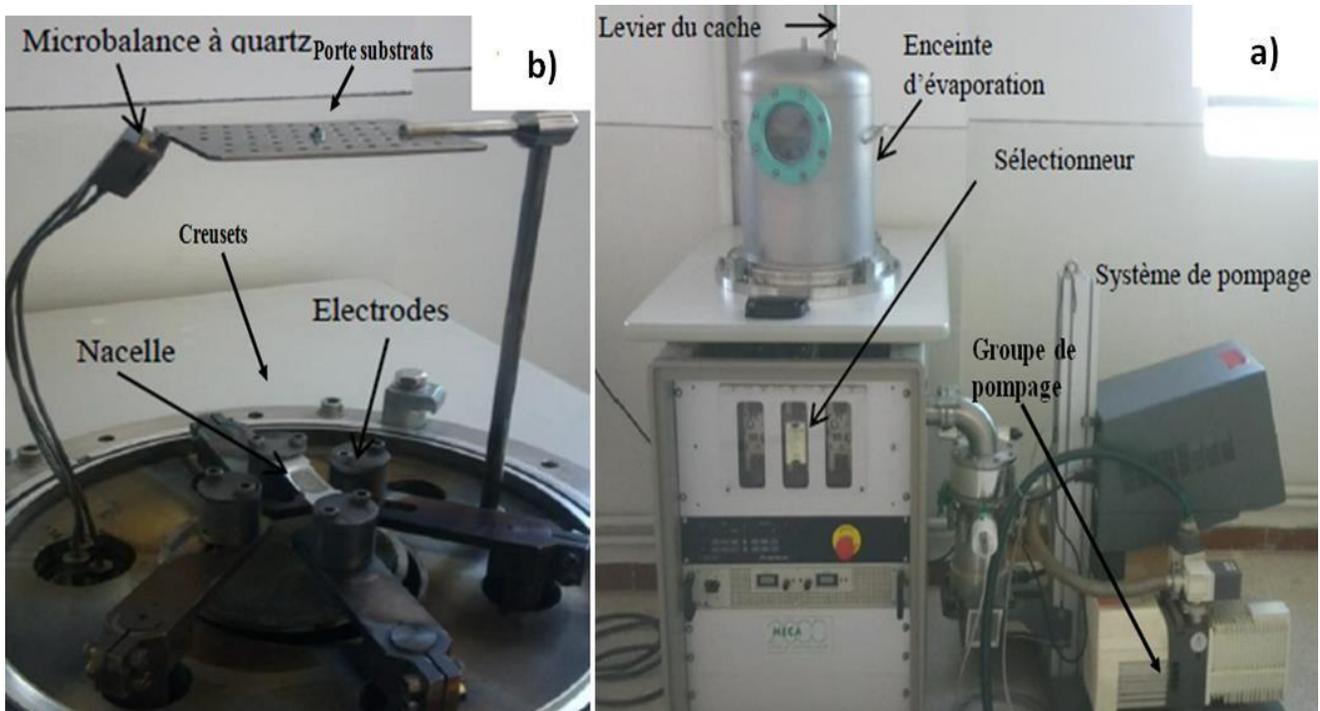
contrôleur simple voie de marque ALCATEL, type ACS1000. L'ensemble (jauge + contrôleur) mesure la pression totale de l'enceinte à vide.

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

Une pompe primaire ALCATEL model Pascal 2015SD.

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

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.



**Figure II.2 :** Appareillage utilisé pour l'élaboration des couches minces de Py par voie physique : a) Evaporateur MECA 2000, b) La chambre de dépôt.

### II. 2. 4. 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 ( $m$ ) [6].

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

C : est la force de rappel.

Lorsqu'une couche mince est déposée sur la plaquette de quartz, la fréquence  $f$  du quartz change de  $\Delta f$  et la masse augmente de  $\Delta m$  telle que :

$$\frac{\Delta f}{f} = \frac{\Delta m}{m} \quad (\text{II.3})$$

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.

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

$f_0$  : la fréquence propre du quartz sans dépôt.

$f$  : la fréquence du quartz chargé d'une masse  $\Delta m$ .

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

$$\Delta f = \left(1 - \frac{\Delta m}{2m}\right) \Delta f \quad (\text{II.5})$$

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 comme XRR (X- Ray Réflectivité) et aussi 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.

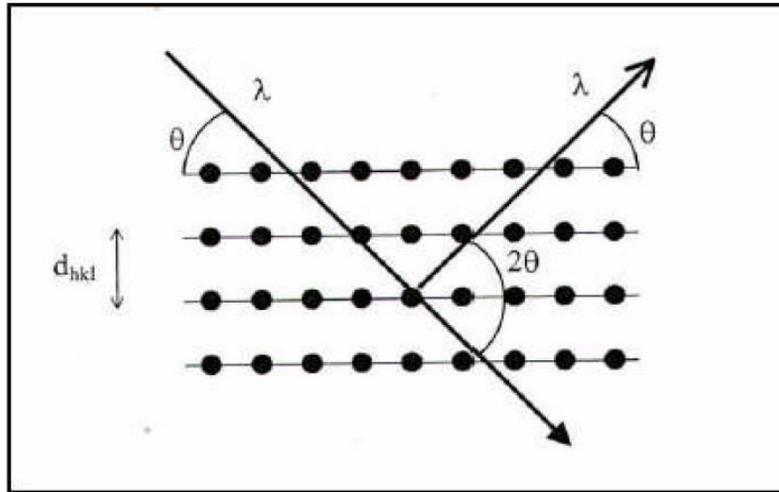
### II. 3. Méthodes de caractérisation :

#### II. 3. 1. Diffraction des rayons X (DRX) :

La technique de la diffraction des rayons X est une méthode d'analyse idéale pour l'étude d'échantillons solides cristallisés. Permet la caractérisation fine des matériaux cristallisés massif, poudres ou sous forme des couches minces. Elle est utilisée pour déterminer la structure, la phase et les orientations cristallographiques des matériaux cristallisés (mono ou polycristallins) [7].

### II. 3. 1. 1 Principe d'analyse :

Le principe de la technique de diffraction des rayons X est basé sur la projection d'un faisceau de rayons X monochromatique sur la cible (le matériau cristallin) et interagit avec le nuage électronique de ces matériaux, qui est en partie réfléchi par certains plans atomiques cristallins (Figure II.3).



**Figure II.3 :** Famille de plans cristallins en condition de Bragg.

Afin d'obtenir la distance entre ces plans, on utilise la relation de Bragg [7] :

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

Ou :  $d_{hkl}$  : Distance interréticulaire correspondante à une famille de plans désignés par les indices de Miller (h k l).

$\theta$  : Angle d'incidence des rayons X, appelé angle de Bragg.

N : L'ordre de diffraction.

$\lambda$  : Longueur d'onde des rayons X incident.

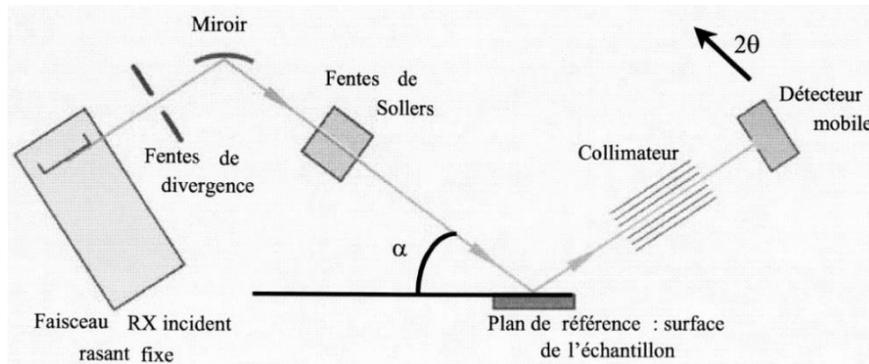
- ✓ Le faisceau X incident est envoyé sur un ensemble des cristallites, orientés aléatoirement, suffisamment nombreux pour que toutes les orientations soient réalisées. Lorsqu'un faisceau parallèle de rayon X monochromatique de longueur d'onde  $\lambda$  (comprise entre 0.1 Å (rayons X durs) et 50 Å (rayons X mous)) est rayonné sur un matériau cristallin avec un angle d'incidence  $\theta$ , les plans atomiques réticulaires (hkl) du cristal, équidistants de  $d_{hkl}$  (distances interréticulaire), vont se comporter comme des miroirs parallèles et réfléchir l'onde électromagnétique, induisant un phénomène de diffraction.
- ✓ Après la réaction, nous obtenons des informations de diffractogramme qui un enregistrement de l'intensité diffractée en fonction de l'angle  $2\theta$  formé avec le faisceau incident. Le dépouillement

des diffractogrammes permet de remonter à un grand nombre d'informations sur les caractéristiques structurales et microstructurales de l'échantillon telles que la structure cristalline, la taille des cristallites, les contraintes et la texture et on peut calculer le paramètre de maille ( $a$ ) par la relation suivante :

$$a = d_{hkl} \sqrt{h^2 + k^2 + l^2} \quad (\text{II. 7})$$

### II. 3. 1. 2 Appareillage :

Le dispositif de diffraction des rayons X en incidence rasante GIXRD (Grazing X-ray Incidence Diffraction en anglais) contient des pièces importantes illustrées dans la figure suivante :



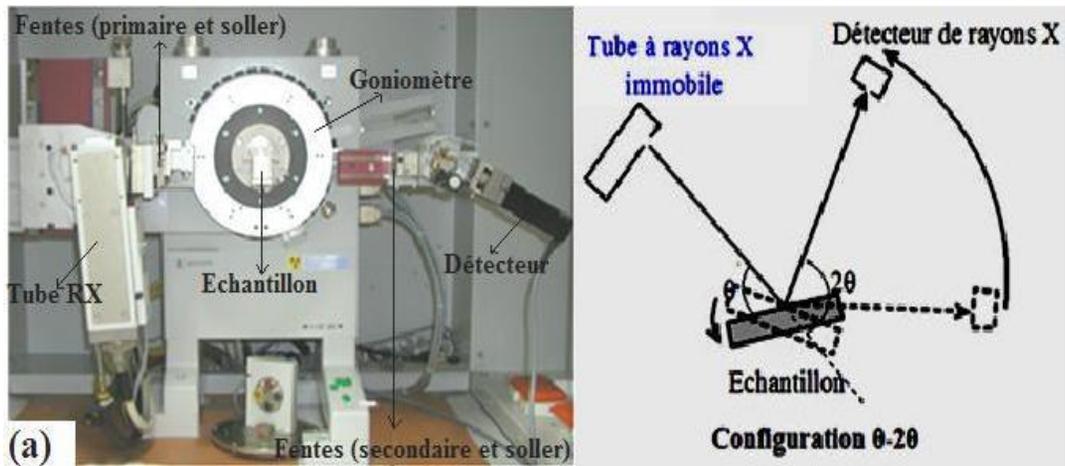
**Figure II.4 :** Configuration du montage de diffraction des rayons X en incidence rasante.

- Un tube à rayons X est fixé et la partie la plus lourde qui est considérée comme la base du dispositif de diffraction des rayons X car il envoie un faisceau de rayons X vers le miroir, passant à travers une fente de divergence afin de tomber sur la surface de l'échantillon à étudier.
- Les fentes de divergence permettent de traverser les rayons vers le miroir.
- Le miroir est une contrepartie à la source de l'émission de rayons X, car il travaille en contraste avec le rayonnement vers l'échantillon à étudier et à analyser.
- Les fentes de Sollers permettent le passage des rayons X vers l'échantillon.
- L'échantillon est placé sur une porte motorisée, qui est la cible, est exposé au faisceau de rayons X, où il interagit avec ses électrons internes et la diffraction se produit. L'angle que parcourt la porte-échantillon par rapport à la déviation  $\theta$  vaut  $\theta$  tandis que le détecteur parcourt un angle  $2\theta$ .

- Et enfin, le détecteur est un parti la plus importante de l'appareil où il est fixe ne bouge pas, fonctionne pour capturer le rayonnement émis à partir de la surface de l'échantillon à analyser et le traduire en ensemble des spectres.

### II. 3. 1. 3. Dispositif expérimental et paramètres de mesure :

Pour les analyses plus poussées des films minces texturés un diffractomètre du type Bruker 4-cercle (D8Discover) a été utilisé en géométrie Bragg Brentano ( $\theta$ - $2\theta$ ). Dans une telle configuration, l'échantillon est fixe, le tube à rayons X et le détecteur bougent. Le diffractomètre est équipé d'un tube à rayons X avec une source ponctuelle scellé au cuivre et longueur d'onde  $\lambda = 0,15406$  nm). Les mesures de GIXRD ont été réalisées à l'aide d'un balayage du détecteur sous l'angle d'incidence rasante de  $0,5^\circ$ .



**Figure II.4 :** Diffractomètre du type Bruker 4-cercle D8 Discover en géométrie Bragg Brentano ( $\theta$ - $2\theta$ ) [8].

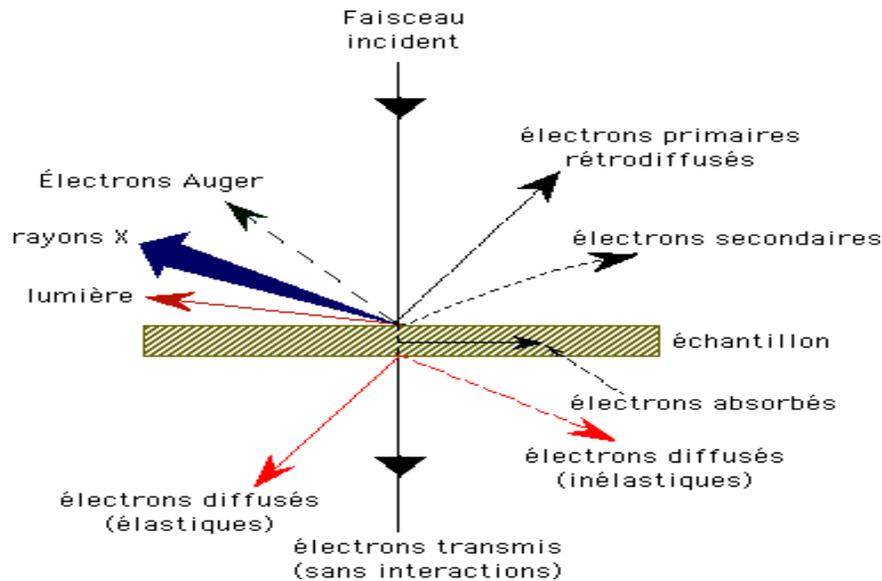
### II. 3. 2. Microscopie électronique à balayage (MEB) :

La microscopie électronique à balayage MEB (Scanning Electron Microscopy, SEM en anglais) est des techniques d'imageries les plus couramment. Capable de produire des images en haute résolution de la surface d'un échantillon, analyser la morphologie, l'état de surface et l'aspect des grains d'une poudre des nanoparticules ou d'un matériau massif. Cette technique dépend de l'analyse des résultats émis lors de l'interaction des électrons issus de la cathode et des matériaux.

#### II. 3. 2. 1. Principe de la technique :

La microscopie électronique à balayage dépend du principe des interactions électroniques. Un faisceau des électrons générés à partir de la source balaie la surface de l'échantillon à analyser avec

des lignes successives et à transmettre le signal du détecteur à un écran cathodique [9]. Produit un signal après la réaction sont : des électrons secondaires résultent de l'interaction inélastique des électrons incidents avec les électrons de l'échantillon, les électrons rétrodiffusés ils sont issus de l'interaction élastique des électrons incidents avec l'échantillon et possèdent des énergies comparables à ses électrons primaires et des électrons Auger et les rayons X il résulte de la collision des électrons primaires avec des atomes de matière solide (Figure II.5).

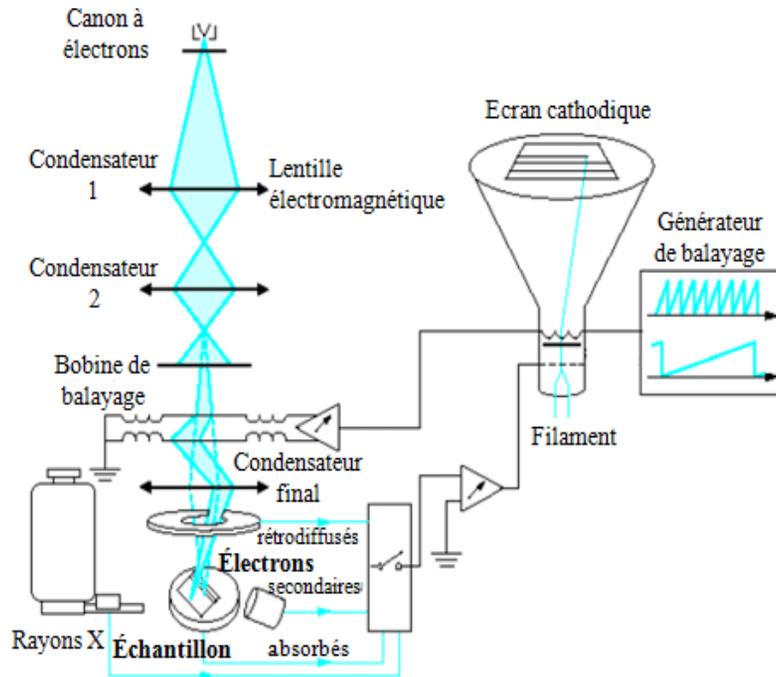


**Figure II.5 :** Différents types des particules émises par l'interaction entre les électrons incidents et l'échantillon [10].

Dans cet appareil, l'échantillon à analyser est soumis à un faisceau primaire d'électrons (électron incident) délivrés par un canon thermoélectronique d'énergie. Suivant le système de détection disponible, l'image est réalisée soit avec des électrons secondaires soit avec des électrons rétrodiffusés et le contraste sera alors associé à la nature chimique du matériau analysé [11]. En plus des fonctions d'observation, le microscope électronique à balayage est équipé d'un spectromètre de dispersion d'énergie (EDX). Il se produit une émission X caractéristique des éléments présents dans le solide. Si l'on concentre une sonde fine des 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.

### Appareillage :

La microscopie électronique à balayage se compose des pièces importantes qui lui permettent de bien faire son travail (Figure II. 6).



**Figure II.6 :** Schéma de principe de microscopie électronique à balayage.

- La première partie de la microscopie électronique est la source des électrons à canon à émission d'électron vers l'échantillon à examiner. Ces électrons ne se rendent généralement pas à l'emplacement souhaité automatiquement et à partir d'ici, nous devons les pointer et cela se fait par des lentilles.
- Le condenseur c'est une lentille faite de fils qui créent des champs électromagnétiques qui travaillent pour rétrécir le faisceau des électrons qui le traverse en appuyant sur les électrons. La lentille du condenseur est l'un des composants les plus importants d'une microscopie électronique.
- La chambre d'échantillon est l'endroit où l'échantillon à examiner est placé où il doit être stable et isolé des toutes les vibrations.
- Le système de pompage à vide travail pour l'observation des échantillons avec le moins de préparation possible.
- Détecteur il fonctionne pour détecter les résultats de l'interaction des électrons avec l'échantillon tel que détecteurs des rayons X et détecteurs des électrons secondaires... etc.

Dans le cadre de ce travail, pour les deux séries d'échantillons, nous avons utilisé le microscope ESEM XL ZEISS Supra 40 qui peut fonctionner avec trois différents modes [12]. L'imagerie en électrons secondaires, l'imagerie en électrons rétrodiffusés et la micro-analyse X (EDX). Rappelons

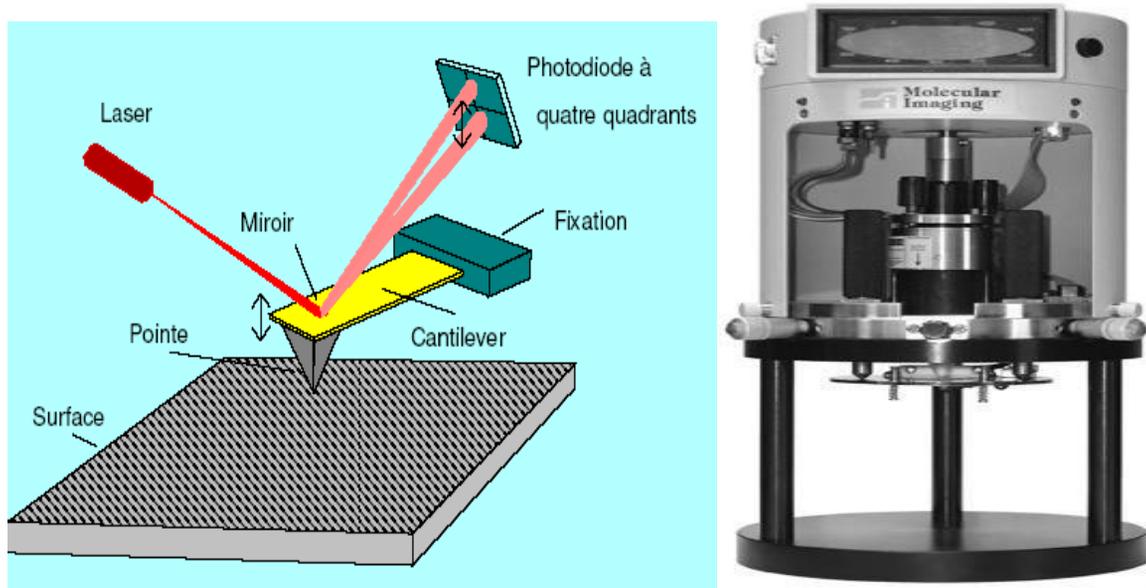
que les électrons secondaires (inélastiques) ont une faible énergie ( $< 50$  eV), ils proviennent donc des couches proches de la surface ( $< 10$  nm) et permettent d'obtenir des images de bonne qualité et de haute résolution (la zone de réémission de ces électrons fait à peu près le même diamètre que le faisceau, soit environ 10 nm) [13]. Ces électrons permettent d'obtenir des renseignements sur la topographie de l'échantillon. En revanche, ils donnent peu d'information sur le contraste de phase.

### **II. 3. 3. Microscopie à force atomique (AFM) :**

Microscopie à force atomique (atomic force microscopy, AFM en anglais) est technique d'analyse utilisée pour analyse du relief d'une surface, obtenir des images de la surface et permet à la fois une visualisation de la topographie et une cartographie des caractéristiques électriques et magnétique de surface. Cette technique est basée sur l'interaction entre une pointe de dimension nanométrique et la surface de l'échantillon[12].

#### **II. 3. 3. 1. Principe de la technique :**

Le principe d'action de la microscopie à force atomique dépend d'une sonde (Sensible aux forces d'interaction et fournir des profils 3D, avec une résolution allant jusqu'au 2Å verticalement et quelques nanomètres latéralement) qui passe sur la surface de l'échantillon à scanner et à analyser, donc une force est générée entre la tête de sonde et la surface de l'échantillon cette force conduit à une déviation dans le bras de construction sur la force du crochet. La force réciproque peut être : force mécanique, force vandervale, force capillaire, force électrostatique, force magnétique, force de liaison chimique, force casénaire ou autres types de force selon le type de surface étudiée. Les déplacements se font grâce à une céramique piézoélectrique, et la déflexion du cantilever (microlevier) est suivie à l'aide d'un faisceau laser réfléchi par le cantilever et détecté par une photodiode (voir Figure II.7 (a)). La microscopie à force magnétique est obtenue en utilisant une pointe recouverte d'un matériau magnétique qui est sensible aux phénomènes magnétiques. On peut par cette méthode observer des domaines magnétiques .



(a)

(b)

**Figure II.7 :** a) Principe de la microscopie à force atomique AFM [12]. b) Model instrument.

### II. 3. 3. 2. Appareillage :

La microscopie à force atomique contient des pièces de base qui l'aident à remplir correctement ses fonctions, notamment :

- Photodiode à quatre quadrants est la partie la plus importante et la plus sensible de l'appareil fonctionne pour recevoir le signal et le traiter dans l'unité centrale de traitement afin de produire une image en trois dimensions de la surface de l'échantillon étudié.
- Lazer, qui est un faisceau lumineux qui tombe sur le support, où il monte et descend avec la hauteur et la diminution de l'aiguille installée sur le support.
- Miroir est attaché à un bras et aide à dévier le faisceau laser.
- Surface est la zone qui contient l'échantillon à analyser et à étudier sa morphologie, où l'interaction se produit entre lui et le capteur, où une force est générée qui conduit à la déviation du bras.
- Un cantilever à la fin contient un capteur avec une tête pointue appelée pointe, qui est la partie qui interagit avec la surface de l'échantillon, dont l'épaisseur est dans les limites d'un ou deux atomes utilisés pour essuyer la surface de l'échantillon. Il est en silicium ou en nitrure de silicium dans un rayon d'environ quelques nanomètres.

### Références bibliographies

- [1] S.K. Vajpai, B.V. Mahesh and R.K. Dube, journal of alloys and compounds, 476, 311 (2009).
- [2] K. Hoselitz, Oxford University press amen house, (1952).
- [3] I. M. Lytvynenko, I.M. Pazukha and V.V. Bibyk, vacuum, 116, 31-35 (2015).
- [4] L. Pawlowski, Dépôts physiques : technique, microstructures et propriétés, Ed. Presses polytechniques et universitaires romandes (Lausanne), (2003).
- [5] S.Rabaste, microcavités optiques élaborées par voie sol-gel : applications aux ions terre rare d'Eu<sup>3+</sup> et aux nanocristaux semiconducteurs de CdSe, thèse de doctorat, Université Claude Bernard - Lyon 1, 2003.
- [6] J. Bessot, enseignement des techniques du vide. Tome I.
- [7] C. Kittel, 7<sup>ème</sup> édition, Dunod, 28-50 (1998).
- [8] N. Boukherroub, effet des conditions de broyage sur les propriétés structurales et magnétiques des nanomatériaux FeAl élaborés par mécanosynthèse, thèse de doctorat, Université M'Hamed Bougara, 2015.
- [9] C. Richardt and A. Evans, division of read publishing, 800, (1992).
- [10] D. Sahel, Rapport de Laboratoire de Microscopie Electronique, Centre de Recherche Nucléaire d'Alger, 2004.
- [11] S. Bodea, Thèse de doctorat, Université Josèphe Fourier de Grenoble I, 2000.
- [12] A.Kaibi, élaboration et étude des propriétés structurales microstructurales, hyperfines et magnétiques des nanomatériaux NiFe, thèse de doctorat, Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene (USTHB) - Alger, 2019.
- [13] Y.Dahmane, thèse doctorat, Université Joseph Fourier-Grenoble1, 2007.

**Chapitre III :**

**Caractérisations Structurales,**

**Microstructurales des Couches Minces**

**de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>**

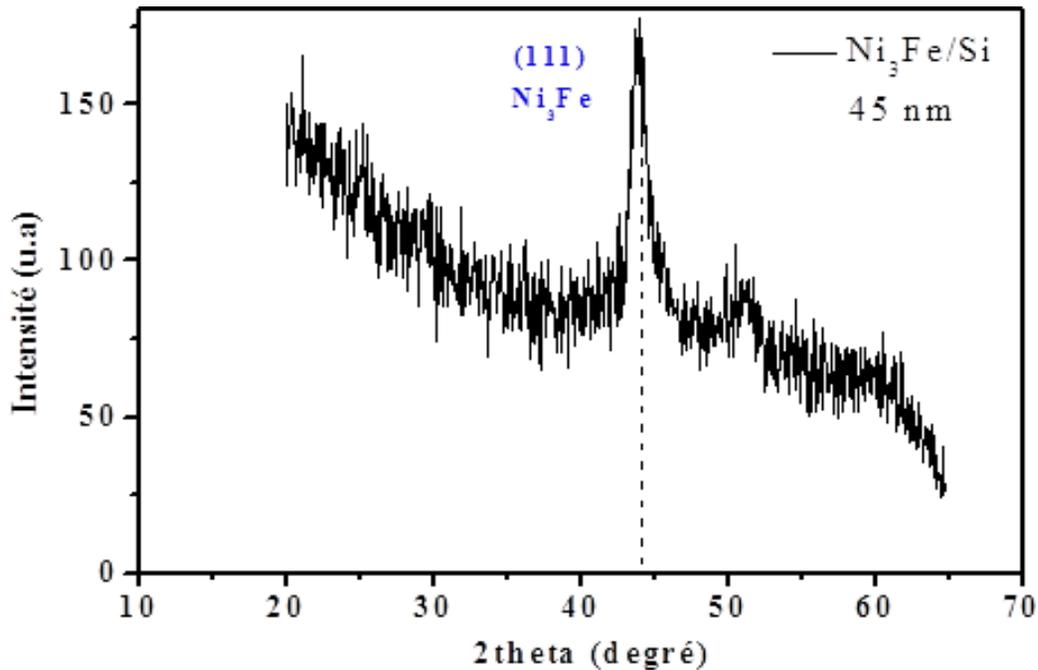
L'objectif de notre étude dans ce chapitre, est de présenter et discuter des résultats expérimentaux à l'étude d'effet des substrats et de l'épaisseur sur les propriétés structurales et microstructurales des couches de permalloy (Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>) élaborées par la méthode d'évaporation sous vide. Les couches minces sont déposées sur un substrat de silicium monocristallin commercialisé (Si (100)) et substrat de verre avec des différentes épaisseurs. Les propriétés structurales de ces films ont été étudiées par la diffraction des rayons X (GIXRD), la morphologie et la topographie de surface ont été analysées par le microscopie électronique à balayage (MEB) et la microscopie à force atomique.

#### **III. 1. Analyse structurale par la diffraction des rayons X en incidence rasante (GIXRD) :**

L'analyse des propriétés structurales des couches minces de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> élaborées par évaporation sous vide déposées sur des substrats de silicium monocristallin commercialisé (Si (100)) et verre a été effectuée par diffraction des rayons X en incidence rasante ( $\theta$ ,  $2\theta$ ), pour ce faire nous avons utilisé un angle d'incidence de  $0.5^\circ$ . Nous avons exploité la gamme angulaire entre  $20^\circ$  et  $70^\circ$ , cette gamme est pratiquement suffisante pour l'identification des principaux pics, qui ont été indexés par la fiche de JCPDS (38 - 0419) [1]. L'analyse des spectres des diffractions des rayons X permet de donner différentes informations sur les propriétés de la structure cristalline de l'échantillon étudié (paramètre de maille, les contraintes et la taille des grains). Les courbes suivantes montrent les spectres de diffraction des rayons GIXRD des couches minces (Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>) déposées sur Si(100) et verre.

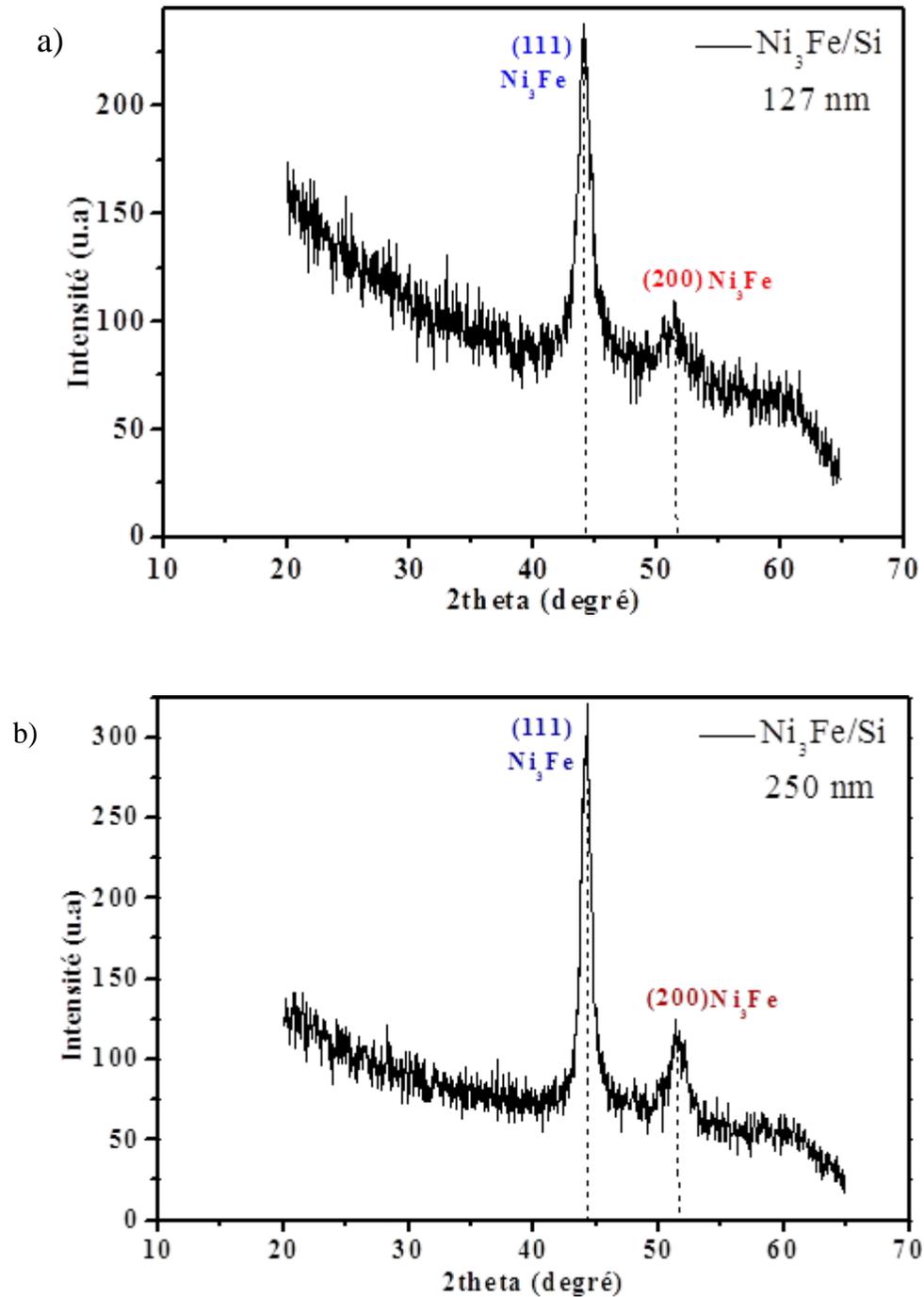
Les figures (III.1 et III.2) représentent les diffractogrammes de rayon X des couches minces Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> avec différentes épaisseurs (45 nm, 127nm et 250 nm) déposée sur Si(100).

La figure III.1 montre le diffractogramme de couche mince Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposée sur substrat de Si (100) de faible épaisseur 45 nm. Nous avons remarqué la présence d'un seul pic de haute intensité, situés à la position de  $2\theta = 44.28^\circ$  a été indexé par la fiche JCPDS comme étant le plan (111) de la structure cubique à faces centrées (CFC) de la phase Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> [2]. Ce film présente une orientation préférentielle selon la direction  $\langle 111 \rangle$ .



**Figure III.1 :** Diagramme de diffraction des rayons X de couche mince Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposée sur substrat de Si(100) d'épaisseur 45 nm.

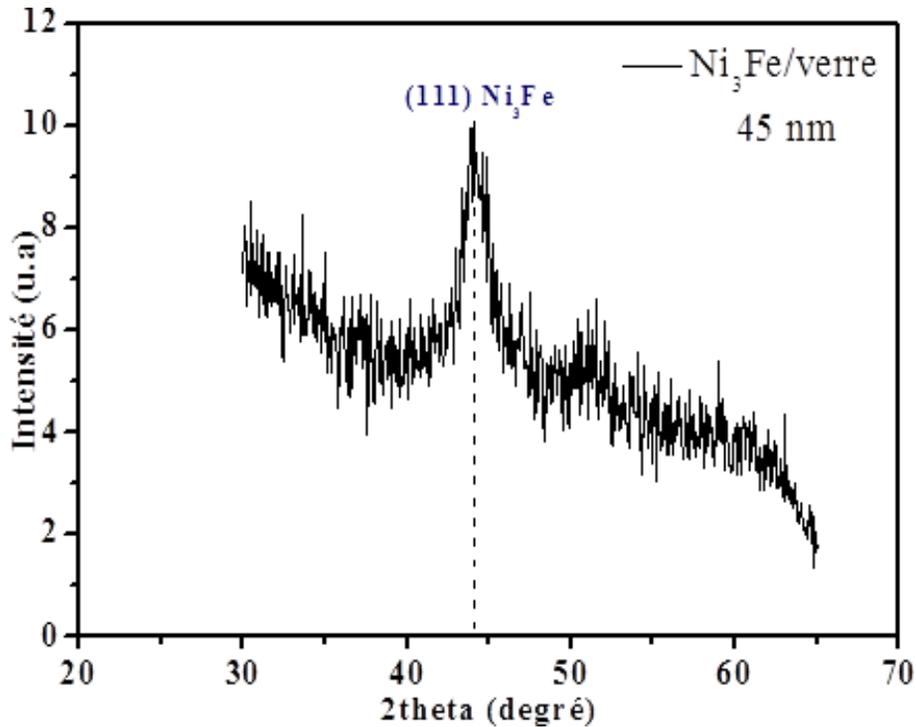
Les spectres de diffraction des rayons X des couches minces de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposées sur substrats de Si (100) de plus grandes épaisseurs (127 nm et 250 nm) sont montrés sur la figure III.2. Nous avons observé la présence d'un pic situé à  $2\theta = 44.38^\circ$  qui augmente en intensité avec l'augmentation de l'épaisseur et l'apparition d'un deuxième pic de faible intensité, de la position  $2\theta = 51.61^\circ$ . Les deux pics ont été identifiés par la fiche ASTM comme étant les pics (111) et (200) respectivement, ce qui montrent la présence de la phase Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> de structure cubique à faces centrées (CFC) polycristalline. Afin de déterminer la texture de couche mince NiFe déposé sur un substrat de Si, nous avons calculé les rapports des intensités des pics par rapport au pic le plus intense  $I_{200} / I_{111}$ . La valeur de rapport montre que ces films présentent une structure polycristalline. Nous avons conclu dans ce travail l'épaisseur influe considérablement sur la structure cristalline des couches minces Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>.



**Figure III.2 :** Diagrammes de diffraction des rayons X des échantillons avec les épaisseurs :  
a) 127 nm et b) 250 nm.

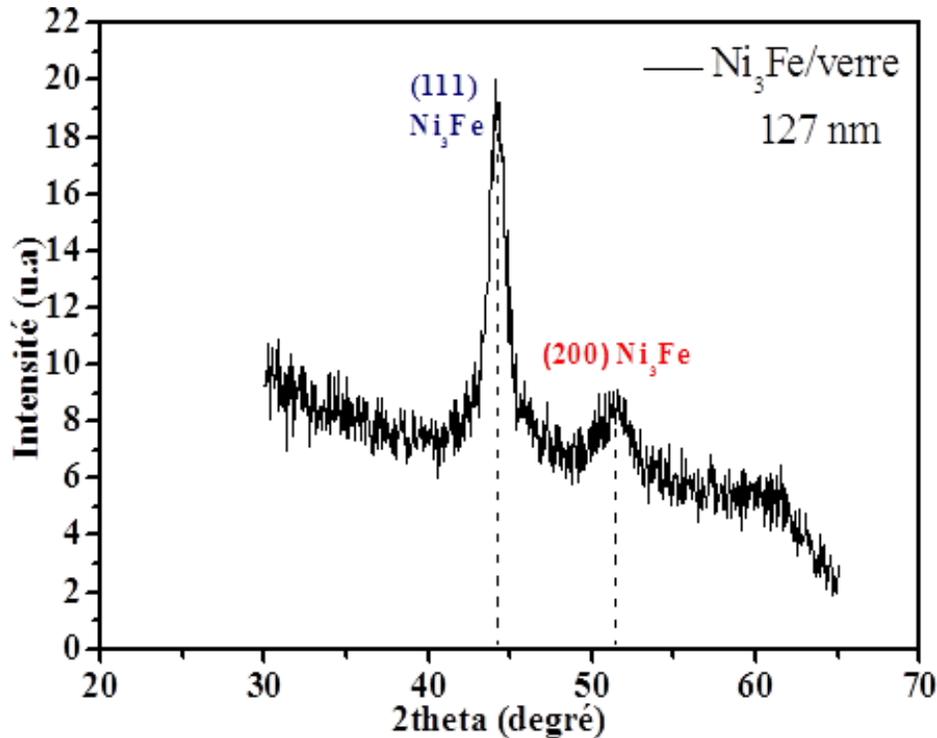
Pour les films de  $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$  déposé sur un substrat de verre les spectres de diffraction des rayons X sont représentés dans les figures (III.3 et 4).

La figure III.3 montre la diffractogramme de couche mince de permalloy Ni<sub>3</sub>Fe déposée sur substrat de verre avec l'épaisseur 45 nm. Nous avons remarqué dans ce cas l'apparition d'un pic fortement intense et large situé à la position  $2\theta = 44.23^\circ$ , ce pic a été indexé par la fiche GIXRD comme étant le plan (111) de la structure cubique à faces centrées de la phase Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>. Pour cet échantillon une forte texture <111> est mise en évidence.



**Figure III.3 :** Diagramme de diffraction des rayons X de couche mince Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposée sur substrat de verre d'épaisseur 45 nm.

La figure III.4 représente la diffractogramme de couche mince de permalloy Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposée sur substrat de verre avec l'épaisseur 127 nm. On peut voir en plus du pic (111) à la position  $2\theta = 44.35^\circ$ , qui augmente en intensité avec l'augmentation de l'épaisseur, l'apparition d'un second pic situé à la position  $2\theta = 51.62^\circ$ , correspondant au plan (200) de la phase du Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>. Nous avons obtenu que les films de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub>/verre possédant d'épaisseur 127nm présentent une structure polycristalline.



**Figure III.4 :** Diagramme de diffraction des rayons X d'échantillon Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposée sur substrat de verre d'épaisseur 127 nm.

Après avoir analysé tous les spectres de diffraction des rayons X nous avons conclu que l'évolution de la structure des couches minces Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> dépend considérablement de l'épaisseur du film et du type de substrat [2]. Pour assurer-nous que nos résultats sont corrects, nous citons les travaux de N.Guechl [3] qui ont constaté que la direction préférentielle d'un échantillon de permalloy sur un substrat de silicium, en général, suivant la direction (111) avec la présence de deux pics correspondant au plan (111) et (200). On peut citer aussi les travaux de Svalov et al. [4] qui se sont intéressés à étudier des couches minces de permalloy de 100 nm déposées sur verre par pulvérisation. Les auteurs ont remarqué une texture des couches minces de Py selon la direction (111). A. Guittoum et al. [5] ont obtenu une texture dans la direction <111> pour une série des films minces Py (Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>) déposées sur un substrat de verre avec une épaisseur allant de 13 nm à 190 nm. Wang et al. [6] ont élaboré des films de permalloy par sputtering en utilisant le verre comme substrat il ont obtenu une texture en <111>. Nous avons constaté que ces travaux sont en bon accord avec nos résultats. R.Gubta, K.P. Lieb et al. [7] ont observé une orientation cristallographique suivant la direction <100> pour des couches minces permalloy (Ni<sub>81</sub>Fe<sub>19</sub>) déposées sur un substrat de silicium (Si) élaboré par une technique à jets de DC.

### III. 1. 1. L'évolution du paramètre de maille :

Le paramètre de maille est une description des dimensions de l'unité de la maille, qui est un facteur important qui nous permet d'obtenir des informations sur l'état de la pression exercée sur la couche mince. Dans cette partie, les spectres de diffraction des rayons X (GIRXD) ont été analysés. Nous avons étudié l'effet des substrats (verre et Si) à l'épaisseur (45 à 250 nm) sur l'évolution de paramètre de maille des films Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposées par évaporation sous vide. Le paramètre de maille est calculé pour tous les échantillons en considérant les pics les plus intenses (111) et (200) des films de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> à partir d'une relation entre la distance interréticulaire et les indices de Miller (h, k, l). Dans notre étude, le Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> à une structure cubique à faces centrées, donc le paramètre de maille est donné par [8,9] :

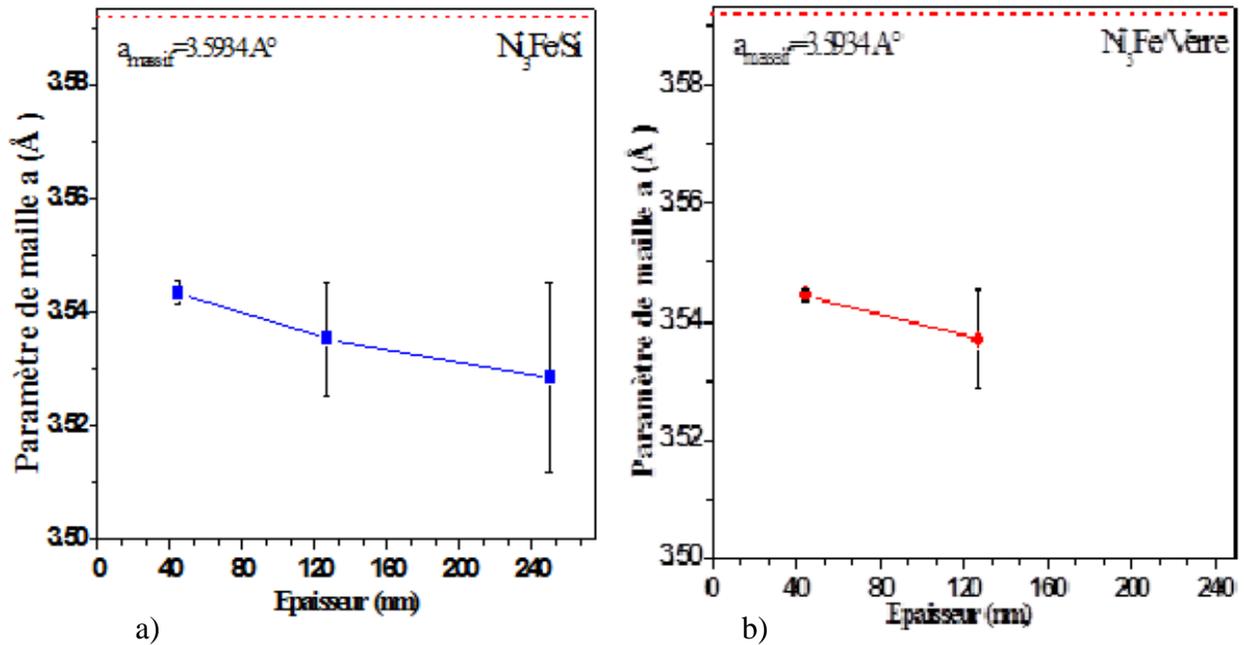
$$a = d_{hkl} \sqrt{h^2 + k^2 + l^2} \quad (\text{III.1})$$

$d_{h,k,l}$  : distance inter réticulaire.

$a$  : paramètre de maille.

$h, k, l$  : indice de Miller.

Les figures III.5 (a) et (b) montrent l'évolution du paramètre de maille,  $a$  (Å) des films Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> en fonction de l'épaisseur  $t$  (nm) pour deux types des substrats (verre et silicium (100)). Nous avons observé une diminution monotone du paramètre de maille avec l'augmentation de l'épaisseur pour les deux types des substrats (verre et Si (100)). En effet la valeur du paramètre de maille passe de  $3,5433 \pm 0,0021$  Å pour 45 nm à  $3,5285 \pm 0,0168$  Å pour une épaisseur de 250 nm dans les films de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposés substrats de silicium (figure III. 5 (a)). On note également une diminution de la valeur de paramètre de maille  $a$  de  $3,5443 \pm 0,001$  Å vers la valeur  $3,5369 \pm 0,0084$  Å des épaisseurs de l'échantillon 45 nm et 127 nm, respectivement (figure III. 5 (b)).



**Figure III.5 :** L'évolution du paramètre de maille des films de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> en fonction des épaisseurs : a) déposé sur un substrat de Si (100), b) déposé sur un substrat de verre.

Nous pouvons observer aussi que dans la première région, la même diminution du paramètre de maille de façon monotone pour les échantillons Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposés sur les deux types (Si, verre) avec des épaisseurs 45 nm à 127 nm, avec la même approximation graduelle. La variation des valeurs de paramètre de maille  $a$  dans les deux types de substrat peut être due à l'état de la surface du substrat. Nous avons noté que toutes les valeurs du paramètre de maille obtenues pour les couches minces de Py/verre et Py/Si sont inférieures à celle du massif ( $a_{\text{massif}} = 3.5453 \text{ \AA}$ ) [10]. Cette variation entre les valeurs expérimentale du paramètre de maille et la valeur du massif est probablement due aux contraintes homogènes ou à l'état de surface des substrats. Dans notre cas, l'évolution de paramètre de maille que nous avons obtenu est presque identique à celle qui a obtenu par S. Lamarni [11]. Il a trouvé que la valeur du paramètre de maille  $3,5398 \text{ \AA}$  à une épaisseur de 16 nm et une valeur égale à  $3,5253 \text{ \AA}$  à 90 nm.

### III. 1. 2. L'évolution de la taille des grains :

L'analyse de diffraction est un outil très important pour étudier la croissance cristalline d'une couche mince de permalloy (Py). Il est permis de calculer la taille des grains  $D$  (nm), qui sont le résultat d'un certain nombre de diffraction par la distance interréticulaire, car ces grains ne sont pas orientés au hasard, ils ont des orientations préférentielles qui forment ce qu'on appelle une texture cristallographique, cette orientation préférentielle ou texturation a une influence prépondérante sur

les propriétés et la performance des couches minces réalisées et jouer un rôle important dans les propriétés physiques (électriques, magnétiques ...des matériaux).

L'évolution de la taille des grains  $D$  peut être expliquée par le nombre des atomes participant à la formation de la phase cristalline. La taille des grains,  $D$  (nm), a été calculée pour tous les échantillons à partir des spectres de diffraction rayons X. L'affinement des profils de raies de diffraction X a été effectué à l'aide du programme ORIGIN et les valeurs vraies de la largeur à mi-hauteur (FWHM : full width at half maximum)  $\beta$ , des raies spectrales ont été déterminées pour tous les pics de diffraction pour chaque échantillon (chaque pic est caractérisé par sa position angulaire  $2\theta$  correspondant au centre de la raie). Dans ce travail, nous avons utilisé la relation de Scherrer pour calculées la taille des grains des couches minces de Py/verre et Py/Si (100) :

$$D = \frac{0.9\lambda}{\beta \cos \theta} \quad (\text{III. 2})$$

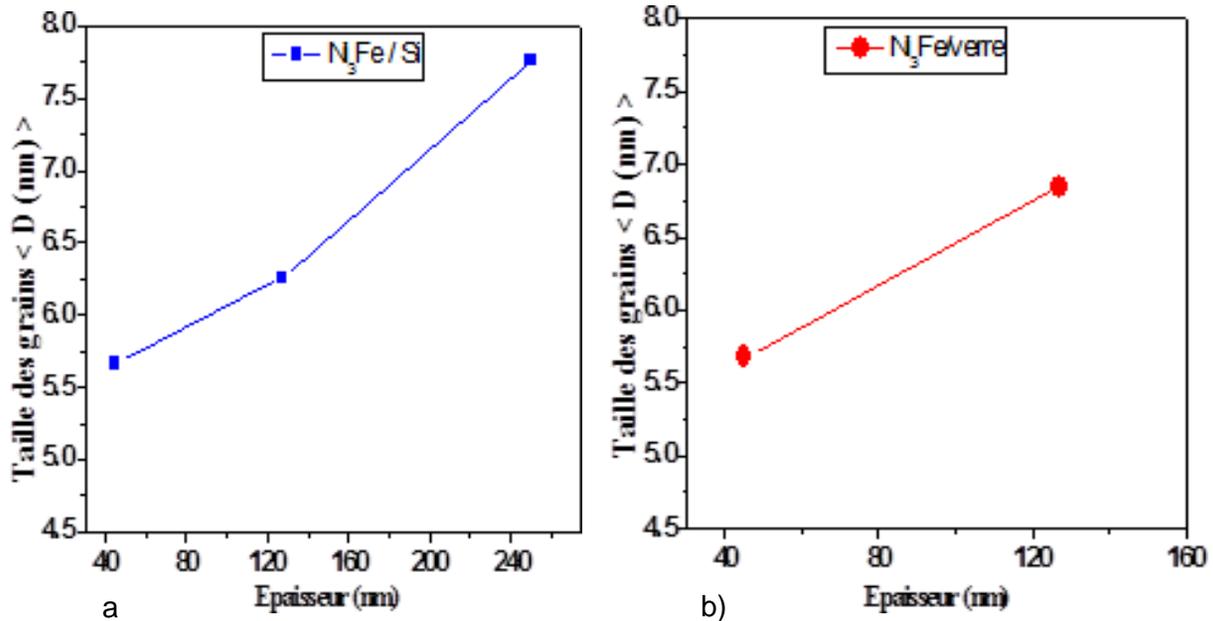
$\lambda$  : la longueur d'onde de Cu K $\alpha$  du rayon X.

$\theta$  : l'angle de diffraction.

$\beta$  : la largeur à mi-hauteur du pic de diffraction.

La figure III.6 représenté l'évolution de la taille des grains en fonction d'épaisseur d'échantillon pour les deux types de substrat. Nous avons remarqué que la taille des grains augmente avec l'augmentation de l'épaisseur d'échantillon. Pour les couches minces déposées sur Si (100) (voir figure III.6 (a)) les valeurs de la taille des grains sont augmentées de  $5.6681 \mp 0.98$  nm ( $t=45$  nm) à  $7.7647 \mp 0.98$  nm ( $t=250$  nm).

Nous avons également remarqué que les valeurs les plus élevée de la taille des grains sont observées pour la série de Py/verre ((figure III.6 (b)), qui est sont passe de  $5.67 \mp 1$  nm pour 45 nm à  $6.84 \mp 0.99$ nm pour 127 nm d'épaisseur pour cette série.



**Figure III.6 :** L'évolution de la taille des grains des films de  $Ni_{75}Fe_{25}$  en fonction d'épaisseur :  
a) déposé sur un substrat de Si, b) déposé sur un substrat de verre.

Il est clair que la taille des grains augmente avec l'augmentation de l'épaisseur et par conséquent les défauts à l'intérieur du cristal diminuent. La structure microscopique des films de faible épaisseur contient un nombre de défauts plus élevée par rapport à celui dans les films épais. On déduit que l'épaisseur est un facteur dominant dans l'évolution de la taille des grains et l'évolution de la taille des grains s'explique par l'agglomération des cristallites lors de l'augmentation de l'épaisseur des couches minces. Notre résultat est comparable à celui obtenue par O. Cherrad [12] qui a obtenu une taille des grains varie entre 56 Å à 134 Å pour des films de  $Ni_{80}Fe_{20}$  ayant une épaisseur de 110nm et 505 nm. A. Guittoum et al. [5] ont obtenus des valeurs de  $D$  (nm) qui passent de 100 Å à 480 Å pour l'épaisseur allant de 13 nm à 190 nm en utilisant le verre et Si (111) comme substrats. Il est important de mentionner, à titre de comparaison, les travaux de A. kaibi [2] a trouvé que pour des films de Py évaporés sur des substrats de verre et de silicium, la taille des cristallites augmente avec l'augmentation des épaisseurs. S. Lamarni [11] a utilisé trois types des substrats pour étudier les propriétés structurales des couches permalloy. Il a noté que la taille des grains augmente de 20 à 95 Å à une épaisseur de 16 et 90 nm respectivement, en utilisant du verre comme substrat. De plus, c'est travaux précédents lors de l'utilisation du substrat de Si ou de verre, la valeur de la taille grains augmente avec l'augmentation de l'épaisseur, ce qui correspond à nos résultats.

### III. 1. 3. L'évolution de contrainte :

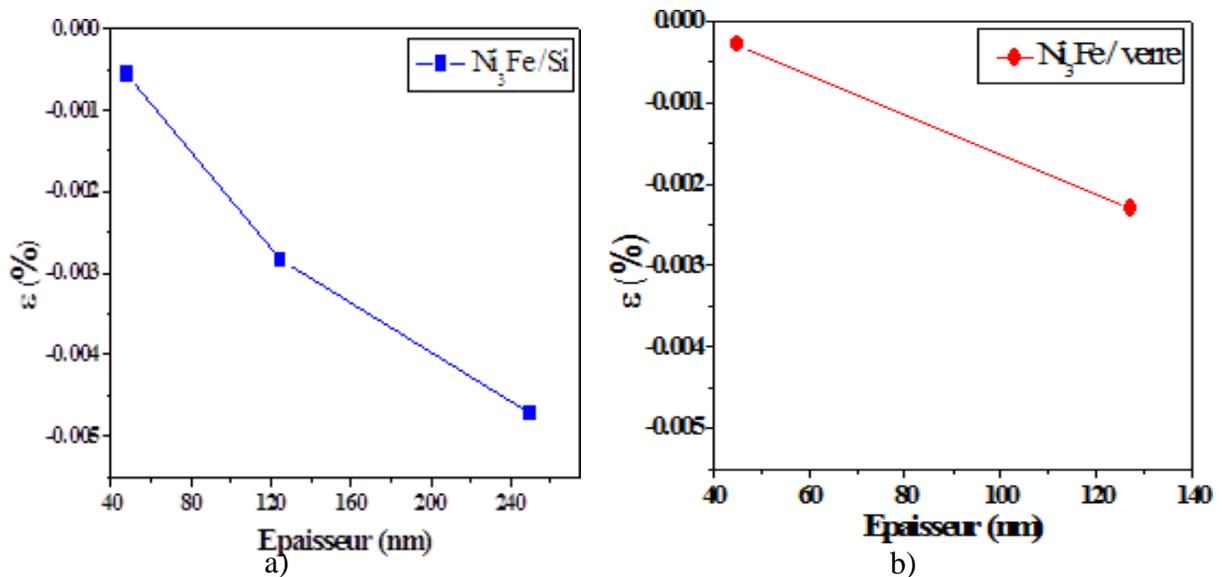
Nous avons obtenu les valeurs de contrainte en utilisant les deux formules suivantes :

$$\varepsilon = \frac{a - a_{massif}}{a_{massif}} \quad (III.3)$$

Ou

$$\varepsilon = \frac{\beta}{4 \tan \theta} \quad (III.4)$$

En utilisant ces deux relations pour calculer les contraintes, nous avons obtenu les mêmes résultats par les deux formules. La figure III.7 montre l'évolution de la déformation en fonction de l'épaisseur des couches minces de Py / Si et Py / verre. Nous avons trouvé que toutes les valeurs de déformation sont négatives. Nous avons obtenu pour les films de Py / Si, les valeurs des contraintes varient de -0,00056 pour l'épaisseur 45 nm à -0,0047 pour l'épaisseur 250 nm tandis que pour les films de Py /verre nous obtenons que les valeurs passent de -0,00028 à -0,0023 pour 45 nm et 127 nm. Nous notons que la déformation se développe bien avec la taille des grains et nous notons également que la déformation varie inversement avec l'épaisseur. Dans notre cas on peut déduire que les films minces de NiFe sont soumis à une contrainte de compression.



**Figure III.7 :** L'évolution des contraintes des films de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> en fonction de l'épaisseur : a) déposé sur un substrat de Si, b) déposé sur un substrat de verre.

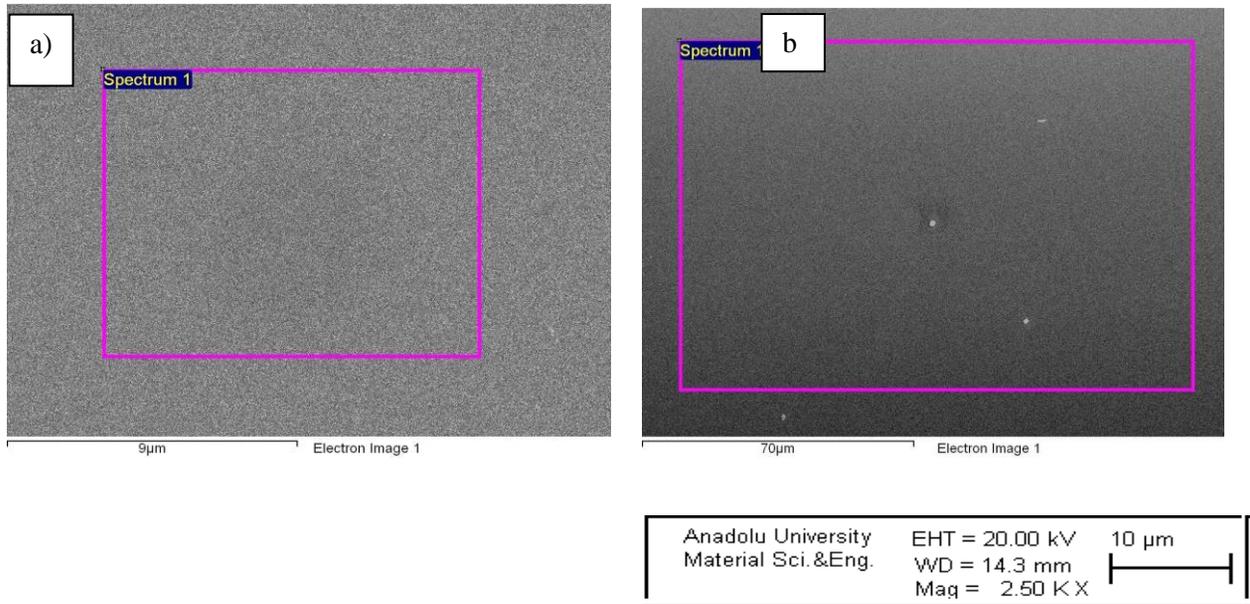
#### III. 2. Propriétés microstructurales :

Les propriétés microstructurales et l'observation des surfaces des couches Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposées sur un substrat de silicium monocristallin commercialisé (Si (100)) et substrat de verre avec des différentes épaisseurs de 45 nm à 250 nm ont été étudiées par MEB et AFM.

#### **III. 2. 1. Microscopie électronique à balayage :**

Les observations des surfaces des couches de permalloy évaporées sur différents substrats ont été faites par microscopie électronique à balayage qui scanne la surface de l'échantillon par lignes successives et envoi du signal détecté à l'écran cathodique d'où il provient le balayage coïncide avec le faisceau incident [13].

La figure III.8 représente les micrographies obtenues par la microscopie électronique à balayage pour les couches minces de Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> déposées sur substrat de Si (100) et substrat de verre avec d'épaisseur 45nm. A partir de ces observations, nous avons remarqué que les micrographies d'échantillon de permalloy déposé sur le silicium et verre d'épaisseur 45 nm ont clairement révélé des surfaces monocristallines homogène, uniforme et très lisse. Pour le film déposé sur un substrat de verre la surface de la couche semble très dense avec des grains fins (figure III.8 (a)). Lorsque en utilisant un substrat en verre (figure III.8 (b)), on remarque l'émergence de quelque grain de forme sphérique régulière et de grande taille de l'ordre 1micromètre en raison de la présence d'un ensemble de grand nombre des grains de petites taille de l'ordre du nanomètre ils se rejoignent les uns aux autres pour constituer des grains de taille plus grande et connus sous le nom d'agglomération. L'apparition de ces granules peut être due à l'état amorphe du substrat en verre.



**Figure III. 8 :** Micrographies MEB de la surface des films Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> pour l'épaisseur 45 nm déposée sur des différents substrats : a) Substrat de Si (100), b) Substrat de verre.

Nous avons également remarqué que la morphologie de surface n'est pas clairement observée avec l'utilisation de la microscopie MEB, due à la taille nanométrique des grains qui sont répartis sur la surface de l'échantillon. La limite de l'utilisation de microscopie MEB à l'échelle nanométrique, conduit à utiliser la microscopie AFM pour mettre en évidence la topographie des films déposés. Et les échantillons obtenus ont été analysés par dispersion d'énergie par rayons (EDX).

#### **Conclusion :**

Dans ce chapitre, nous avons étudié les propriétés structurales et microstructurales des films de Py Ni<sub>75</sub>Fe<sub>25</sub> par évaporation sous vide, des déposées sur des substrats de silicium et de verre des couches de permalloy. L'analyse structurale de la diffraction des rayons X nous a montré que pour les films déposés sur les deux types de substrats (Si, verre) la taille des grains est de l'ordre de nanomètre qui augmente en fonction de l'épaisseur de l'échantillon. Le paramètre de maille diminue avec l'augmentation de l'épaisseur. Toutes les valeurs des contraintes calculées sont négatives et diminuent avec l'évolution de l'épaisseur. Les films minces de NiFe sont soumis à une contrainte de compression.

**Références bibliographiques**

[1] Fiche de JPDS No. 38 - 0419.

[2] A.Kaibi, élaboration et étude des propriétés structurales microstructurales, hyperfines et Magnétiques des nanomatériaux NiFe, thèse de doctorat, Université des Sciences et de la Technologie Houari Boumediene (USTHB) - Alger, 2019.

[3] N.Guechi, étude des propriétés structurale, électrique et magnétique des couches minces Fe<sub>x</sub>Ni<sub>100-x</sub> et Fe<sub>x</sub>Ni<sub>y</sub>Co<sub>z</sub> déposées par évaporation sous vide sur du silicium monocristallin Si(100), thèse de doctorat, Université Ferhat Abbas, 2016.

[4] A.V. Svalov, G.V. Kurlyandskaya, B. González Asensio, J. M. Collantes and A. Larrañaga, materials letters, 152, 159-162 (2015).

[5] A. Guittoum, A. Layadi, A. Bourzami and G. Schmerber , the european physical journal applied physic, 58, 20301(2012).

[6] S. Wang, T. Gao, C. Wang and J. He, journal of alloys and compounds, 554, 405-407 (2013).

[7] R.Gubta, K.P. Lieb, G.A. Muller, E.Carpene, P. Schaaf, the European physical journal, 48, 449(2005).

[8] P. J. Brown and J, B, Forsyth, ed wardarnold, 172, 1973.

[9] H. P. Klug and L. E. Alexander, 2nd edition (John Wiley and Sons), 966, 618-708 (1974).

[10] T. Yeh, J. M. Sivertsen and J. H. Judy, institute of electrical, electronic and engineer's transactions on magnetic. 23,2215 (1987).

[11] S. Lamarni, étude des propriétés structurales et magnétiques des couches minces de permalloy élaborées par évaporation sous vide et électrodéposition, thèse de doctorat, Université Mouloud Mammeri, 2016.

[12] O. Cherrad, materials and thin films synthesis, characterizations and applications structural, surface morphology and electrical properties of evaporated permalloy Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub>/Si (100) thin films, these de doctorate, Universities de Ferhat Abbas, 2018.

[13] C. Richardt and A Evans, division of read publishing USA.

# *Conclusion générale*

### Conclusion générale

Dans ce mémoire, nous avons étudié l'effet de l'épaisseur et des substrats (verre et de silicium monocristallin commercialisé (Si (100)) sur les propriétés structurales et microstructurales des couches de permalloy  $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$  élaborées par la méthode d'évaporation sous vide.

Après avoir réussi à préparer des couches minces  $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$  sur deux substrats de silicium et de verre de différentes épaisseurs, les propriétés structurales et microstructurales de ces échantillons ont été distinguées en utilisant différentes méthodes de caractérisation, la diffraction des rayons X (DRX), la microscopie électronique à balayage (MEB) et la microscopie à force atomique (AFM). À partir des spectres de DRX, nous avons montré que les couches de permalloy  $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$  élaborées avec différents épaisseurs (45 nm à 250 nm) ont des propriétés structurales et microstructural distinctes. Nous avons montré que, pour les faibles épaisseurs et indépendamment du substrat utilisé l'orientation préférentielle est selon la direction  $\langle 111 \rangle$ . Lorsque l'épaisseur augmente, une structure polycristalline a été observée. Une diminution du paramètre de maille lors de l'augmentation de l'épaisseur pour les deux types de substrat utilisé, pour la plus grande épaisseur de 250 nm, la valeur du paramètre de maille est égale à 3,5285 Å. La valeur de la taille des grains augmente avec l'augmentation de l'épaisseur lors de l'utilisation de deux types de substrats, nous avons obtenu une valeur minimale de la taille des grains de 7,69 nm lorsque l'épaisseur est de 250 nm, conjointement avec l'évolution de la taille des grains, nous avons remarqué que le taux de déformation diminue avec l'augmentation de l'épaisseur jusqu'à une valeur de -0,47% pour l'épaisseur 250 nm et les films minces sont soumis à une contrainte de compression.

Les micrographies des couches minces des Py ( $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ ) ont été étudiées par la microscopie électronique à balayage (MEB) couplé à EDX. À partir de MEB, nous avons réalisé une étude microscopique sur la surface du film mince ( $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ ). Nous avons remarqué que les surfaces du film changent selon le type de substrat utilisé. Les micrographies montrent une surface homogène et uniforme. Les cartographies réalisées par EDX montrent que la composition des couches minces est très proche à la composition nominale ( $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$ ) de la poudre de départ.

ملخص:

لقد قمنا بدراسة تأثير السمك ونوع الركائز على الخصائص الهيكلية و المجهرية للأغشية  $Ni_{75}Fe_{25}$  (Permalloy: Py) ، التي تم تطويرها بواسطة تقنية التبخير الحراري . تم ترسيب طبقات على ركائز مختلفة ( زجاج و سيليكون ) ( 100 يتراوح سمك الطبقات الرقيقة بين 45 و 250 نانومتر . استخدمنا تقنية حيود الأشعة السينية لدراسة الخصائص الهيكلية لأغشية  $Ni_{75}Fe_{25}$  انطلاقاً من أطيايف حيود الأشعة السينية قمنا بقياس اتجاه نمو البنية لجميع العينات على ركائز مختلفة والتي تظهر اتجاهًا مفضلًا في اتجاه  $\langle 111 \rangle$  بالنسبة للأغشية الرقيقة 45 ( نانومتر .) بينما تظهر الطبقات ذات السمك الكبير 127 ( نانومتر و 250 نانومتر) اتجاهًا متعدد البلورات . يزداد متوسط حجم الحبيبة مع زيادة سمك العينة بينما ينخفض معامل الشبكة عندما يزيد السمك وفي نفس الوقت تتناقص أيضًا الاجهادا . و قمنا أيضًا بتحليل الطبقة الرقيقة باستخدام مجهر القوة الذرية ومجهر المسح الإلكتروني لدراسة مورفولوجية السطح وخشونته. كلمات مفتاحيه : أفلام البرمالوي، التبخر في الحراري، انعراج الأشعة السينية، مجهر القوة الذرية، المجهر الإلكتروني الماسح.

### Résumé:

Nous avons étudié l'effet de l'épaisseur et les substrats sur les propriétés structurales et microstructurales des films  $Ni_{75}Fe_{25}$  (Permalloy: Py), qui a ont été élaborés par la technique d'évaporation sous vide. Les couches minces  $Ni_{75}Fe_{25}$  ont été déposées sur différents substrats (verre et silicium (100)). Les épaisseurs des couches minces sont comprises entre 45 et 250 nm. Nous avons utilisé la technique de diffraction des rayons X DRX pour étudier les propriétés structurales des films  $Ni_{75}Fe_{25}$ . Les analyses des spectres de diffraction X montrent pour les deux types deux substrats, une orientation préférentielle dans la direction  $\langle 111 \rangle$  pour les films de faible épaisseur (45 nm). Alors que les couches minces de plus grandes épaisseurs (127 nm et 250 nm) exhibent une orientation polycristalline. La taille moyenne des grains augmente et le paramètre de maille diminue avec l'augmentation de l'épaisseur. Les films minces sont soumis à une contrainte de compression. Les couches minces de  $Ni_{75}Fe_{25}$  ont été également analysé par microscopie électronique à balayage MEB et microscopie à force atomique AFM pour étudier morphologie, la topographie et la rugosité de la surface.

**Mots clés :** Films de Permalloy, Evaporation thermique, Diffraction des rayons X, Microscope à force atomique, Microscope électronique à balayage.

### Abstract:

We studied the effect of thickness and substrates on the microstructural and structural properties of  $Ni_{75}Fe_{25}$  films (Permalloy: Py), which was developed by the vacuum evaporation technique. The  $Ni_{75}Fe_{25}$  thin films were deposited on different substrates (glass and silicon (100)). The films

thicknesses range from 45 to 250 nm. We used the X-ray diffraction technique to study the structural properties of  $\text{Ni}_{75}\text{Fe}_{25}$  films. From X-ray diffraction spectra we show a preferred orientation in the direction  $\langle 111 \rangle$  for thinner films (45 nm). While the thicker films (127 nm and 250 nm) exhibit a polycrystalline orientation. The average grain size increases and the lattice parameter decreases with increasing thickness. The Morphology and topography of film surface of Py/glass and Py/Si were performed with scanning electron microscopy (SEM) and atomic force microscopy (AFM).

**Keywords:** Permalloy films, vacuum evaporation, X-ray diffraction, scanning electron microscopy SEM, Atomic force microscopy.