

**MINISTERE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE
SCIENTIFIQUE
UNIVERSITE MOULOUD MAMMERI DE TIZI OUZOU**

**FACULTE DES SCIENCES
DEPARTEMENT DE PHYSIQUE**



THESE de DOCTORAT

SPECIALITE : PHYSIQUE

OPTION: PHYSIQUE DES MATERIAUX

Présentée par :

M^{me} LAMRANI Sabrina

***Etude des propriétés structurales et magnétiques des couches minces de Permalloy
élaborées par évaporation sous vide et électrodéposition.***

Devant le jury d'examen composé de :

Said BOUARAB;	Professeur;	UMMTO;	Président.
Abderrahim GUITTOUM;	Maitre de recherche A;	CRNA;	Directeur de thèse.
Nassima BENBRAHIM;	Professeur;	UMMTO;	Co-directeur de thèse.
Salim-Mourad Chérif;	Professeur;	Univ. Paris 13;	Examineur.
Mourad Zemirli;	Professeur;	UMMTO;	Examineur.
Amor AZIZI;	Professeur;	UFAS;	Examineur.

2015-2016

Remerciements

Cette thèse a été réalisée au laboratoire de spectroscopie Mössbauer de la division des techniques nucléaires du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger.

Cette thèse n'a pu aboutir que grâce aux efforts et à l'aide de nombreuses personnes, auxquelles je tiens à adresser mes remerciements.

Pour commencer, j'adresse ma gratitude à mon Directeur de thèse M^r Guittoum Abderrahim Maître de Recherche « A » au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA), pour ses orientations, ses conseils et ses encouragements qui ont permis le bon déroulement de cette thèse.

Je remercie mon Co-encadreur de thèse, et mon ancien professeur M^{me} Nassima Benbrahim Professeur à l'université Mouloud Mammeri de Tizi ousou, pour sa disponibilité et pour les corrections qu'elle a apporté à ce travail.

J'exprime ma reconnaissance à M^r Said Bouarab, Professeur à l'Université Mouloud Mammeri de Tizi Ouzou pour m'avoir fait l'honneur de présider le jury de cette thèse.

J'adresse mes remerciements à M^r Salim-Mourad Chérif, Professeur à l'Université de Paris 13, pour avoir pris le temps d'examiner cette thèse et de prendre part à ce jury.

A M^r Mourad Zemirli, Professeur à l'Université Mouloud Mammeri de Tizi Ouzou, je dis merci d'avoir accepté d'examiner ce travail.

Mes remerciements les plus sincères s'adressent à M^r Amor Azizi, Professeur à l'Université Ferhat Abbas de Sétif, de faire partie du jury mais également pour m'avoir accueilli dans son laboratoire de Chimie Ingénierie Moléculaire et Nanostructures (LCIMN) à Sétif.

Une partie du travail expérimental de cette thèse a été réalisé à l'Université de Sétif. Je tiens pour cela à exprimer ma reconnaissance à M^r M. Boudissa, Professeur à l'UFA de Sétif pour m'avoir permis de réaliser des dépôts par évaporation sous vide. Ma gratitude s'adresse également à M^r Mohamed Redha Khelladi, pour m'avoir aussi gentiment accueilli au laboratoire de Chimie Ingénierie Moléculaire et Nanostructures et ses explications sur l'électrodéposition.

Une autre partie du travail rapporté dans cette thèse a été réalisé au Centre de Recherche en Technologie des Semi-conducteurs pour l'Energétique, je tiens pour cela à

remercier M^r Toufik Hadjersi, Directeur de recherche au CRTSE, pour m'avoir intégré à son équipe qui travaille sur les nanofils de silicium, pour sa contribution et sa patience.

Les caractérisations magnétiques présentées dans cette thèse ont été effectuées à l'Institut pour Matériaux Métalliques IFW de Dresden, auprès du Professeur R. Schäfer et de son équipe notamment Stefan Pofahl et Volker Neu. Qu'ils trouvent ici l'expression de mes sincères remerciements pour leur hospitalité et leurs contributions.

Je tiens à exprimer ma reconnaissance à l'équipe du CRNA, à commencer par M^r Messaoud Hemmous, pour son aide précieuse et sa collaboration tout au long de cette thèse. A M^r Badis Rahal, je dis merci pour les mesures effectuées par DRX. A tous les étudiants membre de l'équipe du laboratoire de spectroscopie Mössbauer du CRNA : Nadia, Mohamed, Ahmed, Amina, Amel, Mustapha, Tawes, merci pour les bons moments passés ensemble.

A M^r Saifi Amirouche responsable du MEB à l'Université de Tizi ousou, j'exprime ma gratitude pour les observations de microscopie. Je tiens également à remercier M^r Manseri Amer responsable du MEB du CRTSE pour avoir effectué des analyses par MEB.

Les caractérisations de DRX en mode rasant, présentées, ont été effectuées au Centre de Recherche Nucléaire de Berine (CRNB), je remercie, pour cela M^r Sari Ali, attaché de recherche à la division des techniques nucléaires du CRNB.

J'exprime également mes remerciements à mes collègues du CRTSE, en particulier à mes collègues du bureau, à tous mes amis et à toutes les personnes que j'ai connues et appréciées tout le long de ce très long chemin que fut mon cursus.

Pour finir, je ne saurais trouver les mots assez forts pour exprimer mon amour et ma fierté d'appartenir à « ma famille ». A mon mari, Hamza, merci de me soutenir et m'encourager dans tout ce que j'entreprends, je sais bien que je n'ai pas toujours été facile à vivre durant ses années de thèse « Спасибо ». A ma mère, j'espère pouvoir être à la hauteur de l'éducation que tu m'as donnée et ne jamais te décevoir. A mon frère, soit toujours cette lumière dans nos vies. A mes beaux-parents, simplement merci pour tout ce que vous faites.

Certaines amitiés sont universelles, elles résistent au temps, à la distance et aux malheurs, à mes meilleurs amies : Hassina, Saadia et Nacera, merci d'être toujours là.

Comment finir ces remerciements sans avoir une pensée particulière pour mon Père, je pense très souvent à toi.

*« Le problème aujourd'hui n'est pas l'énergie atomique, mais le cœur
des Hommes ».*

Albert Einstein

Sommaire

Introduction générale.....	1
-----------------------------------	----------

Chapitre I

Notions de magnétisme et des couches minces de permalloy

I. 1. Notions de magnétisme.....	4
I. 1. 1. Moments magnétiques	4
I. 1. 2. Familles des matériaux magnétiques	5
I. 1. 2. 1. Matériaux diamagnétiques	5
I. 1. 2. 2. Matériaux paramagnétiques, ferromagnétiques, antiferromagnétiques, et ferrimagnétiques	5
I. 1. 3. Cycles d'hystérésis	7
I. 1. 4. Les domaines magnétiques	8
I. 1. 5. Les parois des domaines	9
I. 1. 6. Anisotropies magnétiques	11
I. 2. Le permalloy	14
I. 2. 1. Etat de l'art des couches minces de permalloy	15
A- Permalloy élaboré par voie physique	15
B- Permalloy élaboré par voie électrochimique	17
I. 3. Problématique et motivation	19
Références bibliographiques	20

Chapitre II

Méthodes d'élaboration et de caractérisations

II. 1. Technique d'élaboration.....	23
II. 1. 1. Préparation des substrats	23

II. 1. 2. Elaboration de couches mince de Py par évaporation	23
II. 1. 2. 1. Equipement expérimental	24
II. 1. 3. Elaboration de couches mince de Py par électrodéposition	26
II. 1. 3. 1. Equipement expérimental	27
II. 1. 4. Elaboration des nanofils de silicium	29
II. 1. 4. 1. Dépôt métallique.....	29
II. 1. 4. 2. Attaque chimique	30
II. 2. Techniques de caractérisation.....	32
II. 2. 1. Voltamètre cyclique.....	32
II. 2. 2. Profilométrie	33
II. 2. 3. Rutherford Backscattering Spectroscopy (RBS)	33
II. 2. 4. Diffraction des Rayons X	35
II. 2. 5. Microscopie Electronique à Balayage	36
II. 2. 6. Microscopie à force atomique et magnétique	38
II. 2. 7. Magnétométrie à échantillon vibrant.....	38
II. 2. 8. La Microscopie à effet Kerr	40
Conclusion	42
Références bibliographiques	43

Chapitre III

Etude des propriétés structurales, microstructurales et magnétiques des couches minces de permalloy élaborées par évaporation sous vide.

III. 1. Conditions d'élaboration	46
III. 2. Caractérisation des couches minces Py élaborées par évaporation.....	46
III. 2. 1. Mesures d'épaisseur	46

III. 2. 2. Propriétés structurales	47
III. 2. 2. 1. Evolution du paramètre de maille et des contraintes.....	49
III. 2. 2. 2. Evolution de la taille des grains	51
III. 2. 3. Propriétés microstructurales.....	53
III. 2. 3. 1. Microscopie à force atomique	53
III. 2. 3. 2. Microscopie électronique à balayage	55
III. 2. 4. Propriétés magnétiques.....	56
III. 2. 4. 1. Magnétométrie à échantillon vibrant.....	56
III. 2. 4. 2. Microscopie à force magnétique	61
III. 2. 4. 3. Microscopie optique à effet Kerr	62
Conclusion	65
Références bibliographiques	66

Chapitre IV

Etude des propriétés structurales, microstructurales et magnétiques des couches minces de permalloy élaborées par électrodéposition.

IV. 1. Conditions d'élaboration	69
IV. 1. 1. Bain d'électrodéposition.....	69
IV. 1. 2. Etude électrochimique	70
IV. 2. Caractérisation des couches minces NiFe élaborées par électrodéposition	72
IV. 2. 1. Propriétés structurales.....	72
IV. 2. 2. Propriétés microstructurales	75
IV. 2. 2. 1. Microscopie électronique à balayage	75
IV. 2. 2. 2. Microscopie à force atomique	77
IV. 2. 3. Propriétés magnétiques	78
IV. 2. 3. 1. Magnétométrie à échantillon vibrant.....	78

IV. 2. 3. 2. Microscopie optique à effet Kerr	80
Conclusion	82
Références bibliographiques	83

Chapitre V

Elaboration et caractérisation des films de permalloy déposés sur nanofils de silicium par voie électrochimique

V. 1. Synthèse des nanofils de silicium	85
V. 1. 1. Analyse par DRX des nanofils de silicium	86
V. 1. 2. Morphologie des nanofils de silicium.....	87
V. 2. Dépôt de Permalloy	88
V. 2. 1. Propriétés structurales	89
V. 2. 2. Propriétés microstructurales	91
V. 2. 2. 1. Microscopie électronique à balayage	91
V. 2. 2. 2. Microscopie à force atomique	94
V. 2. 3. Composition des dépôts	95
V. 2. 4. Propriétés magnétiques	96
Conclusion	99
Références bibliographiques	100
Conclusion générale	102

Introduction générale

Introduction générale

Ces dernières années la science des nanomatériaux et des nanotechnologies est apparue comme l'un des domaines les plus attractifs pour les scientifiques aussi bien sur le plan fondamental que technologique en raison de la large gamme d'applications possibles. Les films minces ferromagnétiques font partie de cette catégorie. En effet d'un point de vue technologique, les films ferromagnétiques peuvent être utilisés comme médias pour l'enregistrement magnétique ou encore pour les têtes de lecture [1-2]. Par ailleurs, les nanofils sont également considérés comme une part importante des nanomatériaux. Ils ont des potentielles d'applications dans différents domaines, entre autre, les supports d'enregistrement magnétique [3-5].

Le permalloy ($\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$: Py) est un matériau ferromagnétique doux bien connu et utilisé dans beaucoup d'applications en raison de sa faible coercivité, sa haute perméabilité et sa faible anisotropie magnétique. Les films de Py sont largement utilisés pour les capteurs magnétorésistifs, capteurs, mémoires magnétiques à accès aléatoire, inducteurs [6-9]. Pour cette raison, dans le passé, plusieurs articles qui traitent de la structure et des propriétés magnétiques des films de Py, élaborés par différentes méthodes, ont été publiés [10-12]. Il a été mis en évidence que le comportement magnétique dépend intimement de la structure qui est liée à la méthode et aux conditions d'élaboration. Toutefois, durant ces dernières années, des investigations plus détaillées sur les films de Py ont été menées en raison de l'évolution des méthodes d'élaboration ainsi que les techniques de caractérisations [13-17]. Récemment, les scientifiques ont porté leur attention sur l'étude du NiFe déposé sur des nano pores [12, 18], l'objectif étant d'étudier le comportement magnétique de ces matériaux dans ces matrices poreuses.

Dans la perspective d'effectuer une étude plus précise des films de Py, nous a conduit à ce travail de thèse. Nous avons effectué une étude sur des films élaborés par voie physique, en utilisant l'évaporation sous vide. Nous avons étudié l'effet du substrat et de l'épaisseur sur les propriétés des couches minces de Py. Nous nous sommes intéressés à l'influence de ces paramètres sur le magnétisme et notamment la structure des domaines magnétiques. L'étude bibliographique menée alors, a attiré notre attention sur les récents travaux des dépôts de permalloy sur des nanostructures. A partir de là, nous avons souhaité orienter nos recherches vers une technique peu coûteuse, rapide et facile à mettre en œuvre nous permettant d'obtenir des dépôts de Py sur une nanostructure. Nous avons donc opté pour l'électrodéposition. Cette

technique, exigeant un substrat conducteur, nous a conduit à utiliser le silicium et des nanofils de silicium. Nous nous sommes intéressés à l'étude du potentiel de dépôt (électrochimique) sur les propriétés du permalloy déposé sur du silicium plat puis sur des nanofils de silicium.

Cette thèse est structurée en cinq chapitres, en plus d'une introduction et conclusion générale.

Le premier chapitre contient des rappels et des généralités sur le magnétisme et les couches minces. Il rapporte également les travaux antérieurs concernant les couches minces de permalloy obtenus par les deux techniques d'élaborations utilisées dans ce travail de thèse (évaporation et électrodéposition).

Le chapitre II regroupe une description des méthodes d'élaborations utilisées pour le dépôt des couches minces de permalloy. Les nombreuses techniques de caractérisations y sont aussi décrites.

Le chapitre III présente les résultats relatifs à l'étude de l'effet de l'épaisseur et du type de substrat sur les propriétés physiques des couches minces de Py. Nous avons étudié, pour trois types de substrat et pour différentes épaisseurs, les propriétés structurales, microstructurales, magnétiques et micro-magnétiques des couches minces Py.

Le chapitre IV traite des couches minces de NiFe déposées par voie électrochimique sur du silicium. Les propriétés structurales, microstructurales et magnétiques de ces couches minces en fonction du potentiel de dépôt ont été étudiées. Les conditions de dépôt ainsi que les résultats obtenus dans ce chapitre ont été exploités pour introduire une étude qui fera l'objet du chapitre V.

En effet, le chapitre V comporte, en premier, la synthèse de nanofils de silicium. En second, il traite des dépôts électrochimiques sur ces nanofils. Les mêmes conditions de synthèse que celles obtenues pour le silicium ont été utilisées. Ce chapitre englobe une étude de la structure de la morphologie ainsi que des propriétés magnétiques de cette nouvelle nanostructure.

Enfin, cette thèse se clôture par une conclusion générale qui récapitule l'ensemble des résultats obtenus, leurs interprétation et les discussions qui leurs sont relatives.

Références bibliographiques

- [1] B. Ghebouli, A. Layadi, L. kerkache, Eur. Phys. J. AP 3 (1998) 35-39
- [2] W. Szmaja, J. Balcerski, W. Kozłowski, M. Cichomski, J. Grobelny, M. Smolny, P. J. Kowalczyk, J. Alloys Compd. 521(2012) 174-177
- [3] W. Chern, K. Hsu, I. S. Chun, B. P. de Azeredo, N. Ahmed, K. H. Kim, J. M. Zuo, N. Fang, P. Ferreira, X. Li, Nano Lett. 10 (2010) 1582-1588
- [4] F. Patolsky, G. Zheng, C. M. Lieber, Anal. Chem. 78(2006) 4260-9
- [5] Y. Hea, C. Fanc, S. T. Lee, Nano Today. 5 (2010) 213-230
- [6] P. P. Freitas, R. Ferreira, S. Cardoso, F. Cardoso, J. Phys: Condens. Matter. 19 (2007) 165221
- [7] G. Zhang, L. R. Carley, IEEE Trans. Magn. IV (2004) 469-472
- [8] T. Yeh, W. F. Witcraft, IEEE Trans. Magn. 31 (1995) 3131-3133
- [9] S. D. Bader, Rev. Mod. Phys. 78 (2006) 1-15
- [10] A. Guittoum, A. Layadi, T. Kerdja, S. Lafane and S. Bouterfaia, Eur. Phys. J. Appl. Phys. 42 (2008) 235-239
- [11] A. Guittoum, A. Bourzami, A. Layadi and G. Schmerber, Eur. Phys. J. Appl. Phys. 58 (2012) 20301
- [12] Á. Llavona, L. Pérez, M. C. Sánchez, V. de Manuel, Electrochim. Acta. 106 (2013) 392-397
- [13] H. H. Liu, X. K. Duan, R. C. Che, Z. F. Wang and X. F. Duan, Mater Trans. 50 (2009) 1660-1663
- [14] C. A. Ramos, E. Vassallo Brigneti, J. Gómez, A. Butera, Physica B: Condensed Matter. 404 (2009) 2673-2886
- [15] L. Gan, S. H. Chung, K. H. Aschenbach, M. Dreyer, and R. D. Gomez, IEEE Trans. Magn. 36 (2000) 3047-3049
- [16] J. McCord and R. Schäfer, New J. Phys. 11(2009) 083016

- [17] A. Gentils, J. N. Chapman, G. Xiong, and R. P. Cowburn, J. Appl. Phys. 98 (2005) 053905
- [18] X. Zhang, H. Zhang, T. Wu, Z. Li, Z. Zhang, H. Sun, J. Magn. Magn. Mater. 331 (2013) 162-167.

Chapitre I

Notions de magnétisme et des couches minces de permalloy

Dans ce chapitre, une brève introduction sur le magnétisme est donnée. Elle permet de donner un aperçu sur les notions de base du magnétisme qui nous serviront par la suite dans ce travail. La seconde partie du chapitre traite des couches minces de Permalloy (Py). Dans cette partie nous avons relaté l'état de l'art des couches minces de Py élaborées par voie physique et électrochimique. Cette étude bibliographique nous servira de base tout au long de cette thèse.

I. 1. Notions de magnétisme

I. 1. 1. Moments magnétiques

I. 1. 1. Moments magnétiques

Le magnétisme d'un matériau à l'échelle macroscopique est régi par le comportement des moments magnétiques des atomes à l'échelle microscopique. L'origine du moment magnétique est liée à l'interaction et au mouvement des électrons dans le matériau. Il présente deux contributions différentes : un moment magnétique intrinsèque de spin et un moment magnétique orbital, dû à la rotation de l'électron dans son orbite.

Pour un atome libre, le moment magnétique m , dans une direction donnée, est donné par :

$$m = gJ\mu_B \dots\dots\dots (I. 1)$$

Où : g est le facteur de Landé (rapport entre le moment magnétique et le moment cinétique), μ_B est le magnéton de Bohr ($1 \mu_B = 9.274 \times 10^{-24} J.T^{-1}$) et J le moment cinétique total de l'atome. J est défini par $J = L \pm S$, avec L le moment cinétique orbital et S le moment cinétique de spin. Le signe étant déterminé par la loi de Hund [1].

Lors de la formation du solide, on définit son aimantation par le rapport entre le moment magnétique total (obtenu par la contribution élémentaire de tous les moments atomiques du solide) et le volume total du matériau. La distribution électronique à l'intérieur du solide est un facteur déterminant de son comportement magnétique, ce qui permet de classer les matériaux en deux grandes familles.

(i) Les terre-rare : Ce sont des matériaux dont la couche 4f est incomplète. Celle-ci n'étant pas la couche externe de l'atome, il en résulte des interactions d'échange indirectes, transmises par les électrons de conduction : l'ordre ferromagnétique n'apparaît qu'au-dessous de la température ambiante (Gd : $T_c = 293$ K, Tb : $T_c = 220$ K ; Dy : $T_c = 85$ K). Notons également que le couplage spin-orbite est important ce qui permet aux moments orbitaux d'être plus liés aux moments de spin qu'au réseau cristallin.

(ii) Les métaux de transition : Ce sont des matériaux où la couche 3d incomplète est une couche externe : les interactions d'échange sont directes et très importantes. Il en résulte que l'ordre ferromagnétique subsiste jusqu'à des températures relativement élevées ($T_c = 1043$ K pour le Fer et $T_c = 627$ K pour le Nickel). Les orbitales électroniques sont alors très fortement couplées au réseau cristallin [2].

Chaque matériau a donc un comportement magnétique lié à sa nature, aussi pour les distinguer, ils sont classés en familles selon leur comportement lorsqu'on applique un champ magnétique extérieur. C'est le rapport du champ magnétique de réaction au champ magnétique appliqué qui détermine la catégorie du matériau. Ce rapport est appelé susceptibilité magnétique (χ_m).

I. 1. 2. Familles des matériaux magnétiques

Les matériaux magnétiques sont classés en fonction de leur susceptibilité magnétique. Parmi ces matériaux on distingue:

- Matériaux diamagnétiques
- Matériaux paramagnétiques
- Matériaux antiferromagnétiques
- Matériaux ferrimagnétiques
- Matériaux ferromagnétiques.

I. 1. 2. 1. Matériaux diamagnétiques ($\chi_m < 0$)

Lorsqu'on applique un champ magnétique extérieur à un matériau diamagnétique, les charges électriques tendent à protéger l'intérieur du matériau. En effet, sous l'influence de ce champ, les charges se déplacent pour produire un courant qui à son tour va produire un champ magnétique opposé à celui qui lui a donné naissance. La susceptibilité est pratiquement indépendante du champ et de la température et est de l'ordre de 10^{-5} [3].

I. 1. 2. 2. Matériaux paramagnétiques, ferromagnétiques, antiferromagnétiques, et ferrimagnétiques ($\chi_m > 0$)

▪ Le paramagnétisme

Le paramagnétisme se rencontre dans les substances ayant un moment magnétique permanent. Ces moments n'interagissent pas entre eux, et sous l'effet de l'agitation thermique les moments magnétiques sont orientés de manière aléatoire donnant lieu à une aimantation résultante nulle. Sous l'action d'un champ magnétique extérieur, la valeur moyenne de l'orientation des moments est modifiée et une aimantation induite

parallèle au champ apparaît. La susceptibilité diminue en fonction de la température et sa valeur est comprise entre 10^{-3} et 10^{-5} à température ambiante.

▪ L'antiferromagnétisme

Les matériaux antiferromagnétiques sont constitués de moments magnétiques couplés antiparallèlement. Cette structure conduit à la division de la substance en sous réseaux possédant des moments magnétiques qui s'annulent. La résultante à l'échelle macroscopique est donc nulle. La susceptibilité est faible et positive et varie selon la formule suivante :

$$\chi_m = \frac{C}{(T-T_N)} \dots\dots\dots (I. 2)$$

Où C est la constante de Curie, T_N représente la température d'ordre-désordre est appelée température de Néel.

▪ Le ferrimagnétisme

Le ferrimagnétisme caractérise un matériau de type antiferromagnétique dans lequel les deux sous-réseaux n'ont pas la même aimantation, il n'y a alors plus compensation exacte de l'aimantation des deux sous réseaux. En dessous de T_c on observe alors une aimantation spontanée [2].

▪ Le ferromagnétisme

Un corps ferromagnétique possède un moment magnétique spontané (même en absence de champ extérieur) [1]. Sous l'effet du champ magnétique, ces matériaux s'aimantent fortement et peuvent garder une certaine aimantation même en champ nul. L'existence de cette aimantation, peut s'expliquer par la mise en ordre des moments magnétiques permanents d'atomes voisins qui interagissent entre eux.

Au-delà d'une certaine température appelé température de Curie T_c , le matériau devient paramagnétique (l'agitation thermique brise l'ordre magnétique). En dessous de cette température, il existe donc une aimantation spontanée, le maximum M_0 correspond à l'alignement de tous les moments magnétiques dans la même direction [3]. La susceptibilité χ_m d'un ferromagnétique s'écrit :

$$\chi_m = \frac{C}{(T-T_c)} \dots\dots\dots (I. 3)$$

Où C est la constante de Curie [1]

Ceci dit, les matériaux ferromagnétiques, à l'échelle macroscopique, ne sont pas spontanément aimantés. Pour expliquer ce phénomène, Weiss a émis l'hypothèse que

le matériau est subdivisé en plusieurs domaines ayant des aimantations différentes et orientées différemment, de telles sortes que la résultante de ces aimantations (dans tout le matériau) est nulle. Nous reviendrons plus en détail sur la structure en domaines dans ce qui suit.

Interaction d'échange

Une approche par la théorie quantique est nécessaire pour expliquer le ferromagnétisme. En effet, la théorie classique seule ne peut expliquer l'orientation parallèle des moments magnétiques voisins. L'origine de cette orientation parallèle des moments est déterminée par l'existence d'une interaction d'échange entre eux, exprimée par l'hamiltonien de Heisenberg ci-dessous :

$$H_{ex} = -2J_{ex}S_i \cdot S_j \dots\dots\dots (I. 4)$$

Où : J_{ex} est l'intégrale d'échange et S_i et S_j sont les spins des deux atomes i et j .

J_{ex} est positif pour une interaction ferromagnétique (spins couplé parallèle) et négatif (anti-parallèle) pour une interaction antiferromagnétique, elle diminue rapidement quand de la distance entre eux augmente [4].

L'interaction d'échange totale est obtenue par une sommation limitée aux seules paires les plus proches voisines et s'écrit comme ceci:

$$E_{ex} = -2 \sum_{i,j} J_{ij} S_i S_j \dots\dots\dots (I. 5)$$

I. 1. 3. Cycles d'hystérésis

Un cycle d'hystérésis décrit le comportement d'un matériau ferromagnétique soumis à un champ magnétique extérieur (Fig. I.1). La saturation est atteinte lorsque tous les moments magnétiques sont alignés dans la direction du champ appliqué et on a alors un seul domaine magnétique. Dans le cas des couches minces, la saturation est atteinte plus rapidement que dans les matériaux massifs [5]. Lorsqu'on annule le champ appliqué, l'aimantation du matériau ne suit pas le même chemin qu'à la montée du champ. Le matériau garde une certaine aimantation dite aimantation rémanente (M_R). L'aimantation rémanente est due au fait que le déplacement des domaines magnétiques ne suivent pas un comportement réversible. Pour revenir à l'état initial (aimantation globale nulle), il faut appliquer un champ magnétique dans la direction inverse au premier champ. La valeur pour laquelle l'aimantation de l'échantillon s'annule est nommée champ coercitif (H_C). La saturation est atteinte de nouveau dans la direction du champ négatif. Pour obtenir un cycle fermé (cycle d'hystérésis, on doit remonter vers les champs positifs.

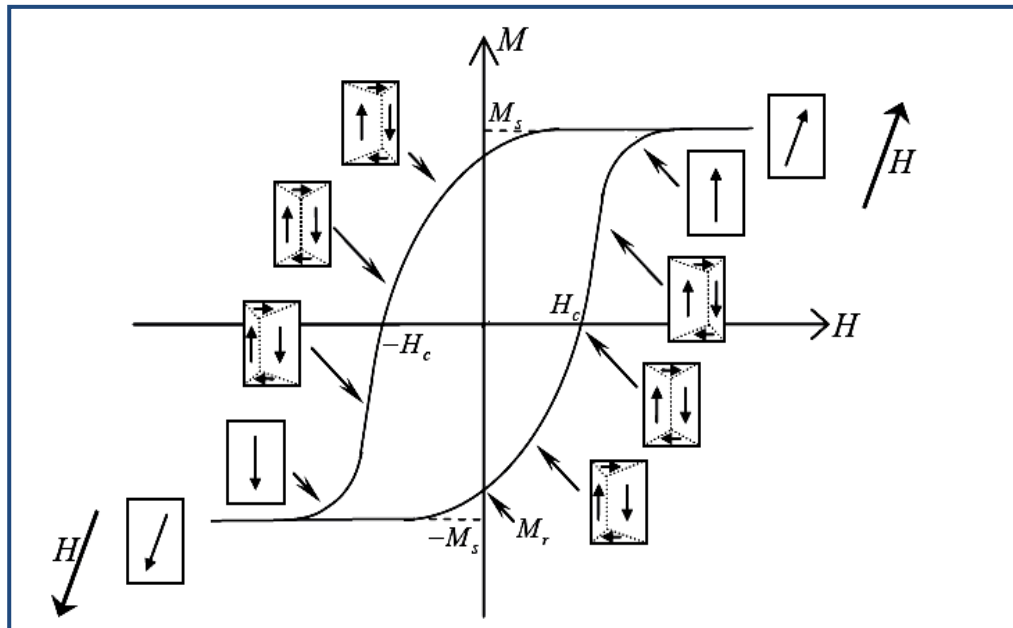


Figure. I. 1. Courbe d'hystérésis d'un matériau ferromagnétique [5].

I. 1. 4. Les domaines magnétiques

Au début du 19^{ème} siècle, les scientifiques ont compris que les matériaux magnétiques sont constitués d'aimants élémentaires. Les théories d'Ampère, Langevin puis Weiss ont tenté de comprendre et d'expliquer ce phénomène. En 1907, Pierre Weiss a publié son hypothèse sur les matériaux ferromagnétiques et a introduit la théorie du champ moléculaire. Il a supposé qu'une partie du cristal est magnétisée dans un sens et une autre partie est magnétisée dans un sens opposé ce qui explique que l'aimantation totale est nulle. Cette théorie a donné lieu plus tard à ce qu'on appelle la structure en domaines magnétiques. Par la suite, d'autres travaux ont permis d'expliquer l'origine des domaines magnétiques et de relier l'idée des domaines au cycle d'hystérésis [6]. En 1935, Landau et Lifshitz ont expliqué que la subdivision en domaines magnétiques se produit dans le but de réduire l'énergie totale, en particulier l'énergie magnétostatique (interaction dipolaire). En effet à grande distance (à l'échelle des domaines) l'interaction des dipôles est plus importante que l'interaction d'échange. L'interaction dipolaire qui provoque la formation des domaines magnétiques peut s'expliquer en se référant à la figure II. 2.

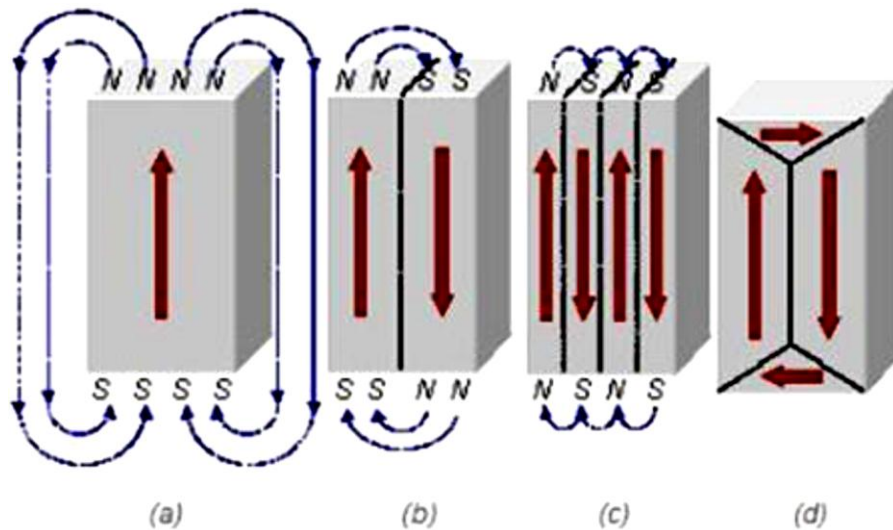


Figure I. 2. Formation des domaines magnétiques [7].

La configuration représentée sur la figure I. 2 (a) présente une grande énergie magnétostatique résultant des pôles magnétiques qui se forment à la surface du matériau. Le domaine magnétique va se diviser en deux (Fig I. 2(b)) pour réduire l'énergie magnétostatique de moitié. La figure I. 2(c) montre l'existence de 4 domaines, qui va encore réduire l'énergie magnétostatique. Enfin, sur la figure I. 2 (d), on observe la fermeture de la structure en domaines où la magnétostriction résultante du matériau est nulle [7].

D'autres divisions de domaines magnétiques peuvent également se produire, mais seulement jusqu'au moment où l'énergie pour la formation de chaque paroi de domaine supplémentaire est supérieure à la diminution de l'énergie magnétostatique. Par conséquent, la taille du domaine magnétique dépend aussi de ce nouveau facteur dû à la présence des parois des domaines magnétiques sur lesquelles nous reviendrons plus en détails.

Enfin, des modèles de domaines magnétiques plus complexes peuvent exister dans des matériaux ayant des formes différentes ou différents constituants des matériaux magnétiques [5]. La frontière séparant deux domaines magnétiques sont connus sous le nom de parois de domaines (Domain walls en anglais) et peuvent prendre divers formes selon l'épaisseur et les énergies mises en jeu (compétition entre les énergies). Dans une paroi de domaine, l'aimantation tourne de manière cohérente d'une direction à une autre sur une distance comprise entre 1nm et 100 nm.

I. 1. 5. Les parois des domaines

a) Les parois de Bloch

Dans les matériaux massifs et les couches minces épaisses, la formation de parois de domaines de types Bloch sont favorisées. Pour ce type de parois, l'aimantation passe d'une

direction (un domaine) à une direction opposée (domaine antiparallèle) en tournant autour d'un axe perpendiculaire au plan de la paroi (Fig. I. 3). La largeur d'une paroi de Bloch est calculée en utilisant la formule :

$$\lambda_B = \pi \sqrt{A/K} \dots\dots\dots (I. 6)$$

Où : A représente une constante qui dépend du couplage ferromagnétique, et K est la constante d'anisotropie (sur laquelle nous reviendrons plus en détails par la suite).

A titre d'exemple, λ_B est de l'ordre de 50 nm pour le fer et excède 100 nm dans les matériaux très doux [2].

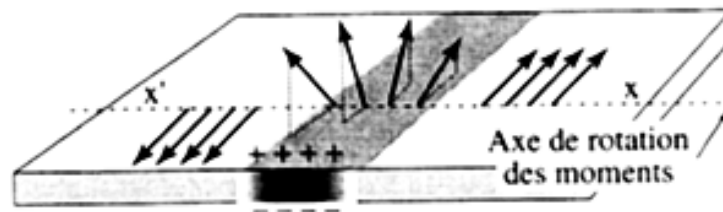


Figure. I. 3. Schéma du retournement de m'aimantation dans une paroi de Bloch [2].

b) Les parois de Néel

Dans le cas des couches minces ayant une épaisseur inférieure à la largeur de la paroi de Bloch, la formation des parois de Bloch devient très coûteuse en énergie. Un autre type de paroi apparaît, ce sont les parois de Néel. Dans les parois de Néel, l'aimantation passe d'une direction à une autre (d'un domaine à un autre) en tournant autour d'un axe parallèle à la paroi (dans le plan de l'échantillon).

L'épaisseur de la paroi de Néel est donnée par cette formule:

$$\lambda_N = \pi \sqrt{\frac{A}{K_1} + \frac{2A}{\mu_0 M_s^2}} \dots\dots\dots (I. 7)$$

Où : K_1 est la constante d'anisotropie magnéto-cristalline, M_s l'aimantation à saturation, μ_0 la perméabilité du vide.

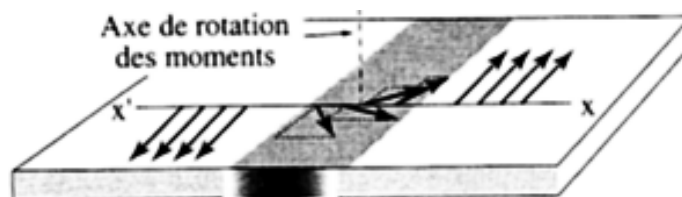


Figure. I. 4. Schéma du retournement de l'aimantation dans une paroi de Néel [2].

c) Les parois mixtes

Dans le cas des couches minces ayant une épaisseur intermédiaire, d'autres types de parois plus complexes peuvent exister. Ces parois peuvent être une combinaison de parois de Néel et de Bloch. Il existe des parois qui sont de type Néel en surface et de Bloch au cœur, ou des parois de Bloch qui possèdent des zones Néel en surface (twisted Bloch wall en anglais) [8].

Expérimentalement on observe souvent un arrangement complexe (Fig. 1. 5) appelé en échelle de perroquet (cross-tie walls en anglais). Cet arrangement n'apparaît que dans les matériaux doux, dans la gamme d'épaisseur intermédiaire entre les parois de Néel et de Bloch, par exemple 30 – 80 nm dans le Permalloy [2].

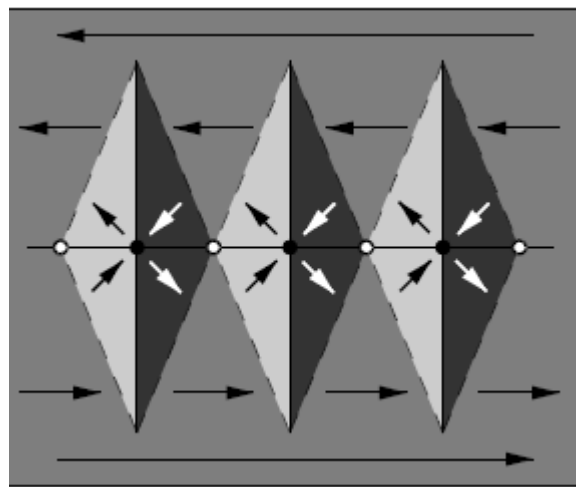


Figure. I. 5. Paroi de type cross-tie [2].

I. 1. 6. Anisotropies magnétiques

Un facteur important pour déterminer les propriétés magnétiques d'un matériau est l'anisotropie magnétique. Dans les matériaux anisotropes les propriétés magnétiques dépendent de la direction dans laquelle elles sont mesurées. Il existe différents types d'anisotropies appelées: anisotropie magnéto-cristalline, anisotropie de forme, anisotropie de surface ou d'interface et l'anisotropie d'échange.

- **Anisotropie magnéto-cristalline**

L'anisotropie cristalline peut être définie comme une force qui tend à orienter l'aimantation dans une certaine direction du cristal. Ceci va induire la formation de directions privilégiée nommée axe de facile aimantation (easy axis). L'énergie nécessaire pour aimanter un échantillon selon cet axe est plus faible (minime). Les autres directions sont appelées axes de difficile aimantation (hard axis). Par exemple pour le Nickel de

structure cubique à faces centrées l'axe de facile aimantation est l'axe [111], alors que pour le Fer (cubique centré) il c'est l'axe [100] (Fig. I. 6) [9]. L'anisotropie magnétocristalline est essentiellement due au couplage spin orbite et au champ cristallin. Pour un cristal de structure cubique qui possède un grand degré de symétrie, la densité d'énergie d'anisotropie s'écrit :

$$E_a = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_3^2\alpha_1^2) + K_2\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 \dots \dots \dots (I. 8)$$

Où :

$\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$: sont les cosinus directeurs de l'aimantation par rapport aux axes cristallins d'un cristal cubique.

K_1 et K_2 sont les constantes d'anisotropie du premier ordre et du deuxième ordre respectivement. Pour le Fer à température ambiante $K_1 = 4.2 \times 10^5 \text{ ergs/cm}^3$, $K_2 = 1.5 \times 10^5 \text{ ergs/cm}^3$. Pour le Nickel $K_1 = -5 \times 10^4 \text{ ergs/cm}^3$ [1].

Dans le cas où un seul axe d'anisotropie existe, on parle d'anisotropie uniaxiale. L'énergie d'anisotropie magnétocristalline s'écrit :

$$E_a = K_u \sin^2 \theta \dots \dots \dots (I. 9)$$

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

Dans le cas du Permalloy polycristallin, des études menées en 1950 ont montré qu'une anisotropie uniaxiale peut être obtenue en appliquant un fort champ magnétique au cours de dépôt [10].

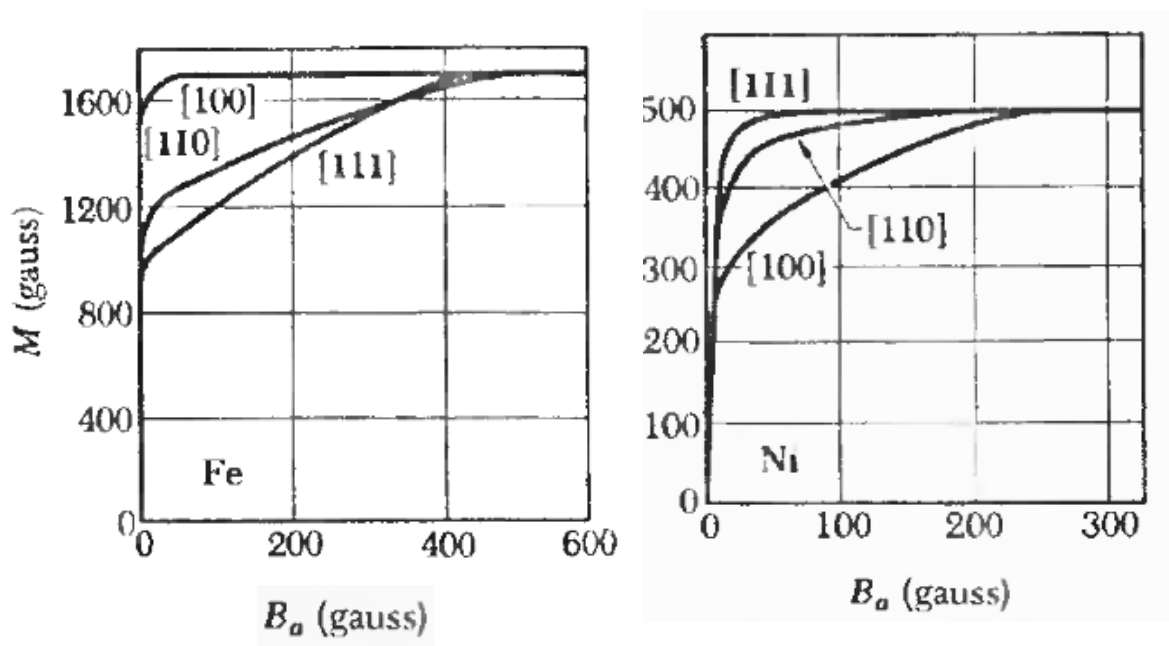


Figure I. 6. Courbes d'aimantation pour des monocristaux de fer et de nickel [9].

- **Anisotropie de forme (ou dipolaire)**

L'anisotropie de forme comme son nom l'indique représente l'influence de la forme du matériau ferromagnétique sur la direction de son aimantation. Lorsque l'échantillon est de forme sphérique, le champ appliqué va aimanter l'échantillon de la même manière dans toutes les directions. Lorsque l'échantillon n'est pas sphérique, il sera plus facile de l'aimanter le long de l'axe le plus long de l'échantillon. Ceci est due au fait que le champ démagnétisant est plus important selon l'axe le plus court (la direction). Sur la Fig. I. 7, on donne l'exemple d'une forme d'une ellipse [11].

L'énergie d'anisotropie de forme est donnée par cette expression :

$$E = - \int_V K_{eff} \sin^2 \theta dV \dots \dots \dots (I. 10)$$

Avec θ l'angle entre le grand axe et la direction de l'aimantation et K_{eff} est donné par :

$$K_{eff} = \frac{1}{2} \mu_0 (N_b - N_a) M_s^2 \dots \dots \dots (I. 11)$$

Où : N_a et N_b sont des facteurs de désaimantation le long du grand axe et du petit axe respectivement, qui dépendent de la géométrie étudiée.

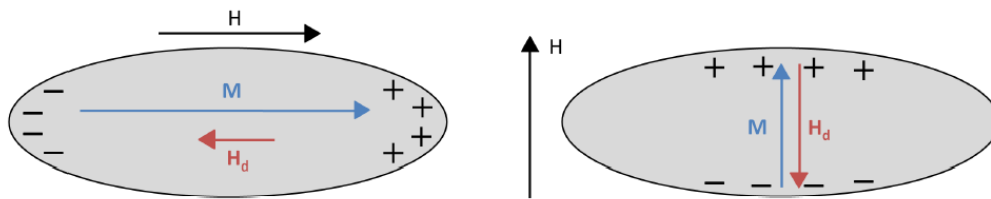


Figure. I. 7. Schéma illustrant l'aimantation selon la géométrie d'une ellipse [11].

- **Anisotropie de surface ou d'interface**

L'anisotropie de surface a été introduite par Néel dans le cas des couches très minces. A la surface des couches magnétiques, l'environnement d'un atome est beaucoup moins symétrique que dans le matériau massif. Cette brisure de symétrie peut privilégier une orientation du moment magnétique perpendiculaire à la surface. Dans de telles couches très minces existe alors une compétition entre l'anisotropie de forme qui tend à orienter l'aimantation dans le plan du film et l'anisotropie due aux atomes de surface (ou d'interface avec un film non magnétique), assez nombreux pour orienter l'aimantation dans la direction perpendiculaire aux couches. Dans un cristal cubique, l'anisotropie de surface est décrite par cette équation [6]:

$$E_s = K_{s1}(1 - m_1^2 n_1^2 - m_2^2 n_2^2 - m_3^2 n_3^2) - 2K_{s2}(m_1 m_2 n_1 n_2 + m_1 m_3 n_1 n_3 + m_2 m_3 n_2 n_3) \dots \dots \dots (I.12)$$

Où : K_{s1} , K_{s2} les constantes d'anisotropie de surface, m_i les composantes de l'aimantation selon les axes cristallins d'un cristal cubique et n_i les normales à la surface.

- **Anisotropie d'échange**

L'anisotropie d'échange a été découverte par Meiklejohn et Bean pour le cas des petites particules [11]. Cette anisotropie résulte de l'interaction entre un matériau antiferromagnétique et un matériau ferromagnétique, et se traduit par un déplacement des cycles d'hystérésis lorsque l'échantillon est refroidi sous champ magnétique. L'anisotropie d'échange est unidirectionnelle et s'exprime comme suit :

$$E = -K \cos \theta \dots\dots\dots (I.13)$$

Où : K est la constante d'anisotropie et θ l'angle entre M_s et la direction du champ appliqué durant le refroidissement de l'échantillon.

- **Anisotropie magnéto-élastique**

L'énergie magnéto-élastique est liée à une déformation de la maille cristalline, en taille et/ou en symétrie. La déformation peut être engendrée par un opérateur extérieur au système. Dans le cas des couches minces, il existe toujours des déformations, même en l'absence d'opérateur extérieur, car au cours de la croissance le substrat contraint le matériau magnétique déposé qui a souvent une autre symétrie et/ou une taille de maille différente. Les contraintes liées au refroidissement ou au réchauffement d'une couche après sa fabrication, peuvent également être importantes. Il s'ensuit dans la couche magnétique un champ de déformation statique.

I. 2. Le permalloy

L'étude des matériaux magnétique à l'état massif ou sous différentes géométries n'a cessé de croître. L'arrivée de nouveaux procédés de fabrication a permis l'apparition des couches minces, des couches ultra minces et des nano-structures (tel que les nanofils). Les propriétés de ces matériaux font toujours l'objet d'études approfondies et ont apporté de nombreuses applications. L'enjeu principal de ces recherches repose sur la miniaturisation et la rapidité de ces dispositifs de stockage des données liées au magnétisme.

Le permalloy ou $Ni_{80}Fe_{20}$ est l'un des rares matériaux où il y a eu une continuité entre état de l'art historique des matériaux ferromagnétiques doux massifs et celui des couches minces. De plus, cet alliage bénéficie en couche mince de techniques d'élaboration doubles : par voie

chimique (électrolyse) et par voie physique (dépôt en phase vapeur), ce qui en fait la couche mince ferromagnétique de loin la plus utilisée aujourd'hui dans les laboratoires et dans l'industrie. Ce matériau est caractérisé par une haute perméabilité, une faible coercivité ($< 10\text{Oe}$) et une anisotropie magnétocristalline quasi nulle [12].

Le permalloy cristallise dans une structure cubique face centré en dessous de $600\text{ }^{\circ}\text{C}$ et est ferromagnétique (voir Fig. I. 8).

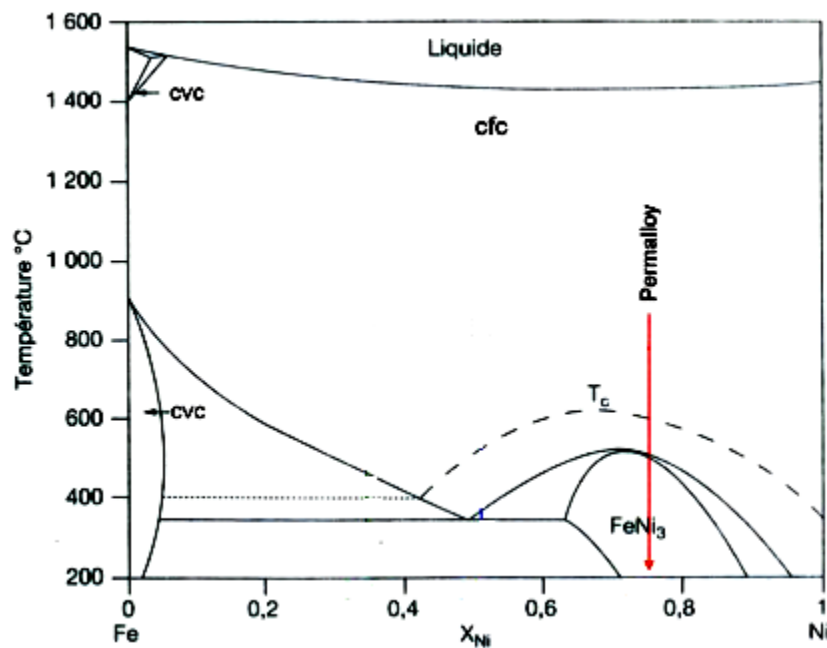


Figure I. 8. Diagramme de phase des alliages Fe-Ni.

I. 2. 1. Etat de l'art des couches minces de permalloy

C- Permalloy élaboré par voie physique

Depuis six décennies l'étude des films de permalloy n'a cessé de croître, en raison de la diversité des techniques et des conditions d'élaboration disponibles et des besoins de l'industrie. Dans ce qui suit nous allons citer certains des travaux récents qui traitent des couches minces de permalloy, sur lesquels nous nous sommes appuyés pour mener à bien ce travail. On peut citer les travaux de Svalov et al. [13], qui ont étudié des couches minces de permalloy de 100 nm déposées sur du verre par pulvérisation et les bicouches de Ti/Py. Les auteurs ont remarqué une texture des couches minces de Py selon la direction (111) et un champ coercitif inférieur à 20Oe . Luo et al. [14] ont utilisé le silicium comme substrat, pour élaborer des films de Py de 30 nm en utilisant la pulvérisation. Les auteurs ont remarqué qu'avec ou sans dopants de Nd, à température ambiante, la coercivité reste inférieur à 70Oe . Chen et al. [15] ont étudié l'effet de la taille des grains

sur les propriétés magnétiques et microstructurales des couches minces de permalloy ayant des épaisseurs de 30 à 100 nm. Les auteurs ont utilisé le verre comme substrat et ont étudié l'effet du recuit sur les couches minces obtenues.

On peut également citer les travaux de Szmaja et al. [16] qui ont utilisé l'évaporation sous vide pour déposer des films de permalloy avec des épaisseurs de 10 nm et 60 nm sur des substrats de verre. Cette étude rapporte pour la première fois l'observation des cross-ti walls dans les films de 10 nm d'épaisseur (voir Fig. I. 9)

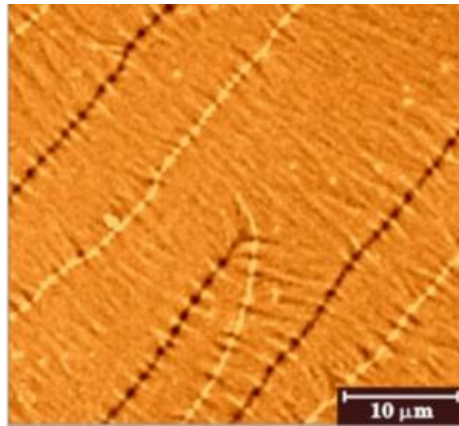


Figure I. 9. Image de Cross-ti walls obtenue par microscopie de Lorentz pour une couche mince de Py de 10 nm d'épaisseur [16].

Guittoum et al. [17] se sont intéressés à l'effet du substrat et de l'épaisseur de couches minces de permalloy. Cette étude a révélé que l'orientation préférentielle des couches minces change en fonction du substrat utilisé et de l'épaisseur du film. Les auteurs ont également obtenu des valeurs du champ coercitif qui varient entre 1 Oe et 40 Oe en utilisant un substrat de Si (100), lorsque l'épaisseur change (voir Fig. I. 10).

Malkinski et al. [18] qui se sont intéressés à l'étude de l'aimantation de couches minces de NiFe déposées sur du silicium en utilisant une co-pulvérisation de Ni et de Fe, pour des épaisseurs allant de 30 nm à 200 nm, ont observé des cycles d'hystérésis inhabituels et ont attribué ce comportement au stress résiduel entre les dépôts et le substrat.

Aussi les travaux de Cao et al. [19] qui ont utilisé le quartz comme substrat pour déposer dessus le permalloy en utilisant l'évaporation, ont révélé une forte texture selon la direction $\langle 111 \rangle$, une cristallinité qui augmente et de meilleures propriétés magnétiques douces (coercitivité) lorsqu'on applique un champ magnétique de 6T durant l'élaboration des échantillons.

D'autres travaux traitent de l'influence de certaines conditions d'élaborations telles que l'angle de la cible du permalloy durant le dépôt des couches minces [20], de la sous couche et du stress [21], et la vitesse de dépôt [22].

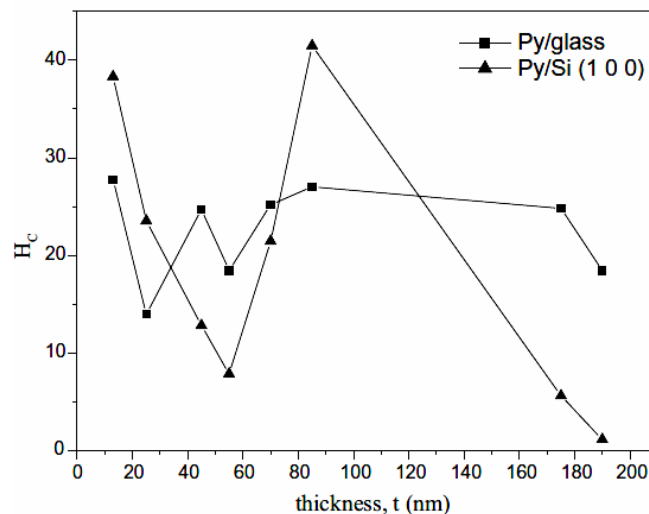


Figure. I.10 .Evolution du champ coercitif de couches minces de permalloy en fonction de l'épaisseur et du substrat [17].

Lors de cette recherche bibliographique, nous avons remarqué qu'il y a relativement peu d'articles qui traitent de l'observation des domaines magnétique sur des couches minces de permalloy. On peut citer les travaux de Gentils et al. [23] qui ont étudié la structure des domaines magnétiques, en contrôlant l'axe d'anisotropie (en appliquant un champ durant l'élaboration) pour des couches minces de permalloy déposé sur un substrat de Si_3N_4 . McCord et al. [24] ont observé les domaines magnétiques et la transition entre les domaines dans les bicouches $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}/\text{NiO}$ en utilisant la microscopie magnéto-optique à effet Kerr. Les auteurs ont, entre autre, observé des parois de type coss-tie pour ce système.

Cette recherche bibliographique nous a permis de constater que les propriétés structurales, magnétique et micro-magnétiques, sont intimement liées à la méthode et aux conditions d'élaboration des couches minces de permalloy. Il est également important de noter que lors de cette étude bibliographique, nous n'avons trouvé aucun travail traitant de l'influence de la direction du champ magnétique appliqué sur le comportement des domaines magnétiques.

D- Permalloy élaboré par voie électrochimique

L'élaboration des couches minces par la méthode de l'électrodéposition est une bonne alternative aux voies physiques. En effet l'électrodéposition est une technique peu coûteuse et facile à mettre en œuvre. Plusieurs études concernant l'électrodéposition du permalloy (Py) ont été menées ces dernières années. On peut citer les travaux de Kuru et al. [25] qui ont étudié l'effet des faibles et grands potentiels sur les alliages de NiFe. Les auteurs ont obtenu des couches minces ayant la composition du permalloy pour une tension de $-1.8\text{V}/(\text{SCE})$ en utilisant le Ti comme substrat. Llavona et al. [26], se sont intéressés à l'étude de la codéposition anormale des alliages Fe-Ni sur du silicium plat et sur des membranes nano-poreuses. Les auteurs ont observé que la composition des dépôts est différente en utilisant les deux types de substrats. En effet la codéposition anormale croît lorsque le NiFe est déposé dans les pores (voir Fig. I. 11). Ils ont également noté que le dégagement d'hydrogène influe sur la composition des dépôts.

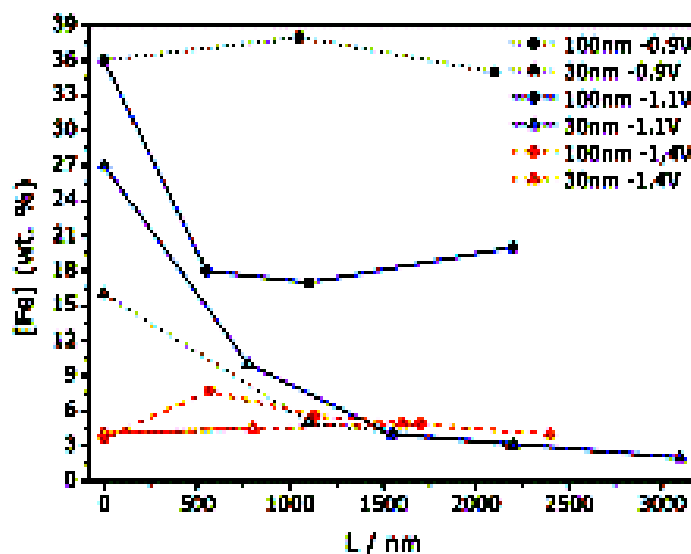


Figure. I. 11. Profil de concentration du Fe dans les nanopores pour des dépôts NiFe [26]

Cao et al. [27] se sont intéressés à l'étude des propriétés magnétiques des couches minces de NiFe déposées sur un substrat de verre conducteur (ITO). Le potentiel utilisé est de $-1.3\text{V}/(\text{SCE})$ pour différents temps de dépôts (différentes épaisseurs). Leur étude montre une croissance sous forme de colonnes, ce qui a induit une diminution du rapport M_r/M_s (appelé squareness en anglais) en fonction de l'épaisseur des films. Sam et al. [28] ont étudié l'électrodéposition du permalloy sur du silicium (100) en utilisant différentes solutions. Les micrographies MEB révèlent que les dépôts obtenus par une solution diluée sont plus compacts que ceux réalisés par une solution concentrée (Fig. I. 12). Spada et al.

[29] ont élaboré des dépôts par voie électrochimiques et se sont intéressés aux propriétés magnétiques des couches minces. Gao et al. [30] ont élaboré et caractérisé des couches minces de permalloy déposées sur du silicium (111) par voie électrochimique. Les auteurs ont étudié la composition des films, leurs structures et leurs propriétés magnétiques. Ils ont observé une diminution du champ coercitif en fonction du potentiel appliqué.

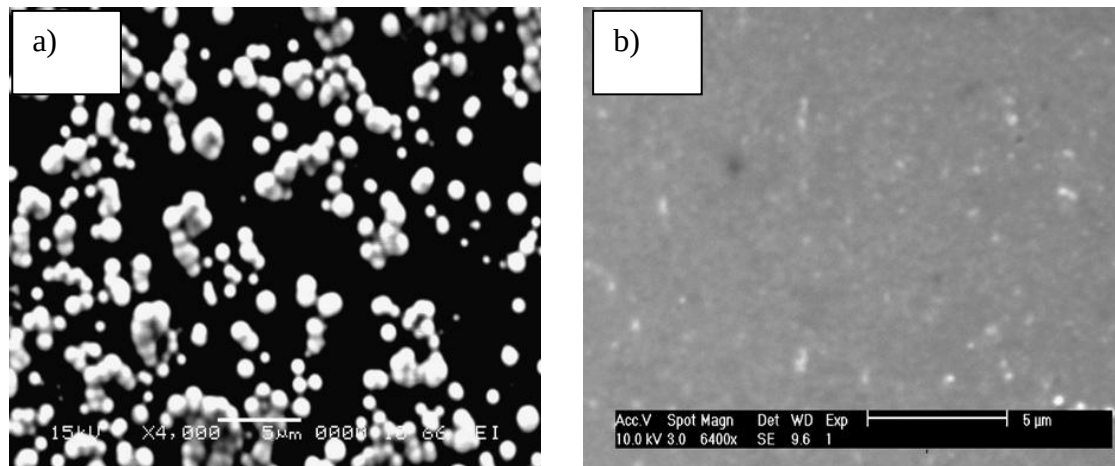


Figure. I. 12. Influence de la concentration de la solution sur la morphologie des dépôts de permalloy sur n-Si (100) : a) Solution concentrée, b) Solution diluée [28].

Durant cette étude bibliographique, des travaux très intéressants concernant les dépôts de NiFe sur des nanostructures tels que les nanopores ont attiré notre attention. En effet, nous avons remarqué que plusieurs études concernant les dépôts de NiFe sur des nanopores de silicium ont été effectuées. On peut citer les travaux de Ouir et al. [31] qui ont étudié l'effet de la morphologie du silicium nanoporeux sur la croissance des alliages NiFe par électrodéposition. Les auteurs ont obtenu des stœchiométries de l'alliage NiFe différentes, en utilisant le silicium macroporeux et mesoporeux comme substrats. Aravamudhan et al. [32] ont synthétisé des substrats de silicium poreux par gravure électrochimique. Le silicium poreux obtenu a été utilisé comme substrat pour déposer l'alliage NiFe. Cette structure a donné lieu à des nanofils de NiFe.

Zhang et al. [33] ont déposé des alliages de NiFe dans des membranes poreuses d'oxyde d'aluminium anodisé. Ce qui a donné lieu à des nanofils et des nanotubes de NiFe. Les mesures magnétiques montrent que l'anisotropie magnétique est très fortement liée à la longueur des nanofils et des nanotubes.

I. 3. Problématique et motivation

Le permalloy est caractérisé par une haute perméabilité, une faible coercivité et une anisotropie magnétocristalline très basse. C'est un matériau largement utilisé en industrie, ce qui a motivé la continuité des recherches le concernant, en particulier sous forme de couches minces. En effet le comportement magnétique des films minces de Py dépend de beaucoup de paramètres comme le prouve l'état de l'art les concernant. Dans ce contexte et dans la perspective d'apporter notre modeste contribution à l'étude et à la compréhension des phénomènes qui régissent le comportement des couches minces de Py, nous avons entamé cette thèse. Pour ce faire, nous avons d'abord opté pour des films élaborés par voie physique, en utilisant l'évaporation sous vide. Nous avons étudié l'effet du substrat et de l'épaisseur sur les propriétés des couches minces de Py. Nous nous sommes intéressés à l'influence de ces paramètres sur le magnétisme et notamment la structure des domaines magnétiques. L'étude bibliographique menée alors, a attiré notre attention sur les récents travaux des dépôts de permalloy sur des nanostructures. A partir de là, nous avons souhaité orienter nos recherches vers une technique peu coûteuse, rapide et facile à mettre en œuvre nous permettant d'obtenir des dépôts de Py sur une nanostructure. Nous avons donc opté pour l'électrodéposition. Cette technique, exigeant un substrat conducteur, nous a conduits à utiliser le silicium et les nanofils de silicium. Nous nous sommes intéressés à l'étude du potentiel de dépôt (électrochimique) sur les propriétés du permalloy déposé sur des nanofils de silicium.

Références bibliographiques

- [1] C. Kittel, « *Physique de l'état Solide* », 7^{ème} édition, Dunod, Paris (1998) 415-483
- [2] J. Degauque, Magnétisme et matériaux magnétiques : introduction. Journal de Physique IV, 02 (1992) C3-1-C3-13
- [3] M. Cyrot et J. P. Yonnet, « *Magnétisme I-Fondements* », édition EDP Sciences (2000) 40-110
- [4] A. Bollero, Thèse de doctorat, Université de technologie de Dresden (2003) 4-13
- [5] Z. B. J. Hujan, Mémoire master, université de York (2013) 8-20
- [6] A. Hubert, R. Schäfer, « *Magnetic Domains, The analysis of magnetic micro-structures* », Springer-Verlag Berlin and Heidelberg GmbH & Co. KG (1999) 230-427
- [7] L. D. Landau and E. Lifshitz, « *On the theory of the dispersion of magnetic permeability in ferromagnetic bodies* », Physikalische Zeitschrift der Sowjetunion 8 (1935) 153-169
- [8] A. Thiaville, cours « *Structure en domaines dans les systèmes de basse dimensionnalité* », Brasov (2003) 1-5
- [9] H. Alloul, « *Physique des électrons dans les solides: Structure de bandes, supraconductivité et magnétisme* », les Editions de l'école polytechniques (2007) 243-260
- [10] M. Takahashi, J. Appl. Phys. 33 (1962) 1101-6
- [11] G. Kumar, Thèse de doctorat, Université de technologie de Dresden (2005) 6-13
- [12] I. Hashim, Thèse de doctorat, Institut de Technologie de Californie (1994) 1-32
- [13] A.V. Svalov, G.V. Kurlyandskaya, B. González Asensio, J. M. Collantes, A. Larrañaga, Mater. Lett. 152 (2015) 159-162
- [14] C. Luo, Y. Fu, D. Zhang, S. Yuan, Y. Zhai, S. Dong, H. Zhai, J. Magn. Mater. 374 (2015) 711-715
- [15] Y. T. Chen, C.W. Wu, Intermetallics. 34 (2013) 89-93
- [16] W. Szmaja, J. Balcerski, W. Kozłowski, M. Cichomski, J. Grobelny, M. Smolny, P. J. Kowalczyk, J. Alloys Compd. 521(2012) 174-177
- [17] A. Guittoum, A. Bourzami, A. Layadi and G. Schmerber, Eur. Phys. J. Appl. Phys. 58 (2012) 20301
- [18] L. M. Malkinski, R. Eskandari, A. L. Fogel, S. Min, J. Appl. Phys. 111 (2012) 07A320
- [19] Y. Cao, Q. Wang, G. Li, J. Du, C. Wu, J. He, J. Magn. Mater. 332 (2013) 38-43
- [20] X. Zhu, Z. Wang, Y. Zhang, L. Xi, J. Wang, Q. Liu, J. Magn. Mater. 324 (2012) 2899-2901
- [21] S. F. Cheng, P. Lubitz, Y. Zheng, A.S. Edelstein, J. Magn. Mater. 282 (2004) 109-114

- [22] W. Lopez, S. Muhl, S.E. Rodil, Vacuum. 83 (2009) 819-823
- [23] A. Gentils, J. N. Chapman, G. Xiong, and R. P. Cowburn, J. Appl. Phys. 98 (2005) 053905
- [24] J. McCord and R. Schäfer, New J. Phys. 11(2009) 083016
- [25] H. Kuru, H. Kockar, M. Alper, O. Karaagac, J. Magn. Magn. Mater. 377 (2015) 59-64
- [26] Á. Llavona, L. Péreza, M. C. Sánchez, V. de Manuel, Electrochim. Acta. 106 (2013) 392-397
- [27] D. Cao, Z. Wang, E. Feng, J. Wei, J. Wang, Q. Liu, J. Alloys Compd. 581 (2013) 66-70
- [28] S. Sam, G. Fortas, A. Guittoum, N. Gabouze, S. Djebbar, Surf. Sci. 601 (2007) 4270-4273
- [29] E. R. Spada, L. S. de Oliveira, A. S. da Rocha, A. A. Pasa, G. Zangari, M. L. Sartorelli, J. Magn. Magn. Mater. 272–276 (2004) e891-e892
- [30] L. J. Gao, P. Ma, K. M. Novogradez, and P. R. Norton, J. Appl. Phys. 81 (1997) 7595-7599
- [31] S. Ouir, G. Fortas, S. Sam, H. Aliouat, A. Manseri, Y. Belaroussi, N. Gabouze, A.Y. Khereddine, J. Phys. Chem. Solids. 73(2012) 391-395
- [32] S. Aravamudhan, K. Luongo, P. Poddar, H. Srikanth, S. Bhansali, Appl. Phys. A 87 (2007) 773-780
- [33] X. Zhang, H. Zhang, T. Wu, Z. Li, Z. Zhang, H. Sun, J. Magn. Magn. Mater, 331 (2013) 162-167.

Chapitre II

Méthodes d'élaboration et de caractérisations

Dans ce chapitre nous allons décrire l'ensemble des techniques et des dispositifs utilisés, ainsi que les conditions expérimentales suivies lors de cette thèse. Nous allons d'abord commencer, dans la section II. 1. 1., par décrire la méthodologie suivie et les dispositifs utilisés pour la synthèse des couches minces de Py par évaporation. Dans la section II. 1. 2. Nous allons présenter les dispositifs et les conditions utilisés pour l'élaboration des couches minces par la technique d'électrodéposition. Enfin dans la section II. 1. 3. Nous allons présenter la technique et les conditions que nous avons utilisées pour l'élaboration des nanofils de silicium et des dépôts de Py sur ces derniers. Dans la seconde partie de ce chapitre nous allons exposer une description des techniques de caractérisation utilisées lors de cette thèse, à savoir la Voltamétrie cyclique (CV), la profilométrie, la diffraction des rayons X(DRX), la microscopie électronique à balayage (MEB), la microscopie à force atomique et à force magnétique (AFM et MFM), la magnétométrie à échantillon vibrant (VSM) et la microscopie optique à effet Kerr (MOKE).

II. 1. Techniques d'élaboration

II. 1. 1. Préparation des substrats

Le nettoyage et la préparation des substrats a été fait au niveau du Centre de Recherche Nucléaire d'Alger (CRNA).

Dans ce travail de thèse, nous avons utilisés trois types de substrats : le verre, le quartz et le silicium. Pour les besoins du transfert de charges et de la morphologie des nanofils de silicium, nous avons choisi d'utiliser du silicium de type n avec une orientation (100) et une résistivité 0.019-0.024 Ω cm. Les échantillons ont été découpés sous forme de carrés de dimensions 1.5 cm×1.5 cm. Les échantillons ont ensuite été nettoyés dans un bain à ultrasons en suivant ces étapes :

- Tétrachloroéthylène pendant 10 minutes à 40°C ;
- Acétone pendant 5 minutes à 40 °C ;
- HF 10% pour désoxyder ;
- Rinçage à l'eau désionisée et séchage par un jet d'azote sec.

II. 1. 2. Elaboration de couches mince de Py par évaporation

L'évaporation sous vide est une technique très utilisée pour l'obtention de couches minces. Le principe est de produire des vapeurs de divers métaux, puis de transporter ces vapeurs sous vide et de les déposer sur un substrat où elles se condensent. La température nécessaire pour l'évaporation est fournie par la source d'évaporation. La chaleur d'évaporation est obtenue dans ce cas par effet Joule par le passage d'un fort courant à travers la source. La qualité des dépôts obtenus par cette technique dépend de plusieurs paramètres. En effet la qualité du vide influe sur la trajectoire des atomes qui s'évaporent. Plus le nombre de collisions que subissent ces atomes est grand plus l'homogénéité du film est moindre. Le pourcentage de particules du métal qui arrive au substrat sans subir de collisions est donné par cette formule [1] :

$$\psi = 100 \exp \left(- \frac{X.P}{5 \times 10^{-3}} \right) \dots \dots \dots (\text{II. 1})$$

Où : X est la distance que parcourent les atomes avant d'arriver au substrat (cm) ;

P : la pression de la chambre de dépôt (Torr).

Afin de minimiser la contamination du film lors du dépôt et d'assurer une bonne homogénéité un vide de 10^{-7} Torr est souhaité [2].

La formation d'un film mince sur un substrat solide commence lorsque les atomes de la vapeur entrent en interaction avec le substrat et forment des agrégats stables. La formation de ces derniers dépend de beaucoup de paramètres tels que la nature du matériau à évaporer, du substrat, des énergies de surface, de la température du substrat et de la vitesse d'évaporation [3].

II. 1. 2. 1. Equipement expérimental

Pour l'élaboration des couches minces de permalloy sur différents substrats, nous avons utilisé un évaporateur de marque MECA 2000 disponible au laboratoire ENMC à l'université de Ferhat Abbas de Sétif (Fig. II. 1). Cet évaporateur est principalement constitué d'une chambre de dépôt et d'un système de vide.

L'enceinte d'évaporation contient trois électrodes en cuivre qui peuvent être reliées à une source de courant. Une nacelle en tungstène qui contient le matériau à évaporer est placée entre deux électrodes. Grâce à un sélectionneur (Figure II.1) 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. A l'intérieur de la chambre, à une distance de 20 cm en parallèle avec la nacelle est placée le porte substrat (Figure. II. 1 (c)). Une microbalance à quartz est placée sur le même niveau que le porte substrat pour le contrôle des épaisseurs et des vitesses de dépôts. Enfin entre la nacelle de dépôt et le porte échantillon, est placé un cache qui sert à délimiter la durée des dépôts. Le cache est mis en place grâce à un levier extérieur lors du moment voulu.

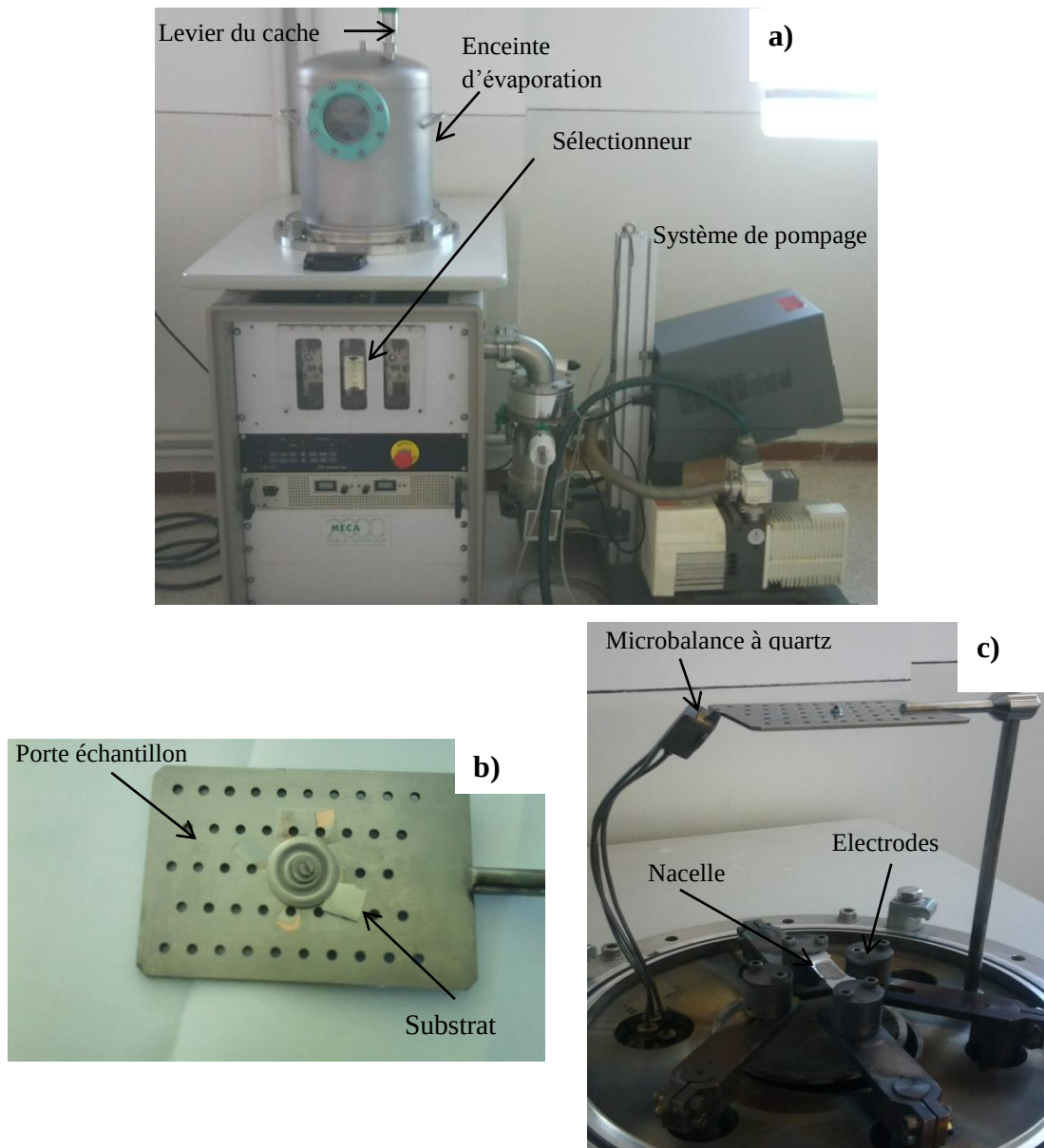


Figure II. 1. Appareillage utilisé pour l'élaboration des couches minces de Py par voie physique : a) Evaporateur MECA 2000, b) Porte substrat, c) Intérieur de la chambre de dépôt.

Le système de pompage est constitué d'une pompe primaire de marque ALCATEL model Pascal 2015SD, d'une pompe turbo-moléculaire ALCATEL mode ATP (150) et d'un contrôleur de vide pour mesurer la pression dans l'enceinte de type ALCATEL model 600 T.

II. 1. 3. Elaboration de couches mince de Py par électrodéposition

Ces dernières années l'électrochimie a pris une place de plus en plus importante aussi bien sur le plan fondamental qu'industriel. Ceci est dû à son bas coût et à la facilité de sa mise en œuvre. L'électrodéposition offre la possibilité d'obtenir des dépôts épais à des durées d'opération record comparativement aux techniques physiques.

Le principe de l'électrodéposition d'une manière générale est le transfert de charge entre un substrat conducteur (électrode) et des ions en solution. Le dépôt métallique se fait selon la réaction de réduction ci-dessous



Où : M^{n+} sont les ions métalliques à déposer, n le nombre d'électrons provenant de l'électrode conductrice.

L'électrode prend un potentiel d'équilibre E_{eq} défini par l'équation de Nernst qui dépend du potentiel normal d'oxydoréduction du couple M^{n+}/M et de l'activité des espèces M^{n+} dans l'électrolyte [4, 5].

$$E_{eq} = E_{\frac{M^{n+}}{M}}^0 + \frac{RT}{nF} \ln\left(\frac{a_{M^{n+}}}{a_M}\right) \dots\dots\dots (II. 3)$$

Où

$E_{\frac{M^{n+}}{M}}^0$: Le potentiel standard de couple redox ;

F : La constante de Faraday (96500 C.mol^{-1}) ;

n : Le nombre d'électrons échangés ;

R : La constante des gaz parfait ($8.315 \text{ J.K}^{-1} \text{ mol}^{-1}$) ;

T : La température absolue en K ;

$a_{M^{n+}}$: L'activité des ions M^{n+} dans l'électrolyte.

L'électrodéposition peut être mise en œuvre par différentes manières de polarisation d'une électrode : potenti- statique ou intensio-statique et cela en mode pulsé ou continu.

La déposition électrochimique d'un métal se fait selon plusieurs étapes :

- Le transfert de masse : c'est-à-dire le mouvement de matière d'un point à un autre de la solution, qui est dû aux différents potentiels électriques ou chimiques de ces points. Il se fait selon trois modes : la migration (causée par le gradient du potentiel électrique), la diffusion (causée par le gradient des concentrations) et la convection (le mouvement hydrodynamique du fluide sous l'influence d'une agitation mécanique ou thermique) [6].
- Le transfert de charge : le transfert de charge se fait à partir de la double couche électrique vers la surface de l'électrode. Il peut se décomposer en plusieurs étapes :
 - Adsorption de l'ion solvatés sur la surface de l'électrode.
 - Désolvatation de l'ion, c'est-à-dire perte de la gaine de solvation.
 - Diffusion et fixation de l'ion adsorbé (ad-ion) sur un défaut de site de la surface de l'électrode [4].

Un montage standard pour l'électrodéposition consiste en une cellule contenant un électrolyte et trois électrodes connectées à un potentiostat :

- L'électrode de travail (WE – working electrode en anglais) est la cathode où la réaction a lieu ; le potentiel de l'électrode de travail est mesuré par rapport à l'électrode de référence.
- L'électrode de référence (RE – reference electrode), qui n'est parcourue par aucun courant. Le rôle de cette électrode, comme son nom l'indique, est de servir de référence pour le potentiel de l'électrode de travail.
- La troisième électrode : l'électrode auxiliaire, parfois appelée contre-électrode (CE), est traversée par le courant des réactions. Les charges mobiles (les ions) qui passent à travers l'électrolyte complètent le circuit électrique.

Lorsque le potentiel appliqué à l'électrode de travail (par rapport à l'électrode de référence) est inférieur au potentiel d'équilibre du couple redox se trouvant en solution (déterminée par rapport à la même électrode de référence), il y'aura une réduction conduisant à un dépôt métallique sur l'électrode de travail. Dans le cas contraire, il y'aura une oxydation et les ions passeront de l'électrode de travail vers la solution.

La codéposition anormale est généralement rencontrée lors de l'électrodéposition en alliage du groupe de fer (Fe, Co et Ni), dans laquelle le métal le moins noble est déposé de façon préférentielle, la concentration de ce métal dans l'alliage étant plus élevée que dans la solution d'électrolyte. C'est le cas, de l'électrodéposition d'alliages Fe-Ni [7].

II. 1. 3. 1. Equipement expérimental

Pour l'élaboration des couches minces de permalloy sur du silicium nous avons utilisé un potentiostat/ galvanostat de marque VMP3, piloté par le logiciel EC-Lab express disponible au niveau du Centre de Recherche en Technologie des Semi-conducteurs pour l'Energétique (CRTSE).

L'élaboration a été faite en utilisant une cellule électrochimique à trois électrodes fabriquée au Centre de Recherche Nucléaire d'Alger: électrode de travail, contre électrode et électrode de référence.

La cellule électrochimique:

Nous avons utilisé une cellule en téflon permettant d'obtenir des dépôts sur une seule face des substrats. La cellule contient un orifice de 1 cm^2 permettant le contact avec la solution. Cette cellule contient l'électrolyte dans laquelle plongent les différentes électrodes. Le couvercle de cette cellule est muni de trois orifices permettant le passage des électrodes (Fig. II. 2).

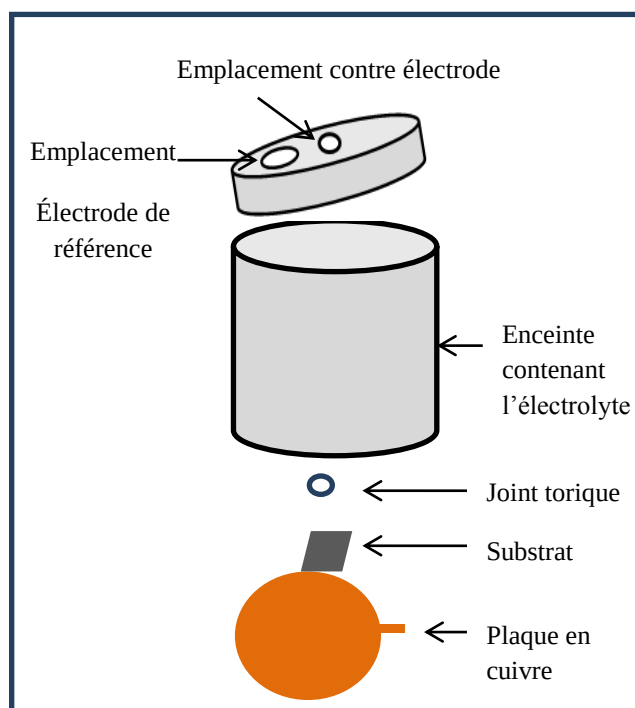
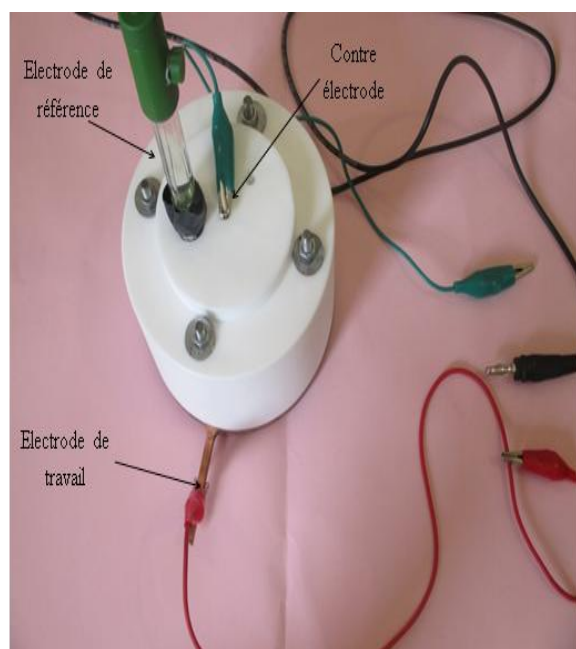


Figure II. 2. Cellule électrochimique

Electrode de travail : L'électrode de travail (ET) est le siège des réactions électrochimiques. En effet, lorsqu'il s'agit d'un processus d'électrodéposition de métaux ou d'alliages métalliques, elle porte couramment le nom de la cathode. Dans notre cas les échantillons de silicium ont été utilisés comme électrode de travail. La surface de cette électrode est fixée à 1 cm^2 par la cellule.

La contre électrode : L'électrode auxiliaire (contre électrode) est considérée comme anode lors du dépôt sur la cathode. La contre électrode doit être placée en face de l'électrode de travail, pour permettre une bonne répartition des lignes de courant. Cette position permet d'avoir des dépôts plus uniformes. Dans notre travail nous avons utilisé un film de platine (Pt) pur à 99.99%.

L'électrode de référence : L'électrode de référence (ER) est généralement constituée d'une électrode idéalement non polarisable : elle est caractérisée par un potentiel constant quel que soit le courant qui la traverse. Le rôle de cette électrode est de servir de référence aux potentiels mesurés. Dans notre cas, nous avons utilisé une électrode de référence Ag/AgCl. Cette électrode est terminée par du verre fritté et est immergée dans une allonge contenant l'électrolyte support. Le potentiel standard de cette électrode de référence par rapport à l'électrode normale à hydrogène à température 25°C est égal à $0.210\text{V}/\text{ENH}$.

II. 1. 4. Elaboration des nanofils de silicium

L'élaboration des nanofils de silicium a été réalisée au CRTSE.

L'élaboration des nanofils du silicium se fait en utilisant la gravure chimique assistée par métal. Cette dernière peut se faire en une seule étape ou en deux étapes. La gravure à deux étapes consiste en une étape de dépôt métallique (généralement des métaux nobles Ag, Au,...), et une étape d'attaque chimique (généralement solution aqueuse à base de HF). Afin d'avoir une seule surface attaquée, la face arrière des échantillons de silicium a été recouverte avec un ruban adhésif résistant à l'HF.

II. 1. 4. 1. Dépôt métallique

Dans notre cas nous avons utilisé l'argent pour le dépôt métallique. Les particules d'argent ont été déposées par voie chimique en utilisant une solution contenant de l'acide fluorhydrique (HF) et 0.05 M de nitrate d'argent (AgNO_3) pendant 1 minute à température ambiante. Le calcul des concentrations se fait selon les formules [8]:

$$V_i = \frac{c_f \cdot V_f \cdot M}{d \cdot 1000 \cdot P(\%)} \dots\dots\dots (\text{II. 4})$$

Où: V_i est le volume initial d'HF à diluer, V_f le volume de la solution finale, C_f la Molarité de l'acide dans la solution finale, M la masse molaire de l'acide, d la densité de l'acide et P la concentration de l'acide en pourcentage.

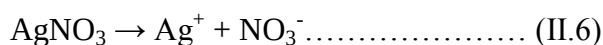
Le calcul de la concentration des nitrates d'argent se fait en utilisant la formule :

$$m_{\text{AgNO}_3} = \frac{M_{(\text{AgNO}_3)} \cdot M_m(\text{AgNO}_3) \cdot V_f}{1000} \dots\dots\dots (\text{II. 5})$$

Où : m_{AgNO_3} est la masse de AgNO_3 , M la molarité, M_m la masse molaire, V_f le volume final de la solution.

Pour obtenir le volume final désiré, on rajoute de l'eau désionisée

Le dépôt métallique se fait selon le mécanisme suivant :



II. 1. 4. 2. Attaque chimique

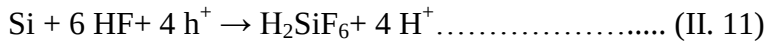
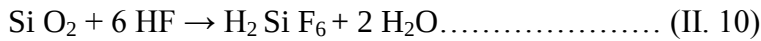
L'attaque chimique du silicium se fait en utilisant une solution aqueuse contenant du HF et un agent oxydant tels que $\text{Fe}(\text{NO}_3)_3$, H_2O_2 , NaS_2O_8 ... Dans notre cas nous avons utilisé le HF de concentration 4.8 M et H_2O_2 comme agent oxydant. L'attaque a été faite à température ambiante durant 60 minutes.

Le phénomène de formation des nanofils s'explique comme suit :

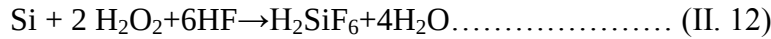
Les particules d'argents se trouvant sur la surface, face à la solution d'attaque agissent comme des cathodes. Ces dernières servent à réduire le H_2O_2 pour former des trous sur la surface du silicium. En effet l'agent oxydant est réduit en captant des électrons des particules métalliques. La face de la particule d'argent qui se trouve face au silicium agit comme une anode qui va oxyder le silicium. Le silicium oxydé devient susceptible de réagir avec l'HF et forme un complexe soluble dans l'eau (H_2SiF_6) ce qui va générer des trous sur la surface du silicium.

Le mécanisme réactionnel de cette étape est le suivant :





La réaction globale est la suivante :



Le contact, particule métallique-substrat est intermittent, la réaction entre l'acide et le silicium oxydé entraîne une croissance en profondeur de ces pores. Comme leur densité est importante, l'immersion prolongée dans le temps de la plaquette du silicium dans la solution d'attaque conduit à la dissolution des murs entre les pores ce qui entraîne à la formation des nanofils de silicium. Le mécanisme d'attaque chimique reste le même quel que soit le type du métal déposé car ce dernier n'intervient pas dans les réactions chimiques mais il s'interpose uniquement à la réduction de l'agent oxydant. La Figure II. 3, schématise le mécanisme de formation des nanofils de silicium [9].

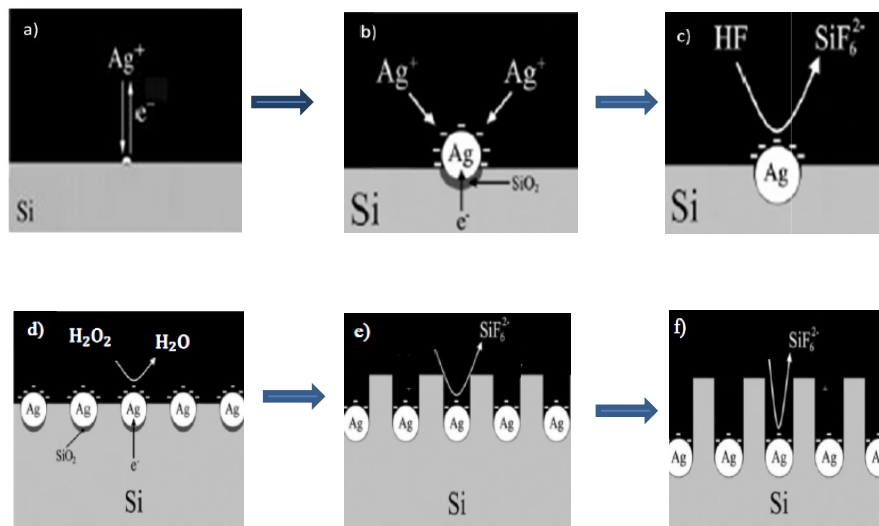


Figure II. 3. Mécanisme de l'attaque chimique assistée par métal par la méthode en deux étapes :a) Processus de dépôt des nanoparticules d'argent sur le silicium, b) Formation de creux suite au dépôt, c) Oxydation du silicium et formation d'un complexe soluble dans l'eau, d) Réduction de l'agent oxydant par les nanoparticules d'argent déposées, e) Formation des pores verticaux, f) Formation des nanofils de silicium [9].

Après cette étape, les échantillons sont rincés abondamment à l'eau désionisée en faisant très attention à ne pas détruire la surface attaquée.

Afin d'éliminer les particules d'argent restantes, les échantillons sont immergés dans de l'acide nitrique HNO_3 , durant quelques minutes. Ils sont ensuite de nouveau rincés abondamment à l'eau désionisée, puis séchés délicatement sous un jet d'azote sec.

II. 2. Techniques de caractérisation

II. 2. 1. Voltamétrie cyclique

La voltammétrie cyclique est une technique très utilisée en électrochimie pour l'étude préliminaire de nouveaux systèmes électrochimiques. Cette méthode consiste à faire, sur l'électrode de travail un balayage aller en potentiel, suivi d'un balayage retour afin de décrire un cycle de potentiel. La courbe de retour est obtenue en inversant le sens de balayage du potentiel. La courbe finale qui présente la variation de l'intensité du courant en fonction du potentiel est appelé voltamogramme. La figure. II. 4, représente un exemple de voltamogramme pour un métal déposé sur un semi-conducteur de type n. Ce cycle est divisé en plusieurs régions :

- La région (A) est appelée région linéaire
- Région (B) correspond au potentiel de nucléation
- Région (B-C) : nucléation
- Région (D-B): surtension de nucléation. D-A : représente la surtension de nucléation, mais D correspond à l'apparition du pic d'oxydation (correspondant à la dissolution du dépôt) [10,11].

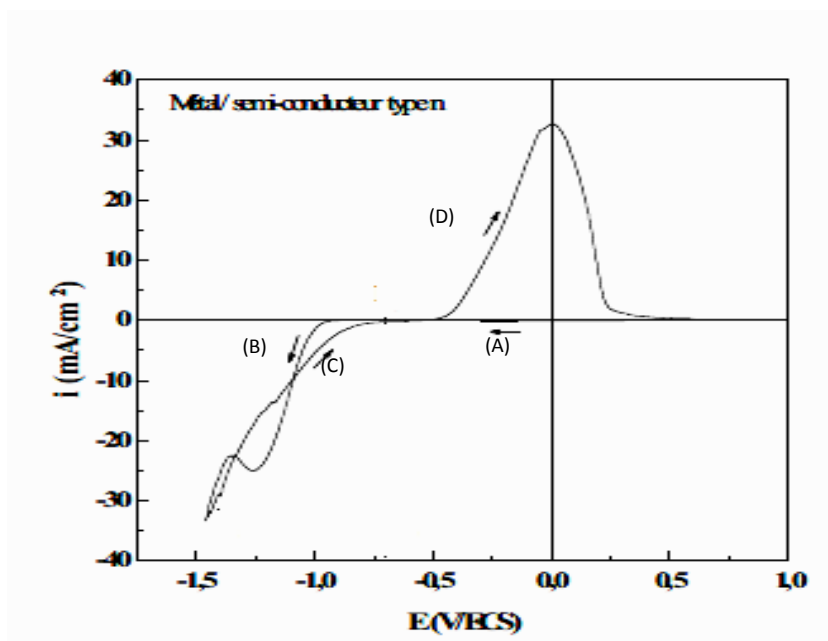


Figure.II. 4. Exemple d'un voltamogramme.

II. 2. 2. Profilométrie

Le profilomètre permet de mesurer l'épaisseur d'une couche mince en utilisant une pointe (stylet) qui se déplace horizontalement sur la surface d'un échantillon. On mesure alors le déplacement vertical de la pointe en fonction de la position de la pointe sur la surface.

La profilométrie a été réalisée à l'Institut pour matériaux métallique à Dresden en Allemagne (IFW).

Les mesures d'épaisseurs des échantillons de Py élaborés par évaporation, ont été réalisées en utilisant un profilomètre de marque Dektak XT. Il est équipé d'un stylet qui permet de mesurer la différence de marche entre la couche déposée et la partie de substrat non recouvert par un dépôt (Fig. II. 5).



Figure. II. 5. Profilomètre utilisé pour les mesures d'épaisseur.

II. 2. 3. Diffraction des Rayons X

La diffraction des rayons X est une méthode d'analyse non destructive permettant d'apporter des renseignements sur la structure cristallographique d'un matériau et les phases présentes. Dans les solides, les atomes sont rangés sous forme de plans (Fig. II. 6). Afin d'obtenir la distance entre ces plans, on utilise la relation de Bragg [12].

$$n\lambda = 2d_{h,k,l} \sin \theta \dots\dots\dots (II. 13)$$

Où :

n : l'ordre de diffraction;

λ : Longueur d'onde des rayons X incident ;

$d_{h,k,l}$: Distance interréticulaire correspondante à une famille de plans désignés par les indices de Miller ($h\ k\ l$);

θ : Angle d'incidence des rayons X, appelé angle de Bragg.

Les interférences constructives, qui obéissent à la relation de Bragg, donnent lieu à des pics de diffraction correspondants aux plans (hkl).

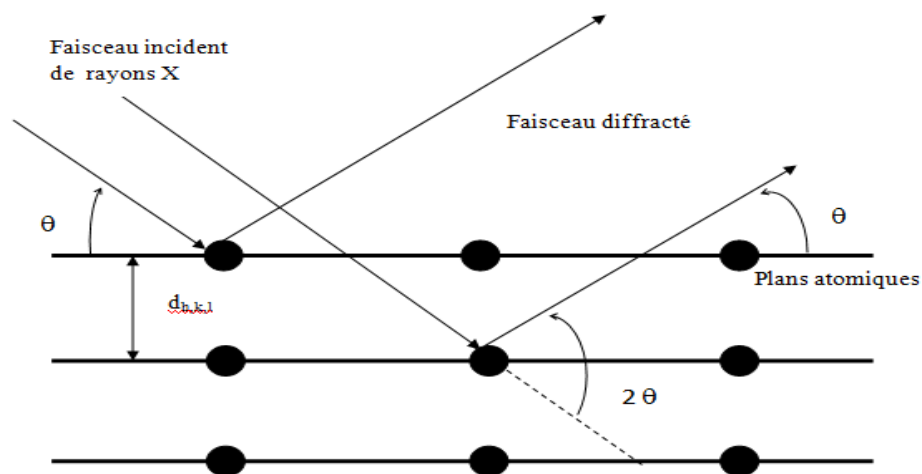


Figure II. 6. Principe de diffraction d'un faisceau des rayons X par les plans cristallins.

Les expériences de DRX ont été réalisées au CRNA pour le mode normal et au Centre de Recherche Nucléaire de Birine (CRNB) pour le mode rasant (Fig. II. 7).

Le diffractomètre utilisé est de type Philips X'Pert Pro. Cet appareil est munit d'un goniomètre vertical en mode θ - θ . Ce mode permet de travailler en gardant l'échantillon immobile et faire varier symétriquement la position du tube à rayons X et du détecteur d'un angle θ . Lors des mesures par DRX des couches minces de Py, nous avons utilisé une différence de potentiel de 45 KV, un courant de 40 mA, et une anticathode en cuivre avec une longueur d'onde moyenne $\lambda(K_{\alpha}) = 1.54056 \text{ \AA}$.

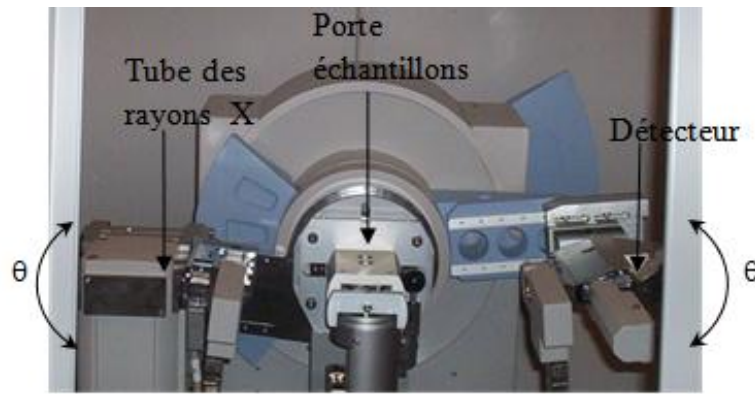


Figure. II. 7. Diffractomètre utilisé Philips X'Pert Pro

II. 2. 4. Microscopie Electronique à Balayage

Dans le microscope électronique à balayage (MEB) ou SEM (Scanning Electronic Microscopy, en anglais), une source émet un faisceau d'électrons, qui sera focalisé (dans le vide) en une sonde fine qui va venir interagir avec un échantillon. Une partie des électrons émis (après l'interaction) peut être détectée à l'aide de détecteurs appropriés. En balayant la surface de l'échantillon il se forme une image sur l'écran. Les principales images produites par le MEB sont de trois types : les images formées par les électrons secondaires, les électrons rétrodiffusés et les spectres obtenus par les rayons X.

- **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. Un élément lourd donnera donc un signal intense (clair), un élément léger un signal faible (sombre). Ces électrons possèdent une profondeur d'échappement de l'ordre de 100 nm.
- **Électrons secondaires :** Ils sont issus de l'interaction inélastique des électrons incidents avec les électrons de l'échantillon. Ces électrons sont sensibles à la topographie de la surface et proviennent de la surface de l'échantillon (0.5 à quelques nm).
- **Les rayons X et les électrons Auger:** lors d'une collision des électrons primaires avec des atomes du solide, un électron d'une couche profonde peut être éjecté et l'atome entre dans un état excité. La désexcitation peut se produire de deux façons différentes: en émettant un photon X ou en émettant

un électron Auger (effet Auger). En analysant le spectre des rayons X, on peut avoir une analyse élémentaire sur la nature des atomes présents [13].

Les observations par MEB des échantillons ont été effectuées à l'Université Mouloud Mammeri de TiziOuzou (UMMTO).

Le microscope est de marque Philips ESEM XL30 (Fig. II.8), la source d'électrons est un filament de tungstène. Des observations des surfaces ainsi que des sections des dépôts de permalloy ont été effectués.



Figure. II. 9.Microscope électronique à balayage ESEM XL 30 utilisé.

II. 2. 5. Microscopie à force atomique et magnétique

Le premier microscope à force atomique (AFM pour Atomic Force Microscopy) a été fabriqué par Binnib, Quate et Gerber en 1986 [14]. Cet appareil est utilisé pour l'analyse du relief d'une surface. L'AFM utilise une sonde qui balaie la surface d'un échantillon à une distance de quelques angströms. La pointe très flexible (pour qu'une faible interaction entre la pointe et l'échantillon puisse être détectée) est montée à l'extrémité d'un microlevier (cantilever en anglais). 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 (Fig. II. 9). 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.

Dans cette thèse des analyses par AFM ont été effectuées en utilisant le modèle digital instruments Dimension 3100 disponible à l'Institut pour Matériaux Métalliques (IFW).

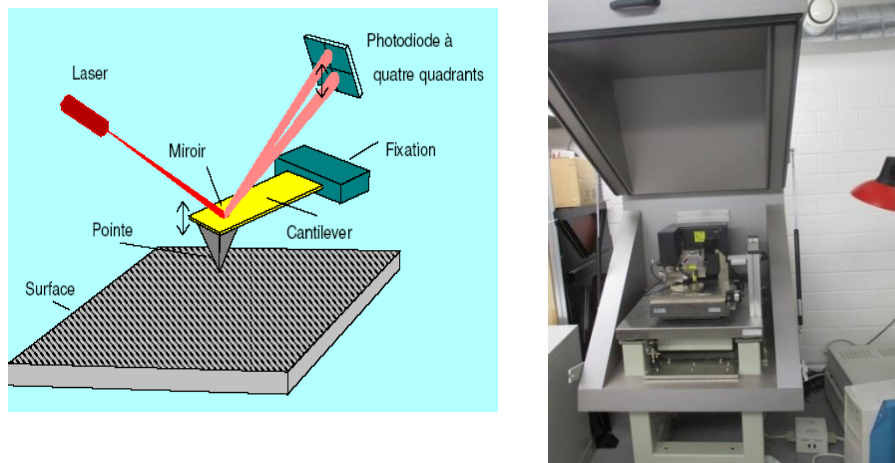


Figure. II. 9. Microscope a force atomique : a) Principe, b) Modèle digital instrument 3100.

II. 2. 7. Magnétométrie à échantillon vibrant

La magnétométrie à échantillon vibrant (VSM : Vibrating Sample Magnetometer en anglais) est une technique d'analyse de propriétés magnétiques. En effet elle permet l'obtention des cycles d'hystérésis (voir chapitre I section 1. 3). Son principe de fonctionnement est de faire vibrer un échantillon placé dans un champ magnétique. Ce qui va créer un flux variable, qui va induire une tension dans les bobines de détection. La tension induite en fonction du temps est donnée par l'équation suivante:

$$V_{bobine} = \frac{d\varphi}{dt} = \left(\frac{d\varphi}{dz}\right) \left(\frac{dz}{dt}\right) \dots \dots \dots (II. 14)$$

Où : φ est le flux magnétique, t le temps et z la position verticale de l'échantillon par rapport à la bobine.

Pour une position de l'échantillon oscillant de façon sinusoïdale, la tension est donnée par l'équation suivante:

$$V_{bobine} = 2\pi f C m A \sin(2\pi f t) \dots \dots \dots (II. 15)$$

Où : f est la fréquence d'oscillation, C une constante de couplage, m le moment magnétique de l'échantillon et A l'amplitude des oscillations [15].

Dans cette thèse, les mesures par VSM ont été effectuées à l'Institut pour Matériaux Métalliques (IFW) de Dresden.

Pour se faire nous avons utilisé un VSM de la firme Quantum Design PPMS (Physical Properties Measurement System). Ce dispositif nécessite que les échantillons aient une taille $3\text{mm} \times 3\text{mm}$. Les échantillons Py sur différents substrats ont donc été découpés en utilisant un stylo à tête diamantée. Ils ont ensuite été collés sur une tige avec de la laque d'argent, en faisant attention à bien les centrer, en utilisant la station de montage (Fig. II. 11).

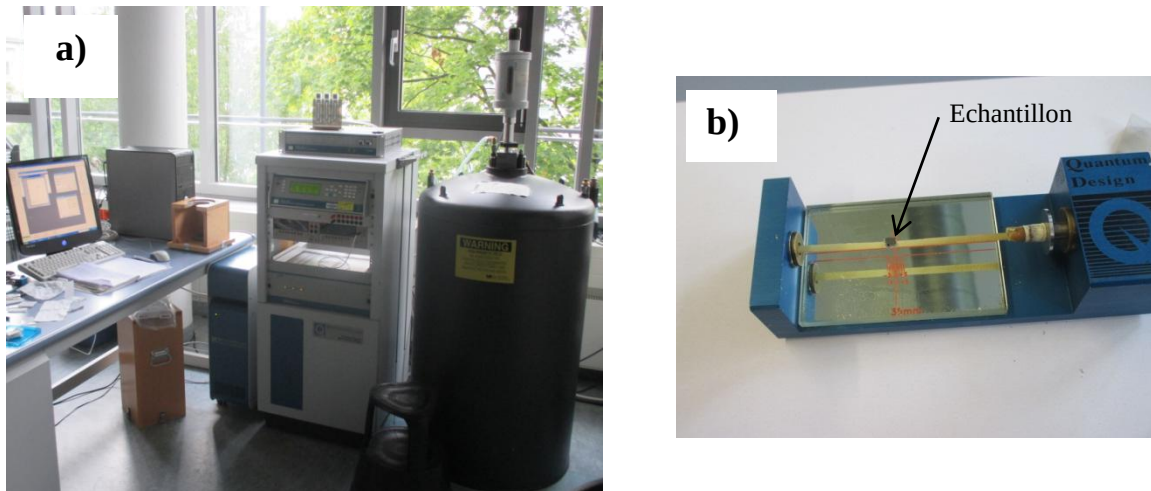


Figure II. 10. VSM utilisé : (a)Modèle Quantum design PPMS, (b) Porte échantillon et station de montage.

II. 2. 7. La Microscopie à effet Kerr

La microscopie optique à effet Kerr (MOKE), est basée sur l'effet magnéto-optique qui mesure de petites rotations du plan de polarisation de la lumière. Ces effets ont d'abord été rapportés par Faraday en 1845 [16, 17], qui a observé que le plan de polarisation de la lumière transmise à travers un échantillon a été mis en rotation par un angle qui dépend de l'aimantation à l'intérieur de l'échantillon. Un effet similaire a été reporté en 1877, concernant

la réflexion de la lumière polarisée par la surface d'un échantillon cet effet est l'effet Kerr [16, 18].

L'effet Kerr magnéto-optique peut être observé dans trois différentes géométries définies par rapport au plan de la lumière incidente (Fig. II. 11) : L'effet Kerr longitudinale, l'effet Kerr polaire, l'effet Kerr transversale.

Dans l'effet longitudinal, comme représenté sur la figure II. 11 (a), l'aimantation est parallèle à la surface de l'échantillon et parallèle au plan d'incidence et de réflexion. De même, dans l'effet transversal, comme représenté sur la figure II. 11 (b), l'aimantation est également dans le plan de l'échantillon bien qu'il soit perpendiculaire au plan d'incidence. Enfin, l'effet polaire où l'aimantation est perpendiculaire à la surface de l'échantillon et au plan d'incidence, comme représenté sur la figure II. 11(c).

L'effet Kerr longitudinal est un outil très utilisé pour la caractérisation des propriétés magnétique des surfaces à l'échelle nanométrique (14 nm pour le cas du fer nickel [16]). L'utilisation de cet effet pour d'étudier les domaines magnétiques a été signalée pour la première fois en 1953 par Fowler et al. [16, 19].

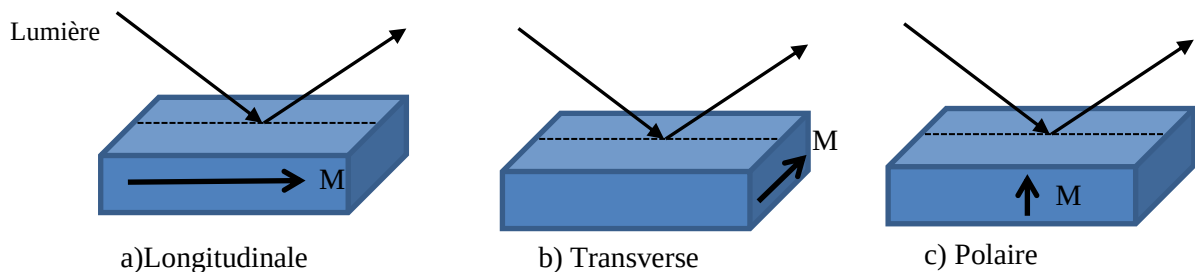


Figure. II. 11. Différentes configurations de l'effet Kerr.

L'observation des domaines magnétiques a été effectuée dans cette thèse, par microscopie optique à effet Kerr de marque EVICO disponible à l'IFW (Fig. II.12).

L'échantillon est placé sur le support en aluminium puis sur le porte échantillon puis sous les lentilles. L'échantillon est fixé à la position désirée à l'aide des fixations situées en bas du microscope. Pour appliquer un champ magnétique extérieur on utilise les bobines

magnétiques à travers lesquelles circule un courant électrique continu ou alternatif selon l'application désirée. La source de lumière pour ce microscope est une lampe LED.

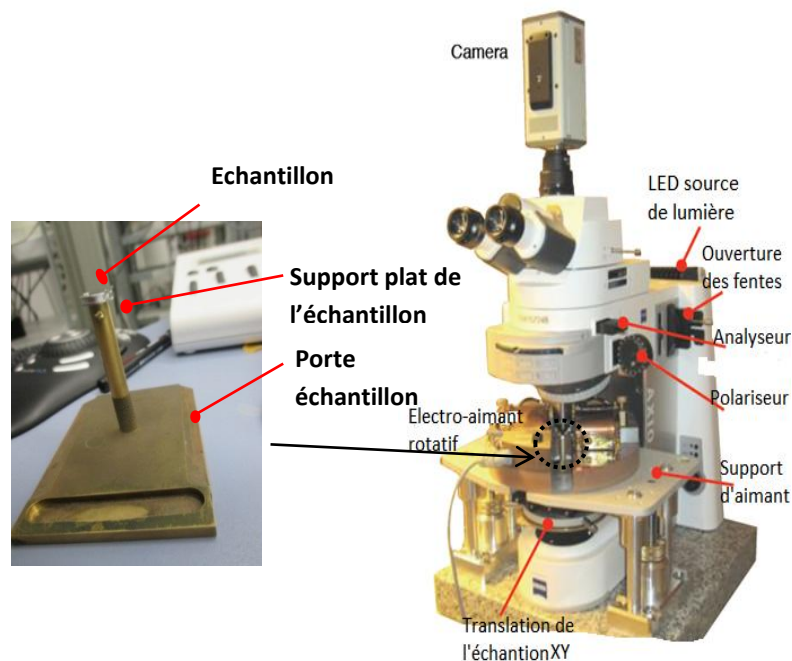
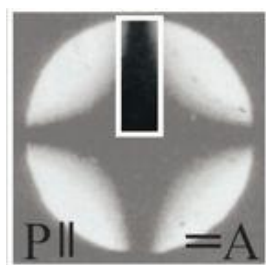
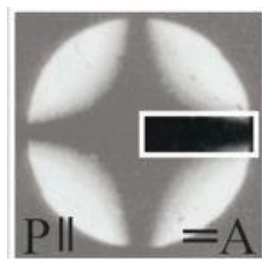


Figure II. 12. Microscope à effet Kerr : a) Les différents constituants du microscope, b) Le porte échantillon.

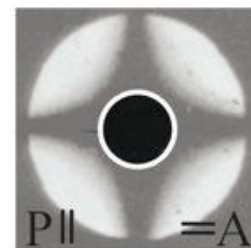
En mode conoscopique, on observe le plan focal arrière de la lentille de l'objectif. A l'aide de l'analyseur et du polariseur on ajuste l'image pour obtenir une sorte de croix de Malte (voir Fig. II.13). A l'aide des fentes on sélectionne le mode Kerr désiré (Figure. II. 13). Dans notre travail, nous avons utilisé le mode Kerr longitudinal. A l'aide du logiciel KerrLab différents réglages sont effectués pour ajuster l'image, choisir le grandissement de la lentille, l'intensité de la lumière, le type de courant, l'amplitude



L'effet Kerr longitudinal



L'effet Kerr transversale



L'effet Kerr polaire

Figure II. 13 Les différents modes de l'effet Kerr expérimentalement

Conclusion

Ce chapitre a été consacré à la présentation des techniques et des conditions utilisés lors de cette thèse. Dans un premier temps, nous avons exposé les techniques d'élaborations, leurs principes, les équipements et les conditions que nous avons choisies pour la synthèse des échantillons. Nous avons principalement utilisé trois techniques, à savoir l'élaboration des couches minces de Py par évaporation sous vide, par électrodéposition, et l'élaboration de nanofils de silicium utilisés comme substrats. Dans la seconde partie de ce chapitre, nous nous sommes intéressés aux techniques de caractérisations utilisées. En effet nous avons commencé par faire un très bref rappel sur les principes de fonctionnements, puis par présenter les appareillages utilisés. Nous avons commencé par décrire les méthodes utilisées pour la mesure des épaisseurs (profilométrie et RBS), puis l'étude des propriétés structurales (DRX), microstructurales (MEB et AFM) et enfin magnétiques (VSM, MFM, MOKE).

La suite de ce travail, dans les chapitres suivants, va traiter des résultats obtenus, à leurs dépouillements et à leurs interprétations.

Bibliographies

- [1] R. R. Willey, « *Practical design and production of optical thin films* », CRC (2002) 152
- [2] D. M. Mattox, « *Handbook of physical vapor deposition (PVD) processing: film formation, adhesion, surface preparation and contamination control* », William Andrew Publishing (1998) 31
- [3] O. Seddiki, Thèse de doctorat, Université Laval, Québec (2010) 32- 35
- [4] W. Plieth, « *Electrochemistry for Materials Science* », Elsevier Linacre house, Jordan Hill, Oxford (2008) 71-193
- [5] G. Hodes, « *Chemical Solution Deposition of Semiconductor Films*», Marcel Dekker, Inc. New York (2002) 88
- [6] A. J. Bard et L. R. Faulkner, « *Electrochimie : Principes, méthodes et applications*», édition Masson (1983) 137
- [7] Á. Llavona, L. Pérez, M. C. Sánchez, V. de Manuel, *Electrochim. Acta.* 106 (2013) 392-397
- [8] O. Fellahi, M. R. Das, Y. Coffinier, S. Szunerits, T. Hadjersi, M. Maamache, R. Boukherroub, *Nanoscale.* 3 (2011) 4662-9
- [9] K. Q. Peng, J. Hu, Y. Yan, Y. Wu, H. Fang, Y. Xu, S. T. See, J. Zhu, *Adv. Funct. Mater.* 16 (2006) 387-394
- [10] M. R. Khelladi, Thèse de Doctorat, Université de Sétif (2012) 50
- [11] S. Boudinar, Mémoire de Magister, Université de Boumerdes (2010) 39
- [12] C. Kittel, « *Physique de l'état Solide* », 7^{ème} édition, Dunod, Paris (1998) 28-50
- [13] C. R. Brundle, C. A. Evans, S. Wilson, « *Encyclopedia of materials characterization* », Elsevier Butterworth-Heinemann (1992) 70-85
- [14] G. Binnig, C. F. Quate, and Ch. Gerber, *Phys. Rev. Lett.* 56 (1986) 930-934
- [15] Quantum Design PPMS VSM Option User's Manual, Rev. A3 (2008) 2
- [16] L. K. Bogart, Thèse de Doctorat, Université de Durham (2010) 74-79
- [17] M. Faraday, *Phil. Trans. R. Soc.* 136 (1846) 1-20
- [18] J. Kerr, *Philos. Mag.* 3 (1877) 321-343
- [19] C. A. Fowler, and E. M. Fryer, *Phys. Rev.* 86 (1953) 426-426

Chapitre III

**Etude des propriétés structurales, microstructurales
et magnétiques des couches minces de permalloy
élaborées par évaporation sous vide**

Ce chapitre est consacré à l'étude des couches minces de Py déposées par évaporation sous vide sur différents substrats. Il traite de l'influence de deux paramètres à savoir l'épaisseur et le substrat sur les différentes propriétés des films de permalloy. Les propriétés structurales ont été étudiées par DRX, la morphologie par MEB et AFM et les propriétés magnétiques par VSM et MOKE.

III. 1. Conditions d'élaboration

Pour l'élaboration des couches minces de Py par évaporation sous vide par effet joule, nous avons utilisé une poudre commercialisée de $\text{Ni}_{81}\text{Fe}_{19}$ pure à 99.995%. Cette dernière a été placée dans un creuset en tungstène à une distance de 20 cm des substrats. La chambre de dépôt est alors refermée et le système de vide enclenché. Avant l'étape de dépôt, la pression de la chambre est inférieure à 1×10^{-7} mbar. Puis on commence à injecter un courant au creuset, qui va commencer à chauffer (rougir). Le début de l'évaporation est indiqué par la lecture de la vitesse d'évaporation et de l'épaisseur. Durant l'évaporation, le vide affiché varie entre 5×10^{-7} mbar jusqu'à 10^{-6} mbar. On enlève alors le cache pour obtenir une condensation du Py sur les différents substrats. Les épaisseurs de films minces de Py élaborés sont obtenues pour différents temps de dépôts, en remettant le cache en place. Une fois cette étape terminée, on diminue petit à petit le courant pour refroidir le creuset et on ouvre les vannes pour casser le vide. Les échantillons de Py/verre, Py/quartz et Py/Si ayant différentes épaisseurs, sont récupérés, placés dans des boîtes et conservés sous vide pour prévenir tout risque de contamination.

III. 2. Caractérisation des couches minces Py élaborées par évaporation

III. 2. 1. Mesures d'épaisseur

Les mesures des épaisseurs des films de Py élaborés par évaporation sous vide pour différents substrats ont été faites au moyen d'un profilomètre (Chapitre II. Section 2. 2). Les résultats obtenus révèlent des épaisseurs de 16 nm, 25 nm, 60 nm et 90 nm.

La figure III.1 représente un exemple de la mesure d'épaisseur, pour un film de Py déposé sur du silicium. Sur cette figure, nous pouvons observer la différence de marche entre la couche mince et le substrat. Pour cet échantillon, l'épaisseur mesurée est de 90 nm.

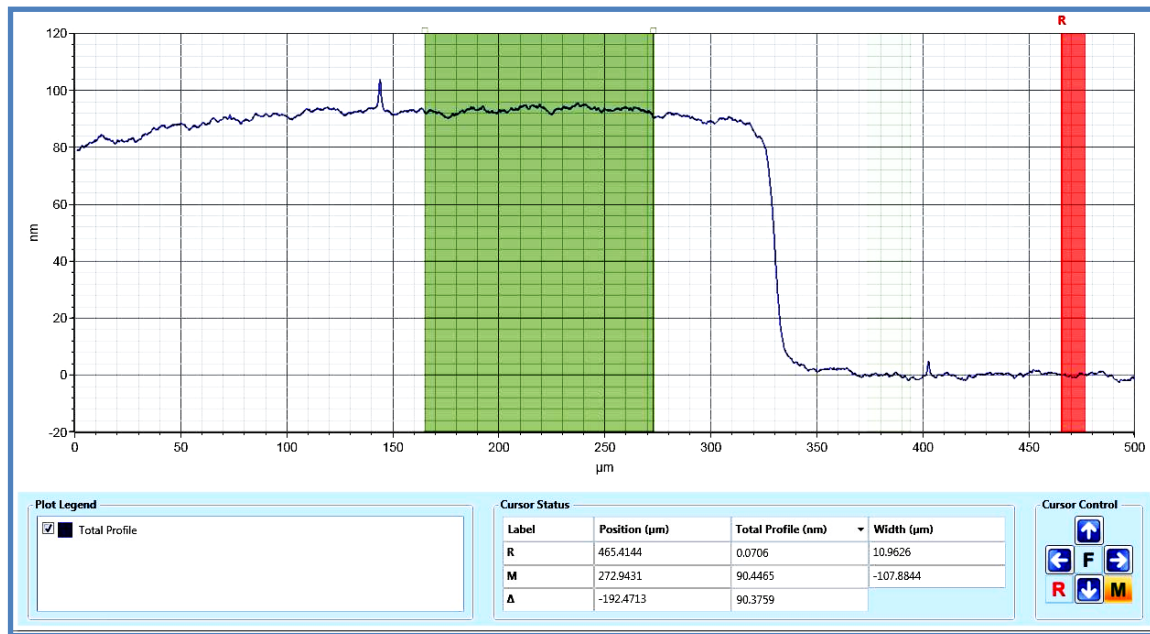


Figure III. 1. Mesure d'épaisseur d'un film Py/ Si par profilométrie.

III. 2. 2. Propriétés structurales

L'analyse des propriétés structurales des couches minces de Py/Si, Py/ verre et Py/quartz pour différentes épaisseurs a été effectuée par DRX en incidence rasante (Chapitre II. Section 2. 4).

Pour ce faire nous avons utilisé un angle d'incidence de 0.2° . Nous avons balayé une gamme angulaire entre 40° et 90° avec un pas de 0.02° .

La figure III. 2 représente diffractogrammes des couches minces de permalloy sur différents substrats (Si, verre, quartz) en fonction des épaisseurs. Pour les échantillons d'épaisseurs 16 nm et 25 nm, nous avons observé la présence d'un seul pic qui augmente en intensité avec l'augmentation de l'épaisseur pour les trois types de substrats. Ce pic, situé à $2\theta = 44.65^\circ$ a été indexé comme étant le pic (111) de la structure cubique à faces centrées (CFC) de l'alliage NiFe. A partir de là nous avons conclu que pour ces deux épaisseurs et indépendamment du substrat utilisé, l'orientation préférentielle est selon la direction $\langle 111 \rangle$.

Pour les films de Py plus épais (60 nm et 90 nm), nous avons remarqué l'apparition d'autres pics situés à des positions de $2\theta = 52.04^\circ$, 76.27° et 92.75° . Ces pics ont été identifiés comme étant les pics (200), (220) et (311) de la phase CFC du NiFe respectivement.

Afin de déterminer la texture des films de Py/Si, Py/verre et Py/quartz nous avons calculé les rapports des intensités des pics par rapport au pic le plus intense : I_{200}/I_{111} , I_{220}/I_{111} et I_{311}/I_{111} ,

avec I_{111} , I_{200} , I_{220} , I_{311} . Les valeurs des rapports obtenus sont comparables à celles du Py sans texture. Il est alors clair que pour les épaisseurs de 60 nm et 90 nm une structure polycristalline est obtenue.

A partir de ces résultats, nous avons conclu que pour ce présent travail, le type de substrat n'a aucune influence sur la texture des films de Py, mais l'épaisseur influe considérablement sur la structure cristalline des couches minces de permalloy.

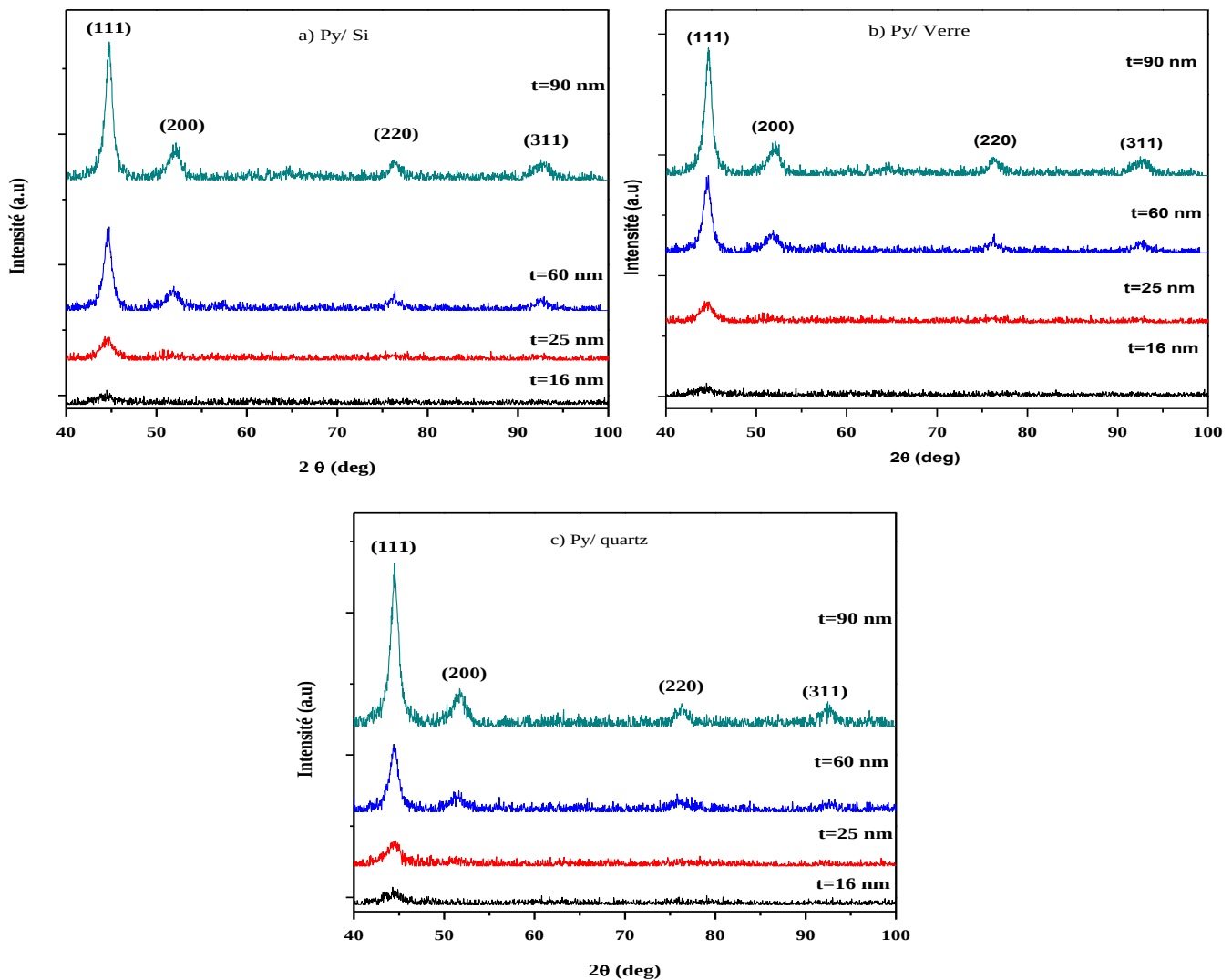


Figure III. 2. Spectres de DRX des couches minces de permalloy en fonction des épaisseurs:
a) sur substrat de silicium, b) substrat en verre et c) substrat en quartz.

À titre de comparaison, nous citons les travaux de Guittoum et al. [1] qui ont observé un changement dans la texture des films de Py en fonction des épaisseurs et du type de substrats.

Co et al. [2] ont observé une forte orientation préférentielle dans la direction $\langle 111 \rangle$ en utilisant un substrat de quartz. Wang et al. [3] ont obtenu une texture en $\langle 111 \rangle$ pour le permalloy élaboré par sputtering en utilisant le verre comme substrat et Cheng et al. [4] ont obtenus une texture en $\langle 111 \rangle$ pour des couches minces de Py de 100 et 560 nm d'épaisseur déposées sur du silicium en utilisant le DC magnetron sputtering comme technique d'élaboration. Hollingworth et al. [5] n'a observé aucune texture pour du Py/ verre borosilicate élaboré par évaporation et ayant une épaisseur entre 20 et 130 nm.

III. 2. 2. 1. Evolution du paramètre de maille et des contraintes

Le dépouillement des spectres de diffraction a été fait en utilisant le logiciel de modélisation X'Pert High Score commercialisé par Philips [6]. Ce logiciel fournit des informations telles que la distance inter réticulaire, la largeur à mi-hauteur des pics de diffraction X.

A partir de ces informations nous pouvons calculer le paramètre de maille en utilisant cette

formule :

$$d_{h,k,l} = \frac{a}{\sqrt{h^2 + k^2 + l^2}} \dots\dots\dots (III. 1)$$

Où :

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

a : paramètre de maille;

h, k, l : indices de Miller.

Le calcul du paramètre de maille a été fait pour tous les échantillons en considérant le pic le plus intense (111) du permalloy. La figure III. 3 (a) représente l'évolution du paramètre de maille, a (Å), des couches minces de Py en fonction de l'épaisseur, t (nm) pour les trois types de substrats.

Nous avons observé une diminution monotone du paramètre de maille en fonction de l'épaisseur pour les trois types de substrats. En effet les valeurs du paramètre de maille passent de (3.5298 ± 0.0009) Å pour 16 nm à (3.5109 ± 0.0009) Å pour 90 nm, pour les substrats de verre et de silicium. Pour le cas du quartz les valeurs de a (Å) passent de (3.5411 ± 0.0009) Å pour 16 nm à (3.5253 ± 0.0009) Å pour 90 nm. Il est à noter que toutes les valeurs du paramètre de maille obtenues pour les couches minces de Py sont inférieures à celle du massif ($a_{\text{massif}} = 3.5385$ Å) [7], à l'exception de l'échantillon de Py/quartz ayant une

épaisseur de 16 nm. Cette différence entre les valeurs expérimentale du paramètre de maille et la valeur du massif est probablement due aux contraintes homogènes [8]. Il est également à noter que les valeurs du paramètres de maille pour Py/ verre et Py/ Si sont quasiment identiques, alors que dans le cas du quartz le paramètre de maille a des valeurs plus élevées. Cette légère différence est probablement due à l'état de surface des substrats.

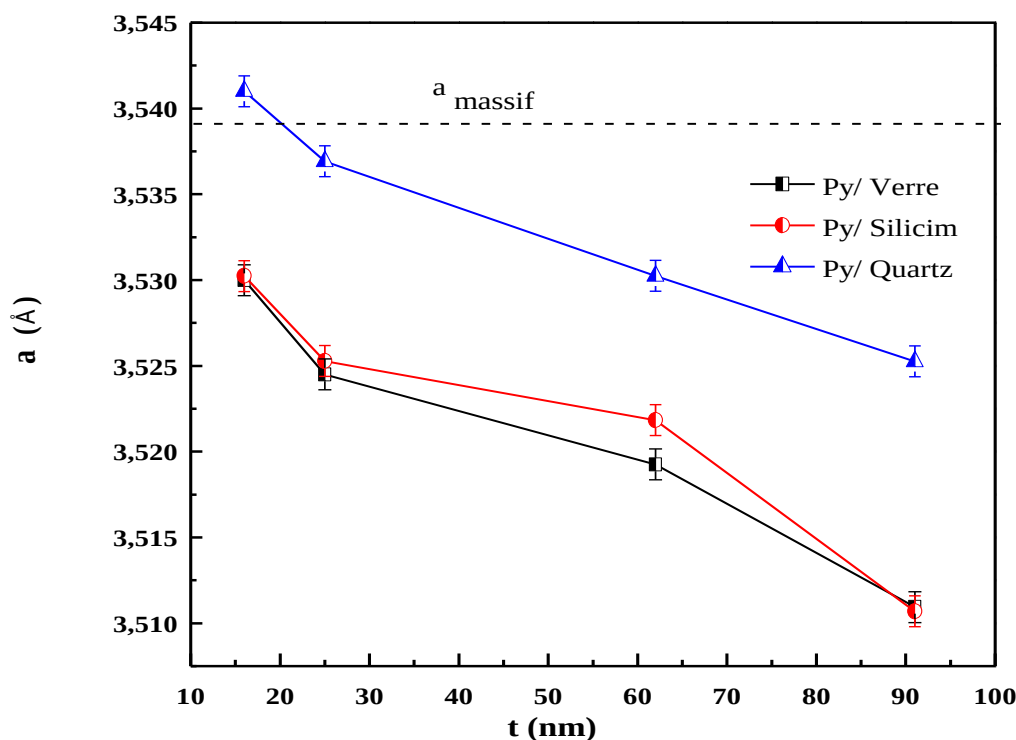


Figure. III. 3. Evolution du paramètre de maille en fonction de l'épaisseur pour différents substrats.

A partir des valeurs du paramètre de maille, nous avons calculé la déformation (strain), ε , définit par cette formule :

$$\varepsilon = \frac{a - a_{\text{massif}}}{a_{\text{massif}}} \dots \dots \dots \text{(III. 2)}$$

La figure III. 4 représente l'évolution de ε (%) pour les couches minces de permalloy en fonction de l'épaisseur et du type de substrat. Nous avons remarqué que toutes les valeurs de la déformation sont négatives et passent de -0.24 % à -0.78% pour le Py/Si et Py/verre pour les épaisseurs de 16 nm et 90 nm respectivement. En ce qui concerne le Py/ quartz, la déformation varie de $\varepsilon = 0.07\%$ à $\varepsilon = -0.37\%$ pour les épaisseurs allant de 16 nm à 90 nm.

Les valeurs négatives de la déformation des films indiquent que les couches minces sont sous des contraintes compressives exception faite pour l'échantillon de Py/quartz de 16

nm d'épaisseur. L'évolution de la déformation est en bon accord avec l'évolution du paramètre de maille. Nous pensons que ces contraintes compressives sont dues au substrat, notamment au caractère amorphe du verre.

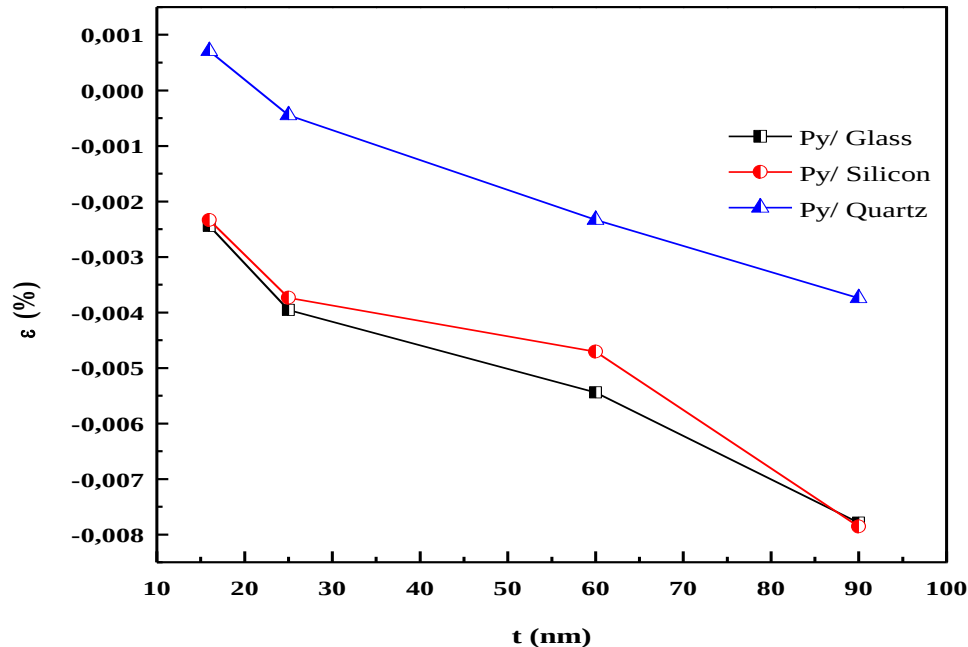


Figure. III. 4. Evolution de la déformation des films de Py en fonction de l'épaisseur pour différents substrats.

III. 2. 2. 2. Evolution de la taille des grains

La taille des cristallites, D (nm), a été calculée pour tous les échantillons à partir des spectres de diffraction. L'affinement des profils de raies de diffraction X a été effectué à l'aide du logiciel High Score [6]. Les largeurs vraies β des raies spectrales ont été déterminées pour le pic de diffraction le plus intense pour chaque échantillon.

Les tailles des grains des couches minces de Py/ verre, Py/Si et Py/quartz ont été calculées en utilisant la relation de Scherrer :

$$D = \frac{0.9\lambda}{\beta \cos \theta} \dots \dots \dots (III. 3)$$

Où :

λ , la longueur d'onde de Cu $K\alpha$ du rayon X

θ , l'angle de diffraction

β , la largeur à mi-hauteur du pic de diffraction.

L'évolution de la taille des cristallites en fonction de l'épaisseur pour les différents substrats est représentée sur la figure III. 5. Nous avons remarqué une augmentation de la taille des grains en fonction de l'épaisseur des films minces pour tous les substrats. Des valeurs extrêmes sont obtenues pour les couches minces de Py/ Verre. En effet la taille des grains passe de $20 \pm 1 \text{ \AA}$ pour 16 nm à $95 \pm 1 \text{ \AA}$ pour 90 nm d'épaisseur pour cette série. Nous avons également remarqué que les plus basses valeurs de la taille des grains sont observées pour la série de Py/ Quartz.

Cette évolution de la taille des grains s'explique par l'agglomération des cristallites lors de l'augmentation de l'épaisseur des couches minces. Ce même comportement a été observé par certains auteurs. Tels que Chen et al. [9], qui ont obtenu une taille de grain de $90 \text{ \AA}$ pour des films de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ayant une épaisseur de $1000 \text{ \AA}$ en utilisant un substrat de verre. Guittoum et al. [1] ont observé que $D \text{ (\AA)}$ augmente de $100 \text{ \AA}$ à $480 \text{ \AA}$ pour des épaisseurs de 70 et 190 nm respectivement en utilisant le verre comme substrat. Aussi, Akhter et al. [10] qui se sont intéressé aux films très fins de permalloy entre 2.5 nm et 10 nm, et ont obtenus des valeurs de $D \text{ (nm)}$ qui passent de $15 \text{ \AA}$ à $75 \text{ \AA}$ en utilisant le verre et le silicium comme substrats. Lopez et al. [11] ont obtenu des valeurs entre $40 \text{ \AA}$ et $180 \text{ \AA}$ en utilisant le verre et le Si (100) comme substrat.

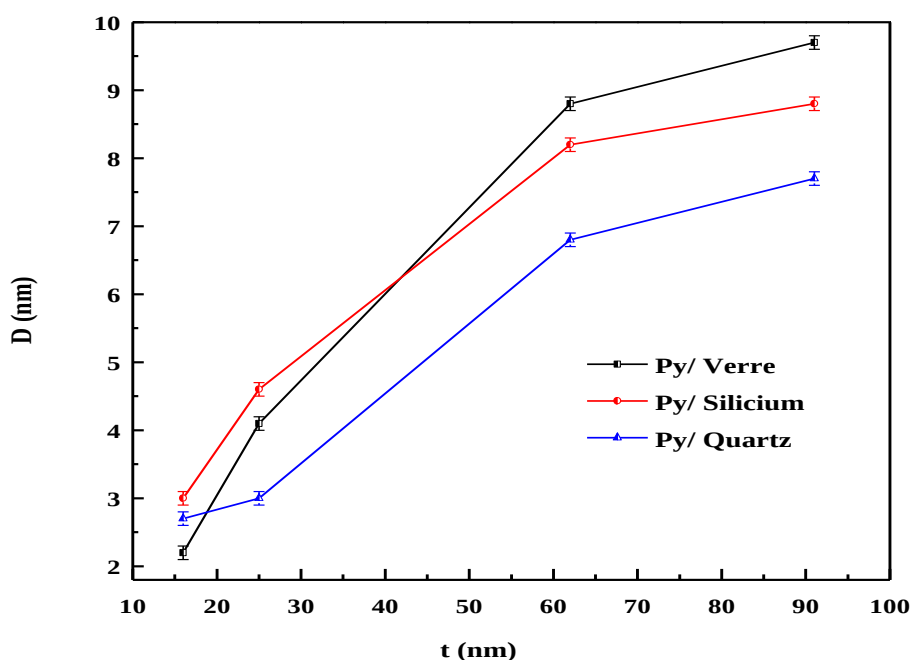


Figure. III. 5. Evolution de la taille des grains des couches minces de permalloy en fonction de l'épaisseur pour différents substrats.

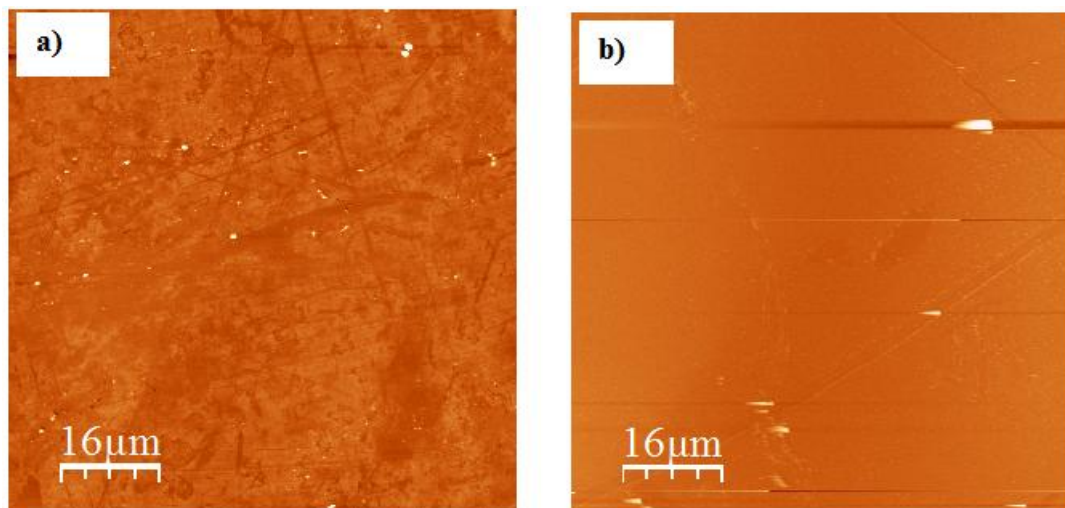
III. 2. 3. Propriétés microstructurales

L'observation des surfaces des couches minces de Py élaborées par évaporation sous vide, pour différents substrats a été faite au moyen de la microscopie à force atomique (AFM) et de la microscopie électronique à balayage (MEB).

III. 2. 3. 1. Microscopie à force atomique

Les observations des surface des couches minces de Py/verre, Py/Si et Py/ quartz ainsi que les mesures de la rugosité ont été effectuées par AFM. La figure III. 6, montre les résultats obtenus pour un dépôt de 60 nm d'épaisseur. Nous avons observé une surface plane et homogène pour les couches minces de Py déposées sur le verre et le silicium. Pour l'échantillon de permalloy déposé sur du quartz, une surface très rugueuse et peu uniforme est observée. Afin de mieux voir la rugosité de ces échantillons, nous avons effectué la mesure du facteur de rugosité RMS (root mean square) à l'aide du logiciel WSxM software [12]. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure III. 7. Les valeurs du RMS sont égale à 11.5 nm, 14.7 nm et 0.27 μm pour les substrats de verre, de silicium et de quartz respectivement. Nous avons remarqué que la valeur du RMS pour le cas du Py/ quartz est relativement grande. Nous pensons que cette rugosité est due à la rugosité de la surface du substrat lui-même.

A titre de comparaison, on peut citer les travaux de Neagu et al. [13], qui ont obtenu une rugosité inférieure à 25 nm pour les films de permalloy préparés par déposition par laser pulsé en utilisant un substrat de verre. Cao et al. [2] ont obtenu une valeur du RMS de 1.12 nm pour des films de NiFe déposés sur du quartz et Chen et al. [14] ont observé un RMS inférieur à 0.6 nm pour des couches minces de permalloy en utilisant un substrat de silicium et la méthode d'élaboration arc cathodique filtré sous vide.



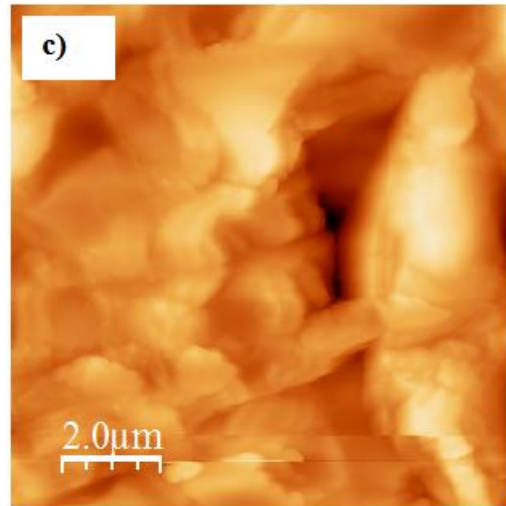


Figure III. 6. Observations par AFM des surfaces des films de Py de 60 nm d'épaisseur: a) Substrat de verre, b) substrat de silicium et c) substrat de quartz.

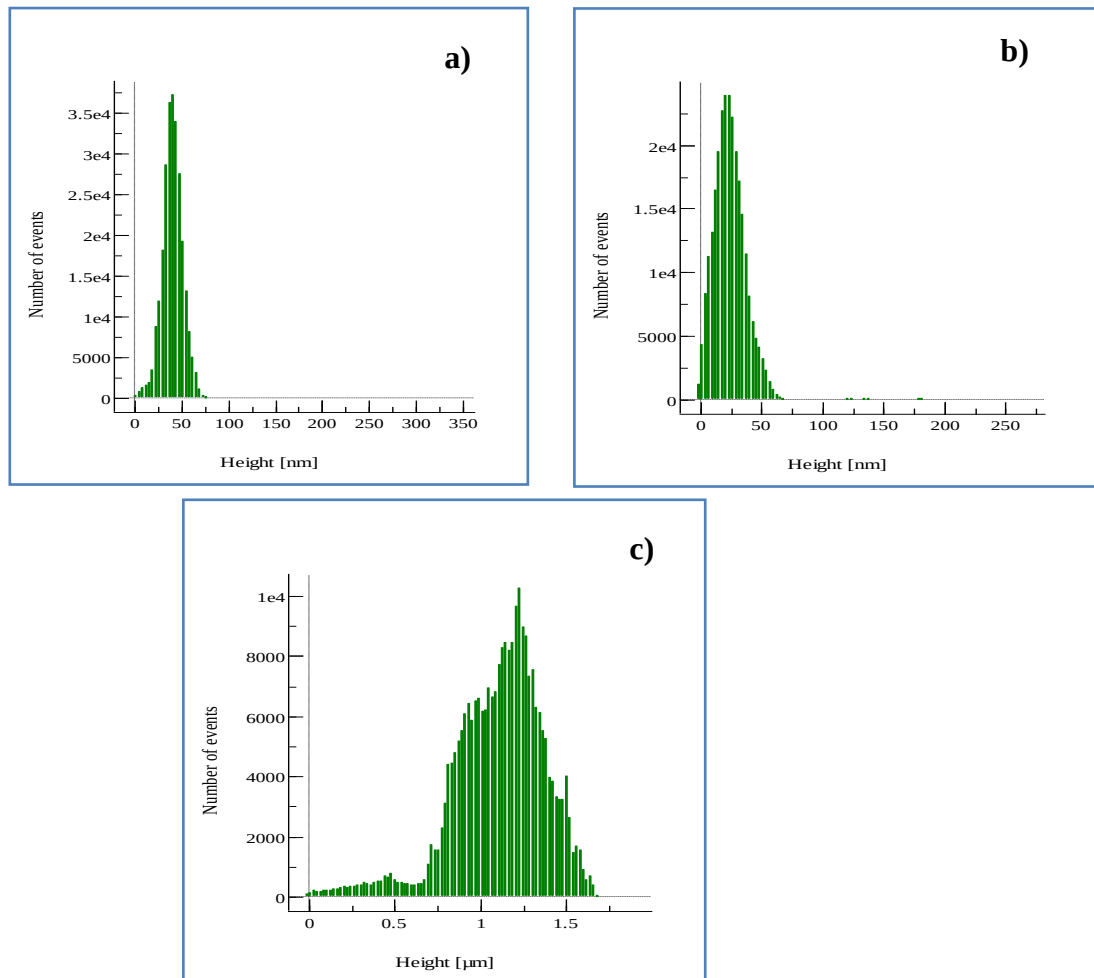


Figure. III. 7. Histogrammes obtenus pour le facteur RMS des films minces de Py sur différents substrats : a) substrats de verre, b) substrat de silicium et c) substrat de quartz.

III. 2. 3. 2. Microscopie électronique à balayage

Les observations des surfaces des couches de permalloy évaporées sur différents substrats ont été faites par microscopie électronique à balayage (chapitre II. Section 2. 5).

La figure III. 8. Montre les micrographies obtenues pour la plus grande épaisseur des films (90 nm). A partir de ces observations, nous avons remarqué une surface homogène et très lisse pour l'échantillon de permalloy déposé sur du verre. Concernant le Py déposé sur du silicium, une surface homogène et observée. Nous avons également constaté une très forte porosité pour cet échantillon. Pour le cas des dépôts sur substrats de quartz, une toute autre morphologie est observée. En effet la surface est très rugueuse, avec une croissance sous forme de feuilles irrégulières et de tailles différentes, ce qui confirme les résultats obtenus par AFM. Nous pensons que cette morphologie est due à la rugosité initiale des substrats de quartz avant le dépôt. Même lorsque l'épaisseur du film augmente (passe de 60 nm à 90 nm, la même rugosité est observée.

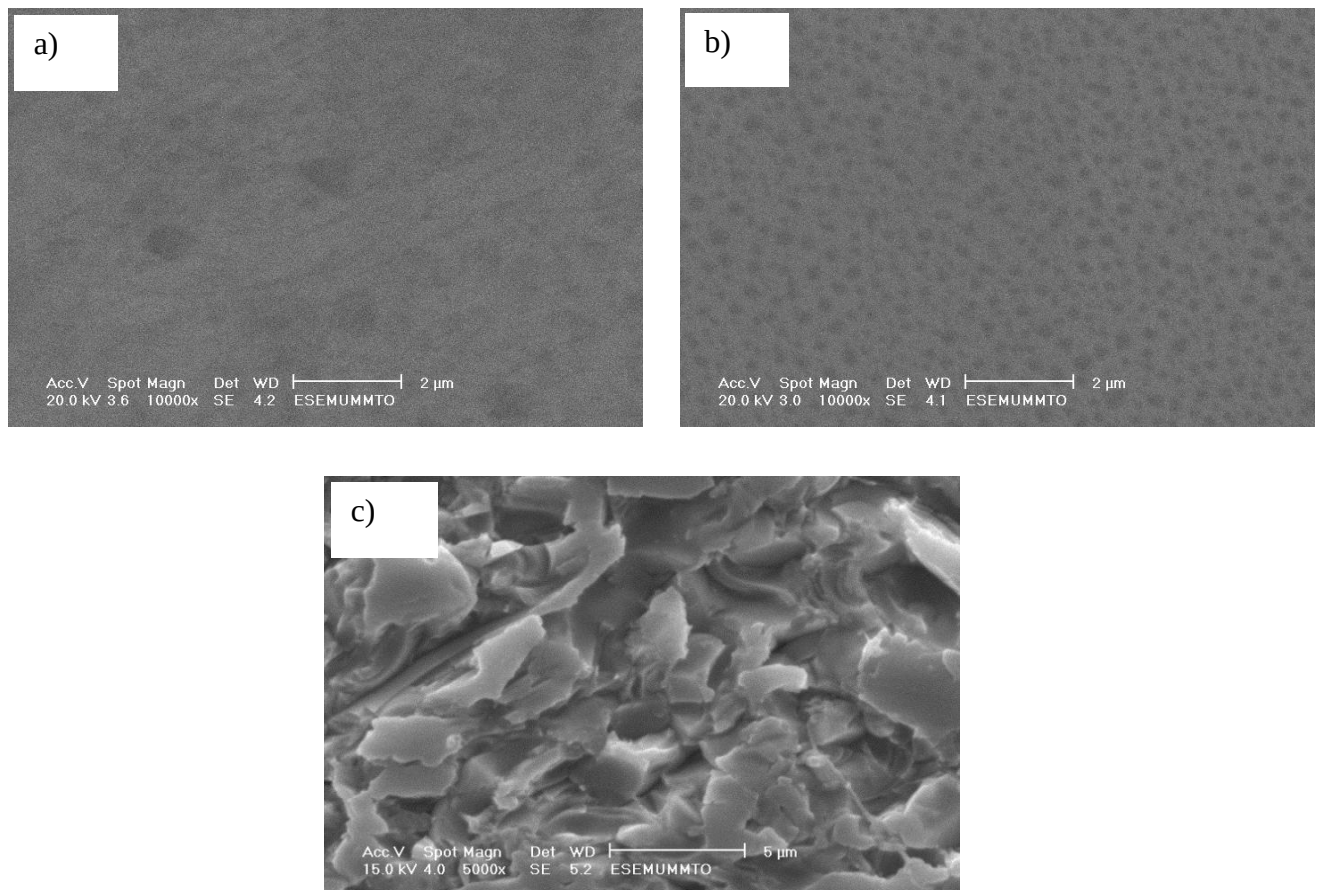


Figure. III. 8. Micrographies des surfaces des films de permalloy de 90 nm d'épaisseur pour différents substrats : a) substrat de verre, b) substrat de silicium, c) substrat de quartz.

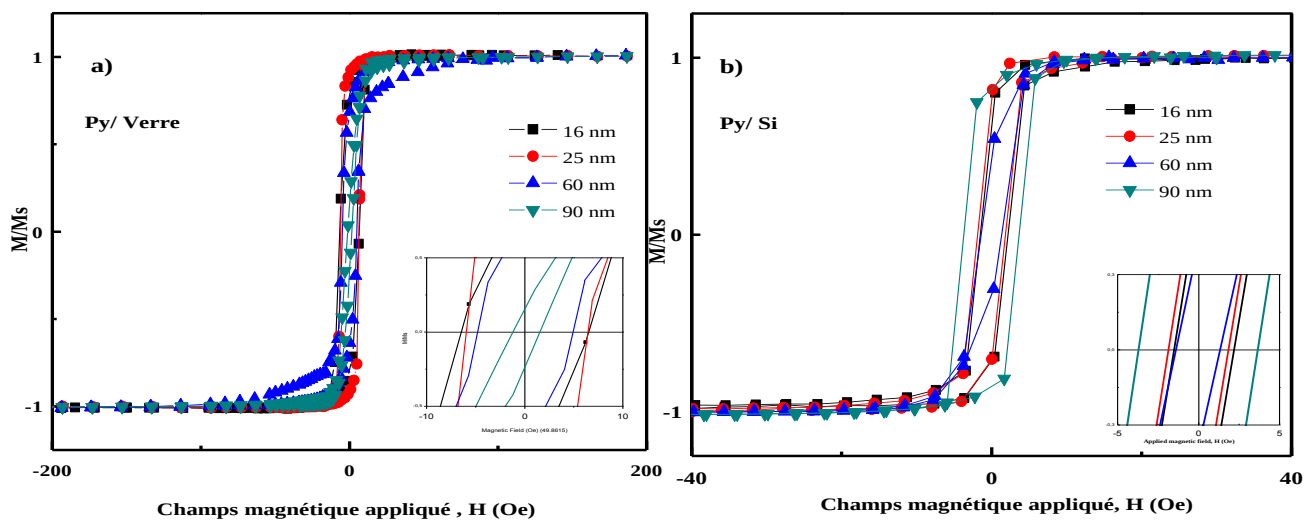
III. 2. 4. Propriétés magnétiques

III. 2. 4.1. Magnétométrie à échantillon vibrant

Les cycles hystérésis des couches minces de permalloy ayant différentes épaisseurs en utilisant le verre, le silicium et le quartz comme substrats, ont été obtenues en utilisant un VSM. Les courbes d'hystérésis obtenues, en appliquant un champ magnétique parallèle à la surface des échantillons sont représentées sur la figure III. 9. A partir de ces cycles nous avons extrait certains paramètres magnétiques tels que le champ coercitif, H_c , le squarness, $S = M_r/M_s$, et le champ à saturation, H_s . Les valeurs obtenues sont récapitulées dans le tableau III. 1. Les valeurs de H_c obtenues varient sur une large gamme allant de 0.9 Oe à 80 Oe pour le Py/ verre, Py/ Si et Py/ quartz pour différentes épaisseurs. On remarque que les plus grandes valeurs de H_c , qui varient entre 29 Oe et 80 Oe sont obtenues pour la série de Py/ quartz. Alors que les valeurs de H_c sont inférieures à 7 Oe pour les deux autres séries. Ce comportement de H_c est probablement dû au stress résiduel élevé existant dans les échantillons de Py évaporés sur du quartz et à la non uniformité des films [15].

Certaines études qui ont été menées sur l'effet de la rugosité sur les propriétés magnétiques, montrent qu'en général, la coercivité augmente et l'anisotropie diminue lorsque la rugosité augmente [16-18]. Il est également à noter que les valeurs obtenues lors de ce travail ne sont pas loin de celles trouvées par Seet et al. [19]. Les auteurs ont obtenu des valeurs de H_c entre 50 Oe et 70 Oe pour des films minces de Py élaborés par sputtering.

D'un autre côté, les basses valeurs de la coercivité (inférieures à 7Oe) obtenues dans le cas du verre et du silicium comme substrat est caractéristique des propriétés magnétiquement douces du permalloy et est en accord avec des travaux antérieurs [15, 20, 18].



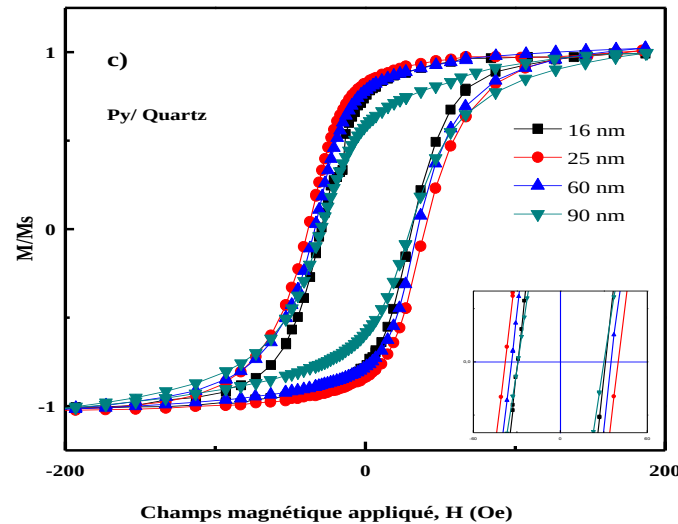


Figure III. 9. Cycles d'hystérésis des couches minces de permalloy pour différentes épaisseurs : a) substrat de verre, b) substrat de silicium et c) substrat de quartz.

A partir des valeurs du champ à saturation H_s , nous avons remarqué que pour la série Py/Si, la saturation est atteinte pour un champ appliqué inférieur à 40 Oe, alors que les valeurs de H_s sont plus élevées pour les séries Py/verre et Py/ quartz. En effet les échantillons de Py/verre saturent à H_s inférieur à 100 Oe, et Py/quartz saturent à des champs de 186Oe pour la plus grande épaisseur (90nm).

A titre de comparaison, on peut citer les travaux de Luo et al. [15] qui ont obtenu des valeurs de H_s inférieur à 25 Oe pour des films de Py/Si de 30 nm d'épaisseur. Choi et al. [21] ont obtenu des valeurs de H_s de 2.5 Oe pour du Py/ verre de 30 nm d'épaisseur déposé sur du verre. Cao et al. [2] ont quant à eux obtenu des valeurs de H_s inférieures à 50 Oe pour du Py/quartz. Nous avons remarqué que les valeurs de H_s obtenues lors de cette thèse pour différents types de substrat sont relativement grandes en comparaison aux travaux antérieurs effectués.

Les valeurs du squareness ($S=Mr/Ms$) pour les séries de Py/Si et Py/ quartz varient de façon aléatoires. Alors que dans le cas de la série de Py/verre la valeur de S diminue de 0.78 à 0.15 lorsque l'épaisseur augmente de 16 nm à 90 nm. Ce même comportement du squareness a été observé par certains auteurs. Par exemple, dans le cas du NiFe/ITO, Cao et al. [22] ont expliqué la diminution de S lorsque l'épaisseur augmente, par la présence d'une structure

colonnaire. D'autres explications relatent l'effet de la diminution de la taille des grains, qui font diminuer la constante d'anisotropie et renforce le couplage d'échange magnétique [23].

A partir de ses résultats, et des comparaisons faites, nous avons conclu que le champ nécessaire pour saturer les films de Py dépend très fortement du type de substrat utilisé. Les valeurs de squareness sont également très affectées par le type de substrat utilisé. Ceci laisse à supposer que le substrat utilisé influe sur la microstructure magnétique sur laquelle nous reviendrons plus en détail dans la suite de ce travail.

t (nm)	Py/ verre				Py/Si				Py /quartz			
	<D> (nm)	Hc (Oe)	S	Hs (Oe)	<D> (nm)	Hc (Oe)	S	Hs (Oe)	<D> (nm)	Hc (Oe)	S	Hs (Oe)
16	2.2	6.5	0.78	28	3	1.93	0.6	35	27	30	0.74	150
25	4.1	6	0.9	40	4.6	1.92	0.76	41	30	80	0.83	180
60	8.8	5	0.67	87	8.2	1.7	0.43	30	68	34	0.77	185
90	9.7	1.75	0.16	96	8.8	0.9	0.82	18	77	29	0.57	186

Tableau III. 1. Valeurs des paramètres magnétiques obtenus à partir des cycles d'hystérésis pour différents substrats et différentes épaisseurs.

La figure III. 10, représente l'évolution du champ coercitif en fonction de la taille des grains pour les trois séries d'échantillons. Nous avons remarqué que l'évolution du champ coercitif pour les séries de Py/ verre et Py /Si sont identiques. En effet les valeurs de Hc diminuent en fonction de la taille des grains. La valeur de D (nm), passe de 6.48 Oe à 1.75 Oe quand la taille des grains augmente de 2 nm pour t=16nm à 9.5 nm pour t= 90 nm pour la série de Py/verre. Les valeurs de D (nm) passent de 1.93 Oe à 0.9 Oe quand la taille des grains passe de 3 nm (t=16nm) à 8.8 nm (t=90 nm) pour la série de Py/Si. Dans le cas du Py/quartz,

l'évolution de H_c est moins monotone. En effet la valeur de H_c passe de 30 à 80 Oe, puis diminue pour atteindre la valeur de 29 Oe pour la plus grande taille des cristallites.

La diminution de H_c lorsque la taille des grains augmente indique que les joints de grains agissent comme des liens (épingles) et ont une part importante dans l'évolution de la coercitivité. En effet il est connu que les grains de petite taille induisent un grand nombre de joints de grains. Ces derniers agissent comme des barrières qui bloquent le mouvement des domaines magnétiques, ce qui conduit une augmentation de H_c .

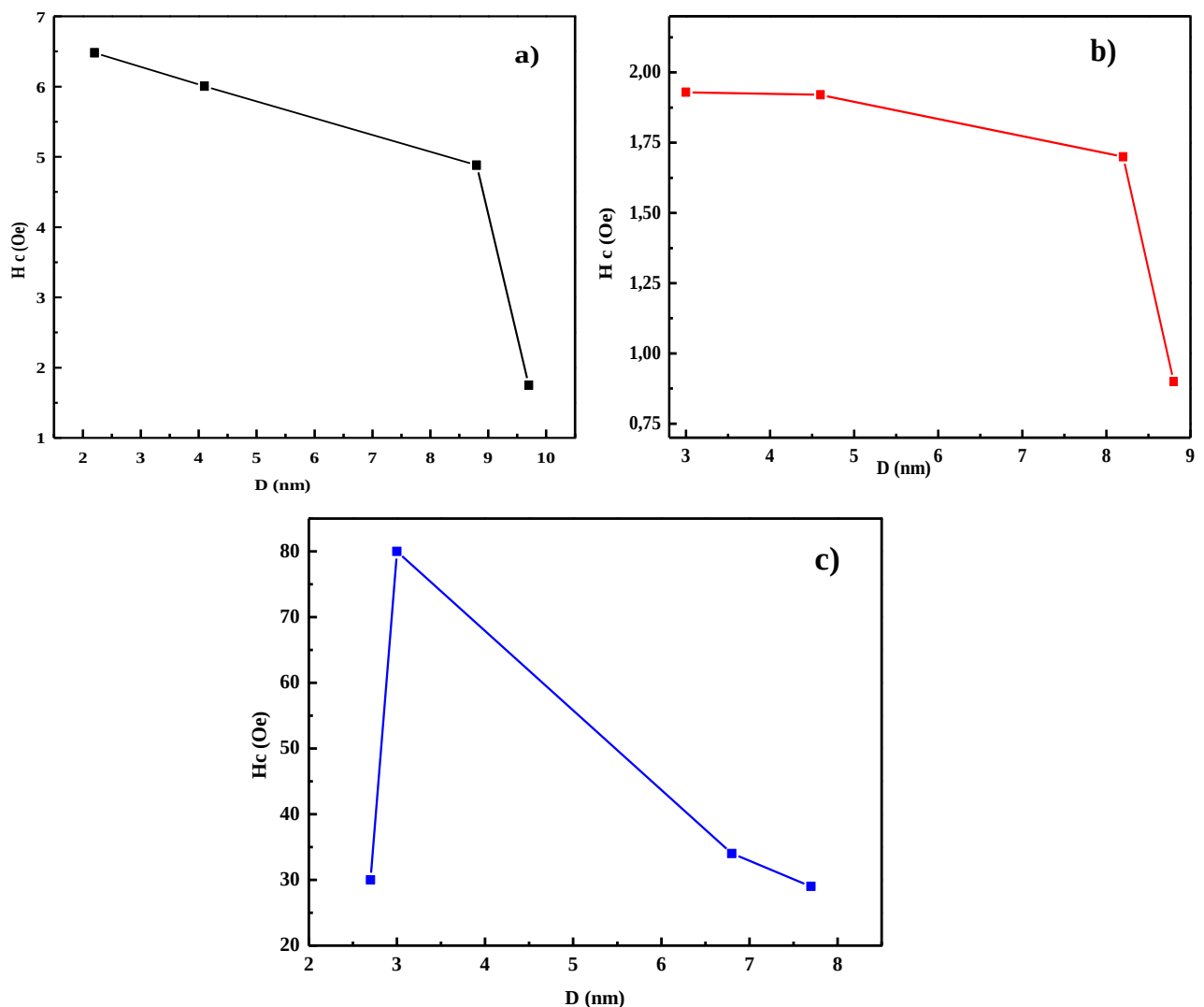


Figure III. 10. Evolution du champ coercitif en fonction de la taille des grains des couches minces de Py sur différents substrats : a) substrat de verre, b) substrat de silicium et c) substrat de quartz.

III. 2. 4.2. Microscopie à force magnétique

La microscopie à force magnétique est une méthode très utilisée pour l'observation des domaines magnétiques et des surfaces des films minces. Les mesures par MFM ont été effectuées sur les trois séries de Py/verre, Py/ Si et Py/ quartz.

Concernant la série de Py/ quartz, aucun phénomène magnétique n'a pu être observé en raison de la grande rugosité des surfaces. En effet les images obtenues par MFM sont identiques à celle présentée dans la section (III. 2. 3. 1) obtenues par AFM.

Pour la série de Py/ Si, les mesures par MFM obtenue n'ont également révélé aucune information supplémentaire. Nous pensons que pour cette série, les domaines magnétiques sont très larges ce qui est généralement le cas des couches mince de Py.

Pour la série de Py/ verre nous avons eu la chance de pouvoir observer une microstructure magnétique pour les épaisseurs de 60 nm et 90 nm. Les résultats obtenus sont représentés sur la figure III. 11. Nous avons observé que les films de Py/verre sont constitués de domaines magnétiques ayant des largeurs supérieurs à 16 μm . Ces domaines sont séparés par des parois principales apparentes sous forme de lignes. Ces parois ont été identifiées comme étant les parois de Néel. Perpendiculairement aux parois principales, nous avons observé des petites lignes séparées de façon régulière. Ces barres ont été identifiées comme étant des parois de type cross-ties (cross-tie walls en anglais voir chapitre I). A l'intersection des parois principales et des cross ties, l'aimantation est directement perpendiculaire au plan du film. Ce qui veut dire que localement, la direction des moments aux points d'intersection est une paroi de type Bloch [24].

Dans notre cas, les parois ont été observées uniquement pour les épaisseurs intermédiaires (60 nm et 90 nm) en accord avec la littérature qui rapporte l'observation des cross ties pour des films de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ayant des épaisseurs entre 10 nm et 100 nm [25]. Il est intéressant de citer les travaux de Wiese et al. [24] qui ont observé les cross tie-walls pour des films de NiFe ayant des épaisseurs entre 30 et 70 nm. Szmaja et al. [26] ont observé la coexistence des parois de Néel et cross tie pour des films de Py de 10 et 60 nm déposés sur du verre et du NaCl par évaporation.

La littérature rapporte également la complexité de ce type de parois. En effet les explications théoriques de ce type de parois sont toujours en cours d'investigation et font l'objet de nombreuses recherches.

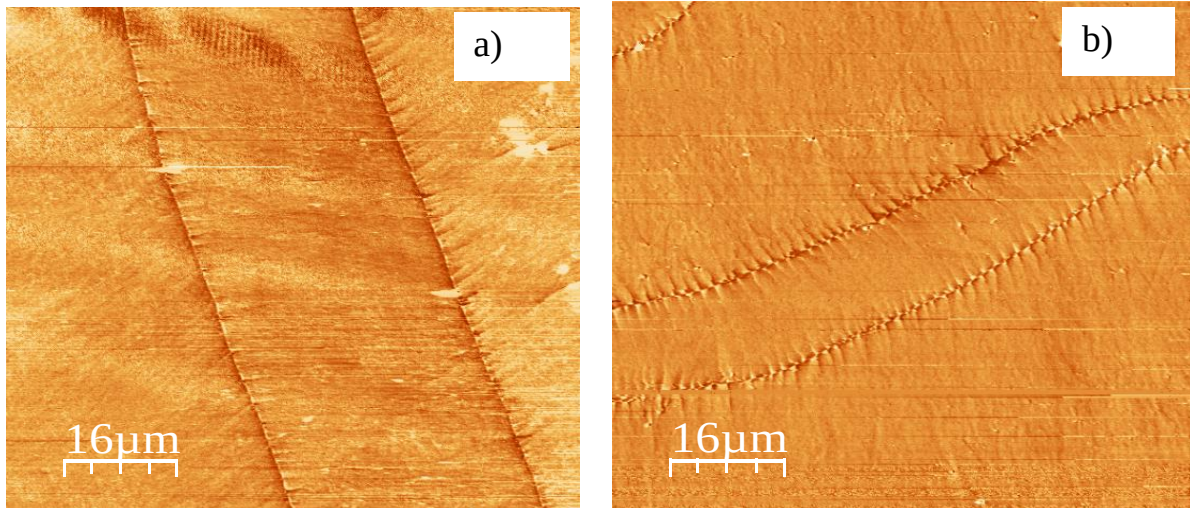


Figure III. 11. Images AFM des couches minces de permalloy évaporées sur un substrat de verre pour différentes épaisseurs : a) 60 nm d'épaisseur, b) 90 nm d'épaisseur.

III. 2. 4. 3. Microscopie optique à effet Kerr

L'observation de la microstructure magnétique a été effectuée par microscopie à effet Kerr. Le mode longitudinale a été utilisé pour l'observation des domaines magnétiques pour les trois séries : Py/ verre, Py/Si et Py/ quartz. Ceci dit, concernant la série d'échantillons de Py/ quartz en raison de la grande rugosité des échantillons, aucune image n'a pu être formée. Nous avons donc présenté les résultats obtenus pour la série de Py/ verre et Py/ Si pour différentes épaisseurs.

La figure III. 12, et la figure III. 13, représentent les domaines magnétiques de la série des couches minces de Py/ verre et de Py/ Si ayant différentes épaisseurs. Pour la petite épaisseur (16 nm) nous avons observé des domaines de formes et de taille aléatoires peu visibles. Ce comportement est probablement dû à l'influence du substrat amorphe sur la couche mince de Py dans le cas du Py/ verre. La formation de ces domaines existe également dans le cas du Py/ Si à cause de l'effet du substrat qui est important à cause de la faible épaisseur des films. Lorsque l'épaisseur augmente (25 nm), nous avons observé que des domaines de taille comprise entre 100 μm et 200 μm se forment pour le cas du Py/ verre. La forme des domaines reste assez irrégulière sans doute influencée par le substrat. Pour le substrat de silicium, nous avons remarqué que l'interface entre deux domaines n'est pas nette. Pour les plus grandes épaisseurs (60 nm et 90 nm) nous avons remarqué des domaines très larges. En effet nous avons observé deux larges domaines ayant des aimantations opposées

pour les deux types de substrats. Nous avons également pu constater de les domaines sont séparés de façon nette.

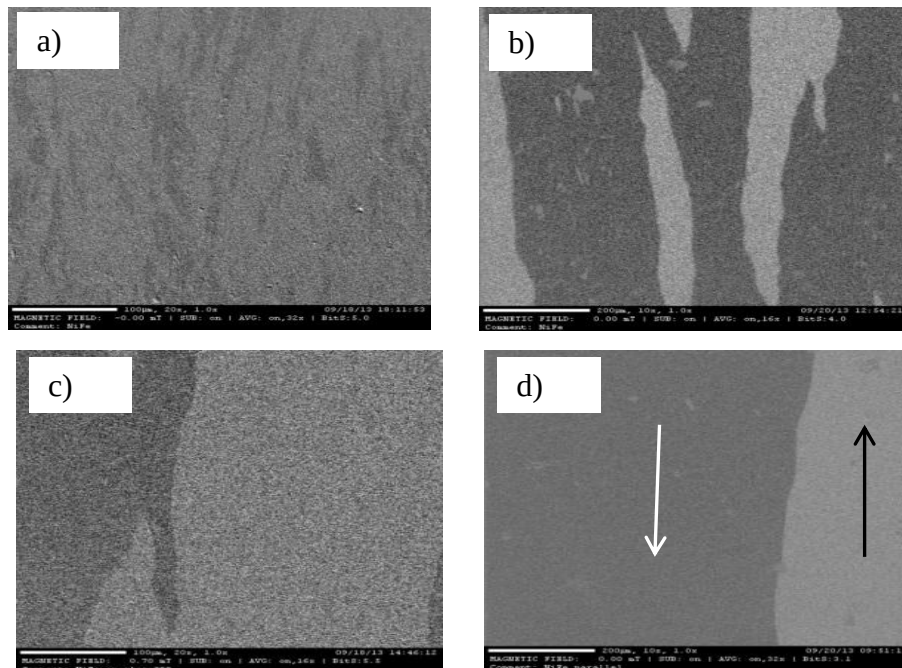


Figure III. 12. Image par MOKE des domaines magnétiques des couches minces de Py déposé sur du verre ayant différentes épaisseurs : a) 16 nm, b) 25 nm, c) 60 nm et d) 90 nm.

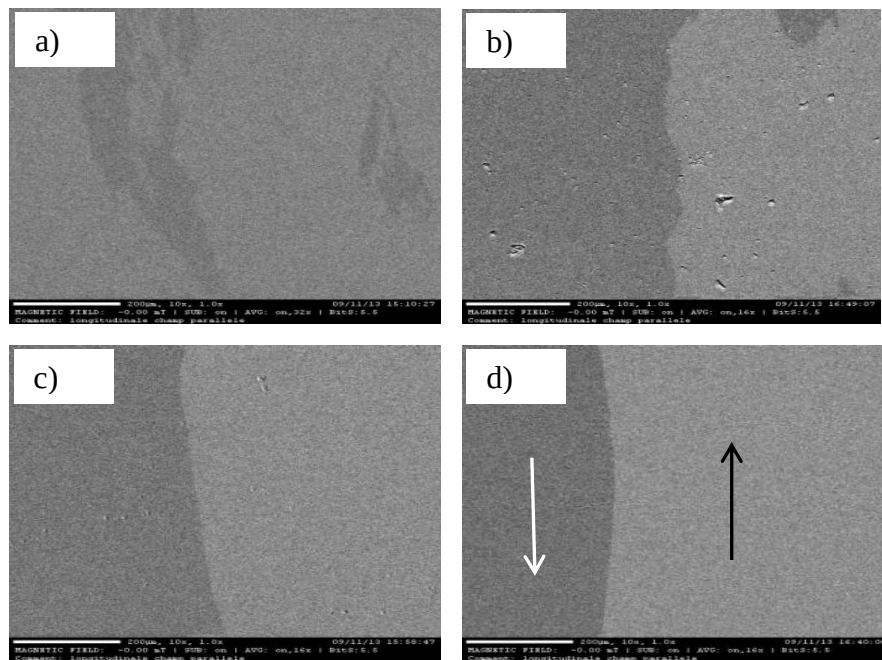


Figure III. 13. Image par MOKE des couches minces de Py déposé sur du silicium ayant différentes épaisseurs : a) 16 nm, b) 25 nm, c) 60 nm et d) 90 nm.

L'observation des domaines magnétiques, nous a également permis de repérer la direction de facile aimantation. En effet les domaines magnétiques sont généralement alignés dans la même direction que cet axe. En gardant la même position de l'échantillon du Py/ verre de 90 nm, nous avons appliqué un champ magnétique extérieur variant entre -2 mT et 2 mT. Nous avons alors observé que les domaines magnétiques disparaissent pour laisser place à un mono-domaine magnétique lorsqu'on atteint la saturation. La courbe hystérésis magnéto optique (MOKE magnetometry) pour l'échantillon de Py/ verre avec le changement des domaines est représenté sur la figure III. 14. La valeur du champ coercitif obtenu pour cet échantillon est de 0.9 mT (9 Oe).

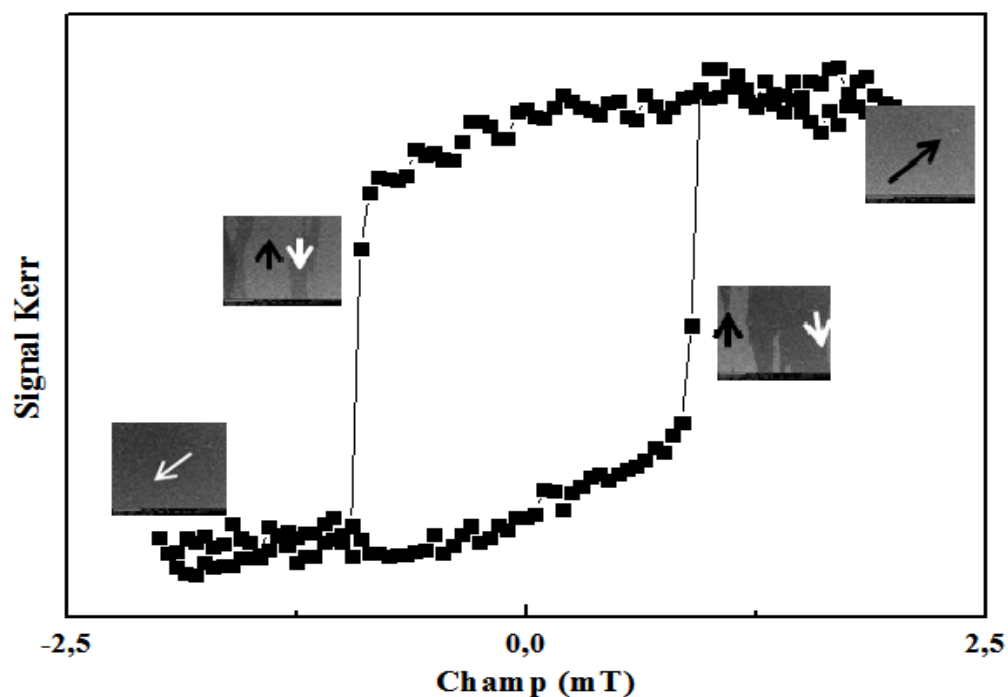


Figure. III. 14. Courbes hystérésis magnéto optique du film Py/ verre de 90 nm d'épaisseur.

Il est bien connu qu'une bonne cristallinité est un paramètre important pour l'observation des domaines et de leurs comportements. Nous avons donc décidé de garder le même échantillon de Py/ verre de 90 nm, et d'observer l'effet de la direction du champ magnétique extérieur sur les domaines magnétiques. En gardant l'échantillon dans la même position (la direction de facile aimantation) nous avons appliqué un champ magnétique extérieur dans les directions de 0°, 30°, 60° et 90°. La figure III.15. Représente l'évolution des domaines magnétiques en fonction de la direction du champ appliqué. Pour la direction du

champ parallèle à l'axe de facile aimantation (0°) les deux larges domaines observés précédemment sont visibles.

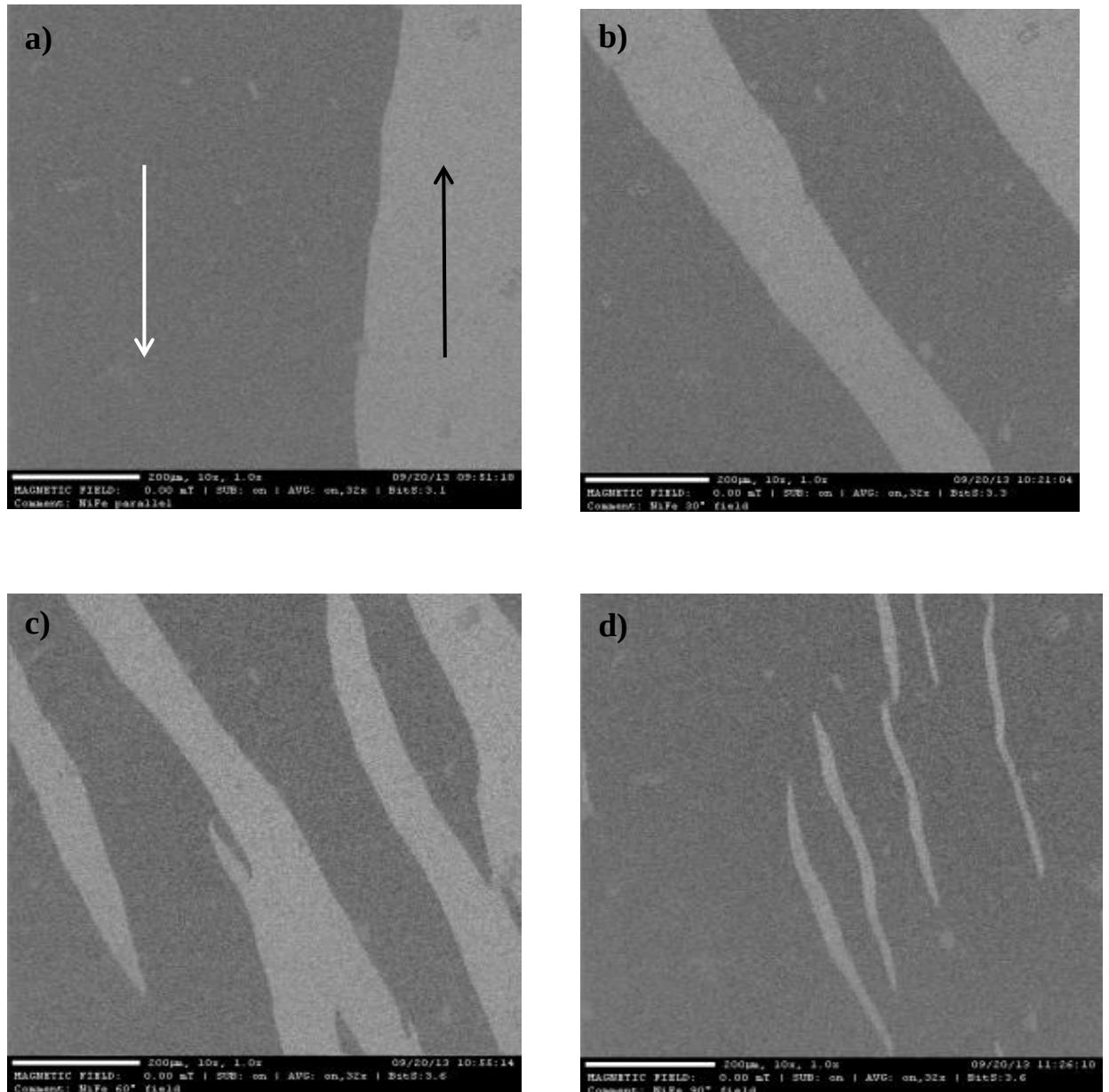


Figure III. 15. Structure des domaines des couches minces de Py à différentes directions du champ appliqué: (a) 0° , (b) 30° , (c) 60° , (d) 90° .

Lorsque la direction du champ change, la direction et la taille des domaines change également. En effet pour les directions de 30° et 60° , des domaines métastables avec des largeurs de $200\ \mu\text{m}$ et $100\ \mu\text{m}$ sont observés. Lorsque le champ est appliqué

perpendiculairement à l'axe de facile aimantation (90°), les domaines deviennent très étroits. Ce comportement des domaines magnétiques indique que la longueur latérale de corrélation diminue avec le changement de la direction du champ [27].

Il est également intéressant de noter que dans le cas des couches minces de cobalt, les domaines disparaissent totalement lorsque le champ est perpendiculaire à l'axe de facile aimantation.

Conclusion

L'élaboration des couches minces de permalloy a été réalisée par évaporation sous vide par effet joule pour trois types de substrats. Les dépôts effectués pour différents temps ont donné lieu à des films de plusieurs épaisseurs allant de 16 nm à 90 nm. Nous avons étudié l'effet de l'épaisseur et du type de substrat sur les propriétés structurales (DRX), microstructurales (MEB et AFM) et magnétiques (VSM, MFM et MOKE) des couches minces de Py.

A partir des spectres DRX, 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. Le paramètre de maille diminue lorsque l'épaisseur augmente alors que la taille des grains augmente avec l'augmentation de l'épaisseur pour les trois types de substrats.

L'étude microstructurale, nous a permis d'observer les surfaces des couches minces de Py et de mesurer leurs rugosités. Les surfaces des films changent en fonction du substrat utilisé. La plus grande rugosité a été obtenue pour les couches minces de Py déposées sur de quartz.

L'investigation des propriétés magnétiques révèle que le champ coercitif dépend très fortement du type de substrat utilisé. Le champ coercitif diminue avec l'augmentation de la taille des grains, et suggère que les joints de grains jouent un rôle important dans l'évolution de la coercivité. Les observations par MFM montrent l'existence de parois de type cross tie uniquement pour les dépôts obtenus sur le substrat de verre et ayant des épaisseurs de 60 nm et 90 nm. La microscopie à effet Kerr révèle des domaines magnétiques dont la taille et la forme changent en fonction de l'épaisseur et du substrat. Elle montre également que la microstructure des domaines change avec la direction du champ appliqué.

Bibliographie

- [1] A. Guittoum, A. Bourzami, A. Layadi and G. Schmerber, Eur. Phys. J. Appl. Phys. 58 (2012) 20301
- [2] Y. Cao, Q. Wang, G. Li, J. Du, C. Wu, J. He, J. Magn. Magn. Mater. 332 (2013) 38-43
- [3] S. Wang, T. Gao, C. Wang, J. He, J. Alloys. Compd. 554 (2013) 405-407
- [4] S. F. Cheng, P. Lubitz, Y. Zheng, A. S. Edelstein, J. Magn. Magn. Mater. 282 (2004) 109-114
- [5] M. P. Hollingworth, M. R. J. Gibbs, E. W. Hill, J. Appl. Phys. 98 (2003) 354
- [6] High Score software for crystallography, Philips analytical (2002)
- [7] T. Yeh, J. M. Sivertsen, J. H. Judy, IEEE. Trans. Magn. 23 (1987) 2215
- [8] S. Kotapati, A. Javed , N. Reeves-McLaren , M. R. J. Gibbs , N. A. Morley, J. Magn. Magn. Mater. 331 (2013) 67-71
- [9] Y. T. Chen, C. W. Wu, Intermetallics. 34 (2013) 89-93
- [10] M. A. Akhter, D. J. Mapps, Y. Q. Ma Tan, Amanda Petford-Long and R. Doole, J. Appl. Phys. 81 (1997) 4122-24
- [11] W. Lopez, S. Muhl, S. E. Rodil, Vacuum 83 (2009) 819-823
- [12] I. Horcas, R. Fernández, J. M. Gómez-Rodríguez, J. Colchero, J. Gómez-Herrero and A. M. Baro, Rev. Sci. Instrum. 78 (2007) 013705
- [13] M. Neagu, M. Lozavan, M. Dobromir, L. Velicu, C. Hison, S. tratulat, J. Optoelectron. Adv. 10 (2008) 1894-1897
- [14] J. S. Chen, S. P. Lau, Y. B. Zhang, Z. Sun, B. K. Tay, C. Q. Sun, Thin Solid Films. 443 (2003) 115-119
- [15] C. Luo, Y. Fu, D. Zhang, S. Yuan, Y. Zhai, S. Dong, H. Zhai, J. Magn. Magn. Mater. 374 (2015) 711-715
- [16] S. Ingvarsson, G. Xiao, S. S. P. Parkin, W. J. Gallagher, J. Magn. Magn. Mater. 251 (2002) 202-206
- [17] H. Jiang, N. Yang, C. Wang, Surf. Sci. 373 (1997) 181
- [18] J. B. Yi, X. P. Li, J. Ding, H. L. Seet, J. Alloys. Compd. 428 (2007) 230-236
- [19] H. L. Seet , X. P. Li, J. B. Yi, W.Y. Ooi, K. S. Lee, J. Alloys. Compd. 449 (2008) 284-287
- [20] L. M. Malkinski, R. Eskandari, A. L. Fogel, and S. Min, J. Appl. Phys. 111 (2012) 07A320

- [21] J. G. Choi, D. G. Hwang, J. R. Rhee, S. S. Lee, J. Magn. Mater. 322 (2010) 2191-2194
- [22] D. Cao, Z. Wang, E. Feng, J. Wei, J. Wang, Q. Liu, J. Alloys Compd. 581 (2013) 66-70
- [23] Y. T. Chen, J. Y Tseng, T. S. Sheu, Y. C. Lin, S. H. Lin, Thin Solid Films 544 (2013) 602-605
- [24] N. Wiese, S. McVitie, J. N. Chapman, A. Capella-Kort, F. Otto, EPL, 80, Number 5, (2007) 57003
- [25] J. McCord and R. Schäfer, New J. Phys. 11(2009) 083016
- [26] W. Szmaja, J. Balcerski, W. Kozłowski, M. Cichomski, J. Grobelny, M. Smolny, P. J. Kowalczyk, J. Alloys Compd. 521(2012) 174-177
- [27] J. A. Arregi, O. Idigoras, P. Vavassori, A. Berger, Appl. Phys. Lett. 100 (2012) 262403.

Chapitre IV

**Etude des propriétés structurales, microstructurales
et magnétiques des couches minces de permalloy
élaborées par électrodéposition**

Le chapitre suivant est consacré à l'étude des couches minces de permalloy élaborées par électrodéposition. Il rapporte les conditions utilisées lors des dépôts des couches minces sur des substrats de silicium poli miroir. Il regroupe également les résultats et les discussions relatives à l'influence du potentiel de dépôt sur les propriétés structurales, microstructurales et magnétiques des films de NiFe. Les résultats obtenus lors de cette étude, nous serviront pour les dépôts de Py sur des nanofils de silicium.

IV. 1. Conditions d'élaboration

IV. 1. 1. Bain d'électrodéposition

Des solutions contenant des ions de nickel et de fer ont été préparées pour les dépôts de l'alliage NiFe sur des substrats de silicium. Ces solutions ont été préparées fraîchement avant chaque dépôt pour éviter la formation des ions Fe^{3+} . Les électrolytes ont été obtenus en utilisant de l'eau désionisée et différents sels dont les concentrations sont récapitulées dans le tableau IV. 1.

Nature des produits	Degré de pureté (%)	Masse molaire (g/mole)	Concentrations (mol/L)
$\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$	>99	262.8	0.5
$\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$	>99	278.01	0.02
H_3BO_3	>99	61.84	0.4
Saccharin	>98	241.21	0.012
H_2SO_4	>97	98.06	1

Tableau. IV. 1. Produits chimiques utilisés pour la préparation de l'électrolyte.

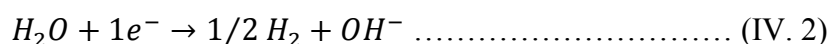
Les sels utilisés ont été pesés en utilisant une microbalance en respectant les concentrations typiques du permalloy [1]. Le pH a été ajusté à 3 en utilisant de H_2SO_4 . Le H_3BO_3 est un additif qui va empêcher la formation d'hydroxyde. Il a également été montré qu'en présence d'acide Borique les films de NiFe contiennent un faible pourcentage de fer [2]. La présence

de saccharin (comme additif) favorise la formation de film compact et lisse avec une apparence brillante ainsi qu'une bonne adhésion à la surface [3].

IV. 1. 2. Etude électrochimique

Etude voltampérométrique en absence de Fer et de Nickel

Avant de procéder au dépôt de NiFe, nous nous sommes intéressés à l'étude par voltamétrie cyclique du substrat de silicium seul. La figure IV.1 représente un voltammogramme du silicium n-Si(100) dans la solution sans ions de fer et de nickel. Effectivement la figure IV. 1, montre un voltammogramme typique de n-Si (100) dans une solution contenant 0.4 M de H_3BO_3 , 0.012 M de Saccharine et 1 M de H_2SO_4 . Vu l'absence d'ions de Nickel et de Fer, on observe l'existence de deux courants l'un anodique et l'autre cathodique. Le courant cathodique est attribué à la réduction de l'hydrogène et de l'eau selon les réactions suivantes :



Le courant anodique observé est attribué à l'oxydation de l'eau:



Ceci indique clairement la présence inévitable de ces réactions concurrentes lors de l'électrodéposition des métaux en solution aqueuse [4].

Pour déterminer le potentiel de réduction des ions H^+ à un pH de 3, nous avons utilisé l'équation de Nernst:

$$E_{H^+/H_2} = E_{0 H^+/H_2} - 0.06 pH \dots\dots\dots (IV.4)$$

Ce qui donne :

$$E_{H^+/H_2} = -0.39 V / (Ag/AgCl).$$

Le potentiel de réduction des ions de H^+ est confirmé expérimentalement sur la figure IV.1.

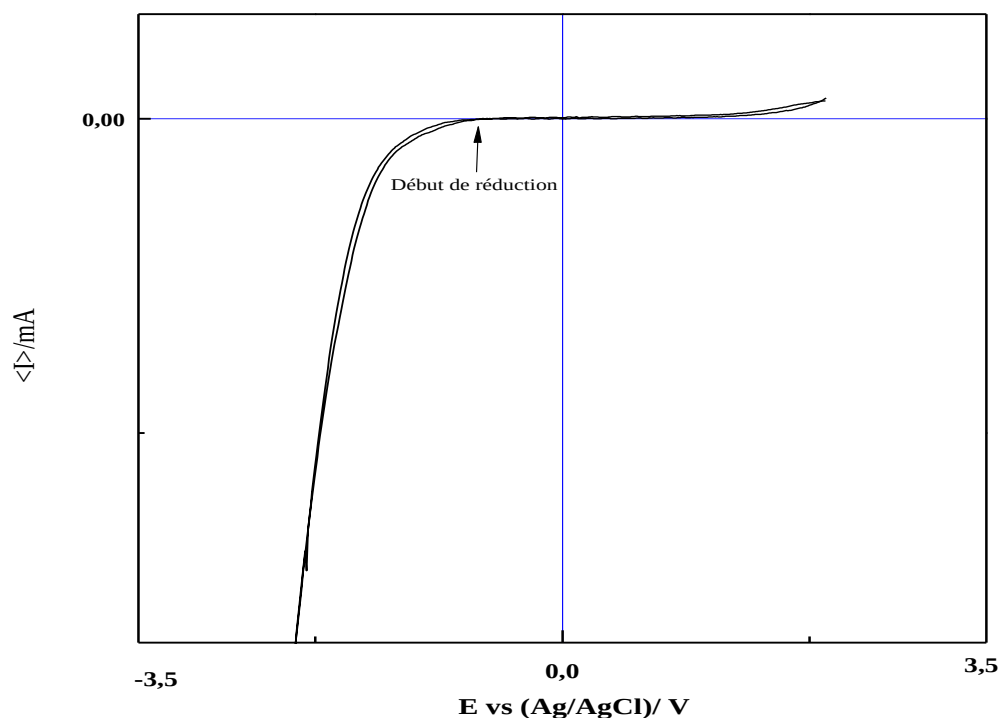


Figure IV. 1. Voltamogramme cyclique d'une électrode de n-Si (100) dans un électrolyte sans ions Ni^{2+} et Fe^{2+} .

Etude voltampérométrique en absence de Fer

Afin de déterminer les potentiels de dépôt du nickel, nous avons effectué un balayage des potentiels en utilisant la voltamétrie cyclique. Pour ce faire, nous avons utilisé un électrolyte qui ne contient pas les ions de fer: 0.5 M de $\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 0.4 M de H_3BO_3 , 0.012 M de Saccharin et 1 M de H_2SO_4 . La figure IV. 2 représente le voltamogramme obtenu pour cet électrolyte. En plus des grands pics anodique et cathodique observés précédemment, nous avons observé les pics de réduction et d'oxydation due à la présence des ions de nickel. Le pic de réduction correspondant au nickel (P1) se situe à une tension de -1V / (Ag/AgCl). Au-delà de cette tension, il y a une réduction massive du nickel et de l'hydrogène. La réduction des ions de nickel se traduit par l'apparition du pic de réduction P2 dans la région des potentiels plus positifs.

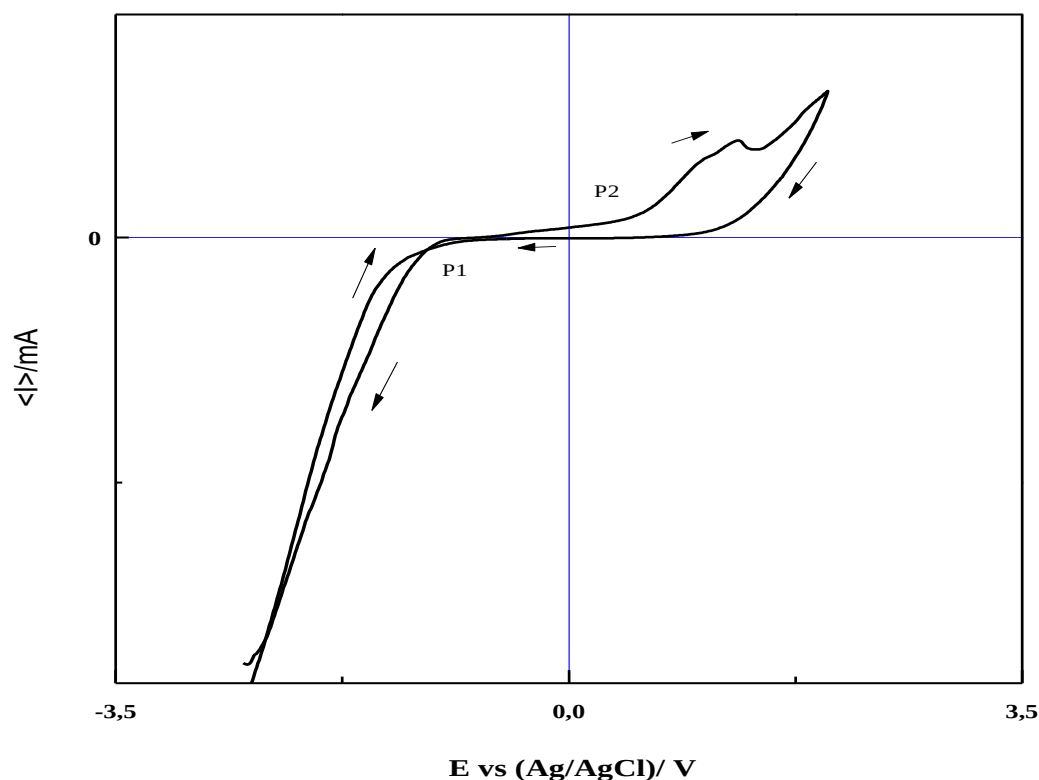


Figure IV. 2. Voltamogramme cyclique d'une électrode de n-Si (100) lors de l'électrodéposition du nickel.

Etude voltampérométrique en absence de Nickel

Pour déterminer la région des potentiels où s'effectue les dépôts de fer, nous avons tracé la voltamétrie cyclique sans les ions de nickel. L'électrolyte que nous avons utilisé contient 0.02 M de $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, 0.4 M de H_3BO_3 , 0.012 M de Saccharin et 1 M de H_2SO_4 . La figure IV. 3, représente le cycle de voltamétrie obtenu. Comme précédemment, nous avons constaté la présence des grands pics d'oxydation et de réduction. Nous avons également constaté l'apparition des pics correspondant aux réactions d'oxydoréduction du fer. La réduction des ions de fer commence à une tension de -1.02 V/ (Ag/AgCl) (P1 sur la figure), ce qui va induire la formation du dépôt. L'oxydation des ions de fer est observée dans la région anodique et est représenté par le pic P2 et correspond à la dissolution du dépôt.

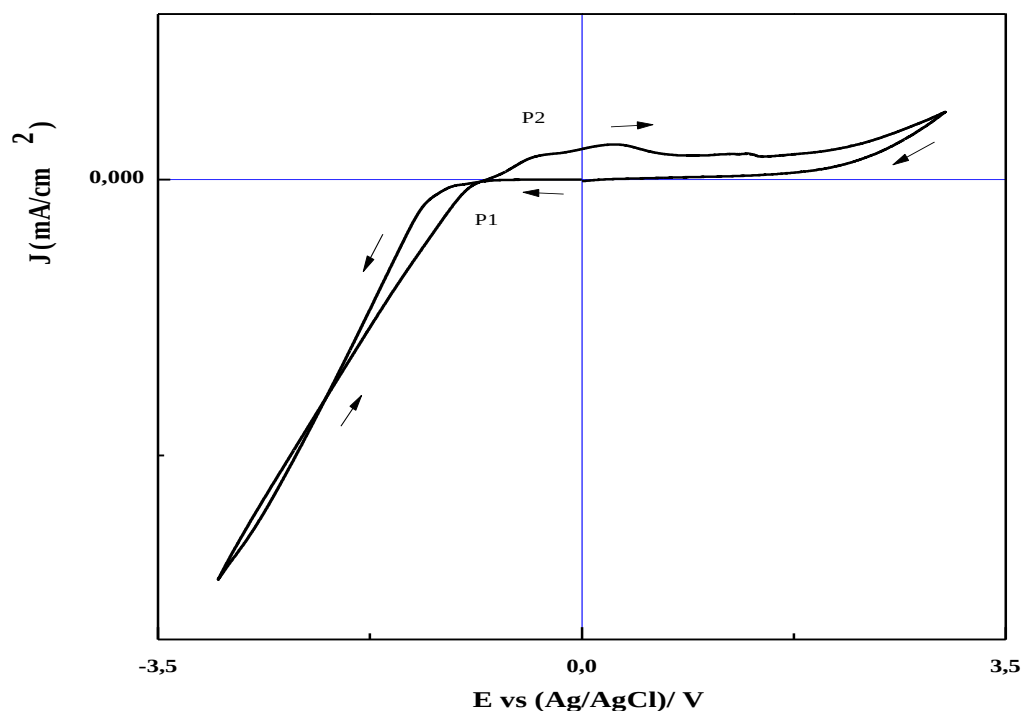


Figure IV. 3. Voltamogramme cyclique d'une électrode de n-Si (100) lors de l'électrodéposition du Fer.

Electrodéposition du Permalloy

Pour l'électrodéposition de l'alliage $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$, nous avons utilisé un bain contenant aussi bien les ions de fer que de nickel. En effet l'électrolyte utilisé contient 0.5 M de $\text{NiSO}_4 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, 0.02 M de $\text{FeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$, 0.4 M de H_3BO_3 , 0.012 M de Saccharin et 1 M de H_2SO_4 . Les ions présents dans l'électrolyte sont donc Ni^{2+} , Fe^{2+} , H^+ , SO_4^{2-} et HSO_4^- . Le mécanisme réactionnel qui conduit à la formation des dépôts est le suivant :



La figure IV. 4 représente le voltamogramme cycliques pour la déposition des films de Py. On peut remarquer un pic dans la région cathodique autour -1.2 V/ (Ag/AgCl). Ce pic P1, correspond à la première étape de déposition du Ni-Fe. Lors du balayage retour, on observe

un large pic anodique P2 aux alentours de 1.1 V/ (Ag/AgCl). Ce pic correspond à la réaction d'oxydation des ions de nickel et de fer. Ce phénomène va induire la dissolution du dépôt. Il est également à noter la présence des pics cathodique et anodique, qui correspondent à l'hydrogène.

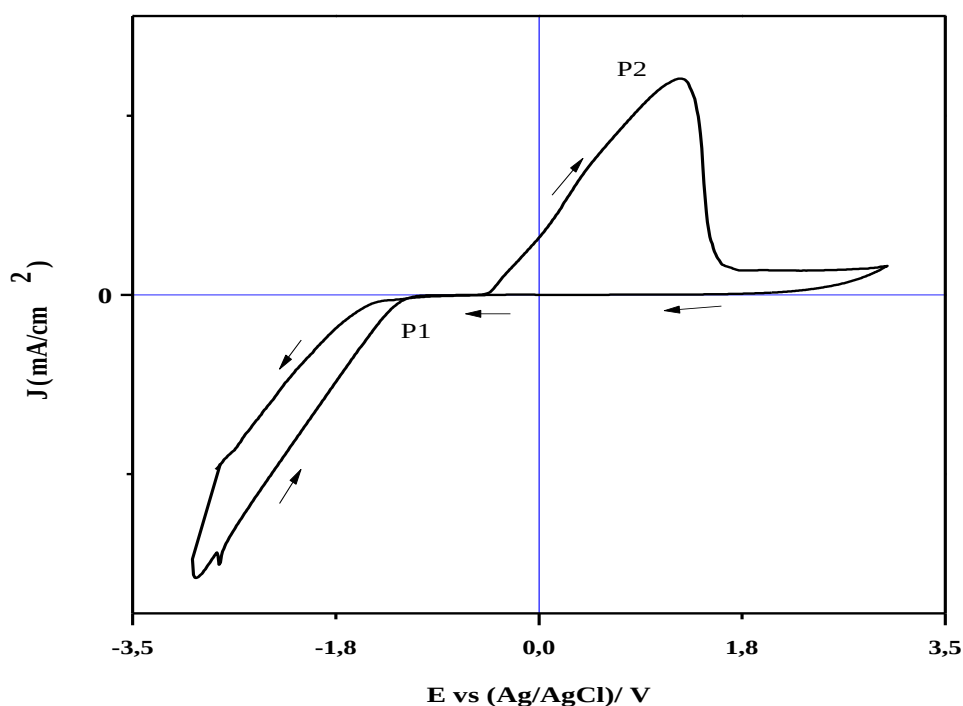


Figure IV. 4. Voltamogramme cyclique d'une électrode de n-Si (100) dans un électrolyte lors de l'électrodéposition de l'alliage Ni-Fe.

A partir de cette mesure par CV, nous avons choisi la gamme des tensions pour les dépôts de couches minces de Py par électrodéposition. Afin de vaincre l'énergie de barrière qui existe dans le cas de l'électrodéposition sur des semi-conducteur, une surtension de dépôts est nécessaire [5]. Nous avons donc utilisé le mode potentiostatique en appliquant des tensions de -1.6 V, -1.8 V, -2 V et -2.2 V par rapport à l'électrode de référence (Ag/AgCl). Le temps de dépôt a été fixé à 60 secondes pour toute la série de dépôts. Les couches minces obtenues se présentent sous forme circulaire, d'un diamètre de 1 cm fixé par la cellule (figure IV. 5). Les dépôts de Py obtenus sont ensuite rincés, puis séchés sous un jet d'azote. Le contact à l'arrière des échantillons (indium gallium) a été nettoyé en utilisant de l'acétone. Puis les échantillons ont été gardés sous vide primaire pour prévenir le risque d'oxydation. La suite de ce chapitre rapporte l'effet du potentiel de dépôt sur les propriétés structurales, microstructurales et magnétiques des couches minces de NiFe obtenues.

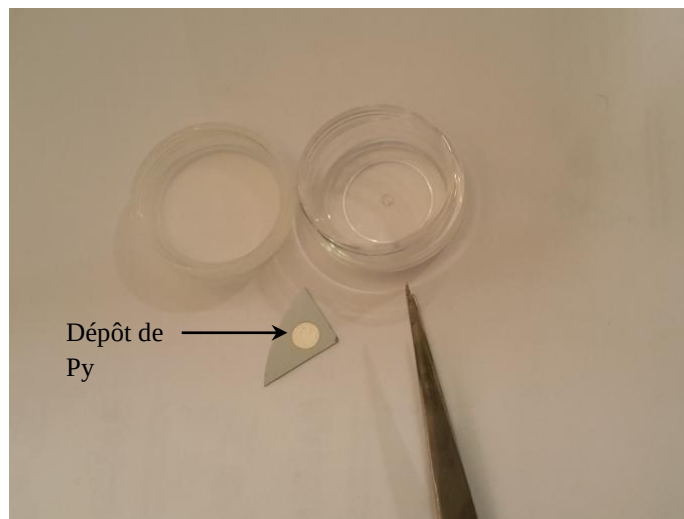


Figure IV. 5. Exemple de couche mince de Py déposée à -2V.

IV. 2. Caractérisation des couches minces NiFe élaborées par électrodéposition

IV. 2. 1. Propriétés structurales

L'analyse des propriétés structurales des couches minces de Py/Si obtenues par électrodéposition pour différentes tensions a été effectuée par DRX (voir chapitre II). Une gamme angulaire entre 40° et 90° a été balayée en utilisant un pas de 0.02° .

La figure IV.6 représente les spectres de la diffraction des rayons X des couches minces de permalloy déposées à différentes tensions. En plus du pic du silicium situé à $2\theta = 69.07^\circ$, nous avons remarqué la présence des pics caractéristiques de la phase γ du NiFe. Les deux pics de diffraction observés se situent aux angles $2\theta = 44.38^\circ$ et $2\theta = 52.04^\circ$ et ont été identifiés comme (111) et (200) de l'alliage FeNi respectivement. Nous avons remarqué que les intensités des pics augmentent avec l'augmentation de la tension appliquée. Ceci suggère que les épaisseurs des films augmentent lorsque la tension de dépôt passe de -1.6 V à -2V. Pour la tension de -2.2 V nous avons remarqué une légère diminution des intensités des pics. Le rapport des intensités des pics I_{200}/I_{111} pour les différentes tensions de dépôt, effectués pour tous les échantillons, révèle une texture selon la direction $\langle 111 \rangle$ pour toutes les tensions de dépôts.

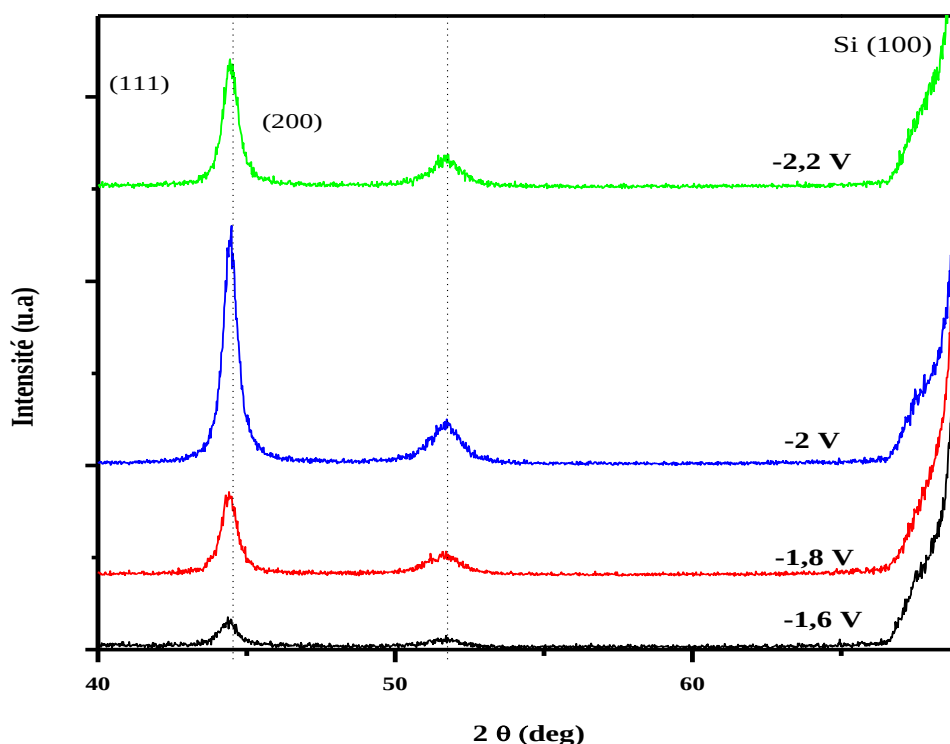


Figure IV. 6. Spectres de DRX des couches minces de permalloy par électrodéposition, en fonction des potentiels.

A partir des spectres de diffraction, nous avons calculé le paramètre de maille en utilisant la formule (III. 1. Chapitre III). Le calcul du paramètre de maille a été fait pour tous les échantillons en considérant le pic le plus intense (111) du permalloy.

L'évolution du paramètre de maille, a (Å), en fonction du potentiel de dépôt est représentée sur la figure IV. 7. Nous avons remarqué une diminution monotone du paramètre de maille lorsque le potentiel de dépôt augmente. En effet les valeurs de a (Å) passent de (3.5355 ± 0.0006) Å, pour un potentiel de -1.6 V à (3.5292 ± 0.0006) Å pour une tension de -2.2V. Il est à noter que toutes les valeurs du paramètre de maille obtenues pour les couches minces de Py sont inférieures à celle du massif ($a_{\text{massif}} = 3.5385$ Å) [6]. Cette différence entre les valeurs expérimentales du paramètre de maille et la valeur du massif est probablement due aux contraintes résiduelles [7].

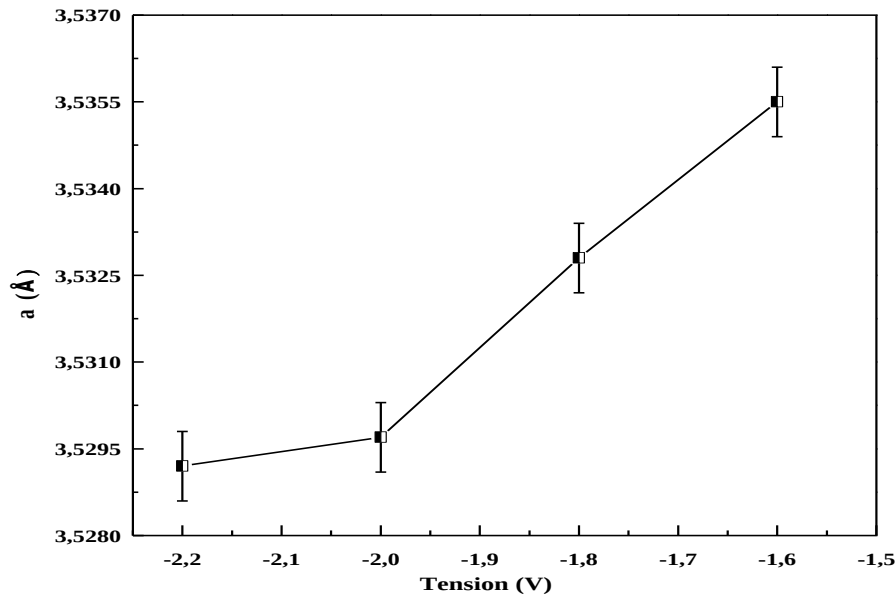


Figure. IV. 7. Evolution du paramètre de maille en fonction des potentiels de dépôt.

Les valeurs du paramètre de maille, ont été utilisées pour calculer la déformation, ε (%), en utilisant la formule (III. 2. Chapitre III) donnée dans le chapitre 3. Les résultats obtenus nous ont permis de tracer l'évolution de ε (%) en fonction du potentiel de dépôts (Figure IV.8). Nous avons remarqué que les valeurs de la déformation passent de $\varepsilon = -0.00008$ % à $\varepsilon = -0.0026$ % lorsque le potentiel passe de -1.6 V à -2.2 V respectivement. Les valeurs négatives de la déformation des films indiquent que les couches minces sont sous des contraintes compressives.

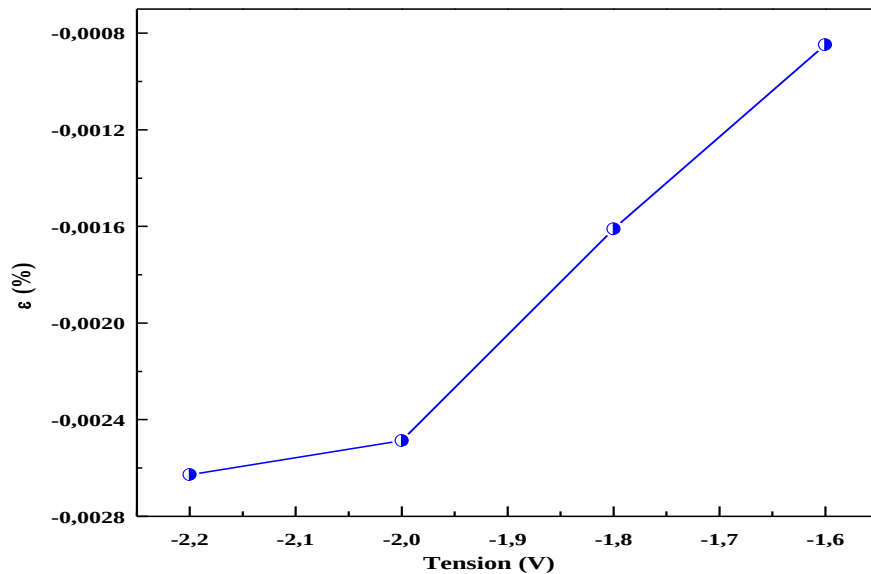


Figure. IV. 8. Evolution de la déformation des films de Py en fonction de la tension de dépôt.

A partir des spectres de DRX, nous avons calculé la taille des grains, D (nm), en utilisant la formule de Scherrer (III. 3) donnée dans le chapitre III.

La figure IV. 9, représente l'évolution de la taille des cristallites en fonction de la tension de dépôt. Nous avons remarqué que les valeurs de D (nm) passent de (12.8 ± 0.1) nm à (14.8 ± 0.1) nm lorsque le potentiel passe de -1.6 V à -2.2 V respectivement. La valeur maximale de la taille des grains $D = 16.2 \pm 0.1$ nm a été obtenue pour une tension de -2 V. Cette évolution de la taille des grains s'explique par l'agglomération des cristallites lors de l'augmentation de la tension, donc de l'épaisseur des couches minces. Les valeurs de D (nm), que nous avons obtenues lors de cette étude ne sont pas loin de celle obtenues par Sam et al. [8] de 16 nm pour des couches minces de permalloy.

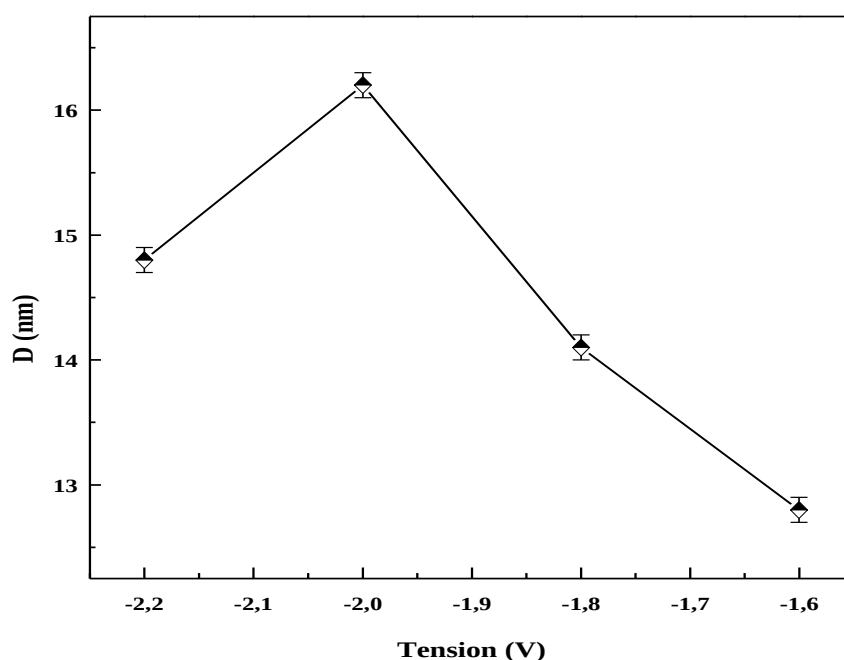


Figure. IV. 9. Evolution de la taille des grains des couches minces de permalloy en fonction du potentiel de dépôt.

IV. 2. 2. Propriétés microstructurales

L'observation des surfaces des couches minces de Py élaborées par électrodéposition, pour différentes tensions de dépôt, en utilisant le silicium poli comme substrat a été réalisé en utilisant la microscopie électronique à balayage et la microscopie à force atomique (voir chapitre II).

IV. 2. 2. 1. Microscopie électronique à balayage

La surface des échantillons des couches minces de NiFe déposés à -1.6 V et -1.8 V observées par MEB, sont représentés sur la figure IV.10.

Pour une tension de -1.6 V, nous avons observé une surface peu régulière et inhomogène des couches minces. Nous avons également distingué une grande porosité des films. Pour un plus grand grandissement, nous avons remarqué que les films sont formés de particules de forme sphériques ayant de tailles très inférieures à 1 μm . Ces particules s'agglomèrent pour former les couches minces continues de NiFe. Lorsque la tension de déposition passe à -1.8 V, la couche mince devient plus homogène. Lorsqu'on augmente en résolution, nous observons la subsistance des particules de forme sphériques. Nous avons également remarqué que ses particules ont une taille légèrement supérieure à celle obtenues pour -1.6 V.

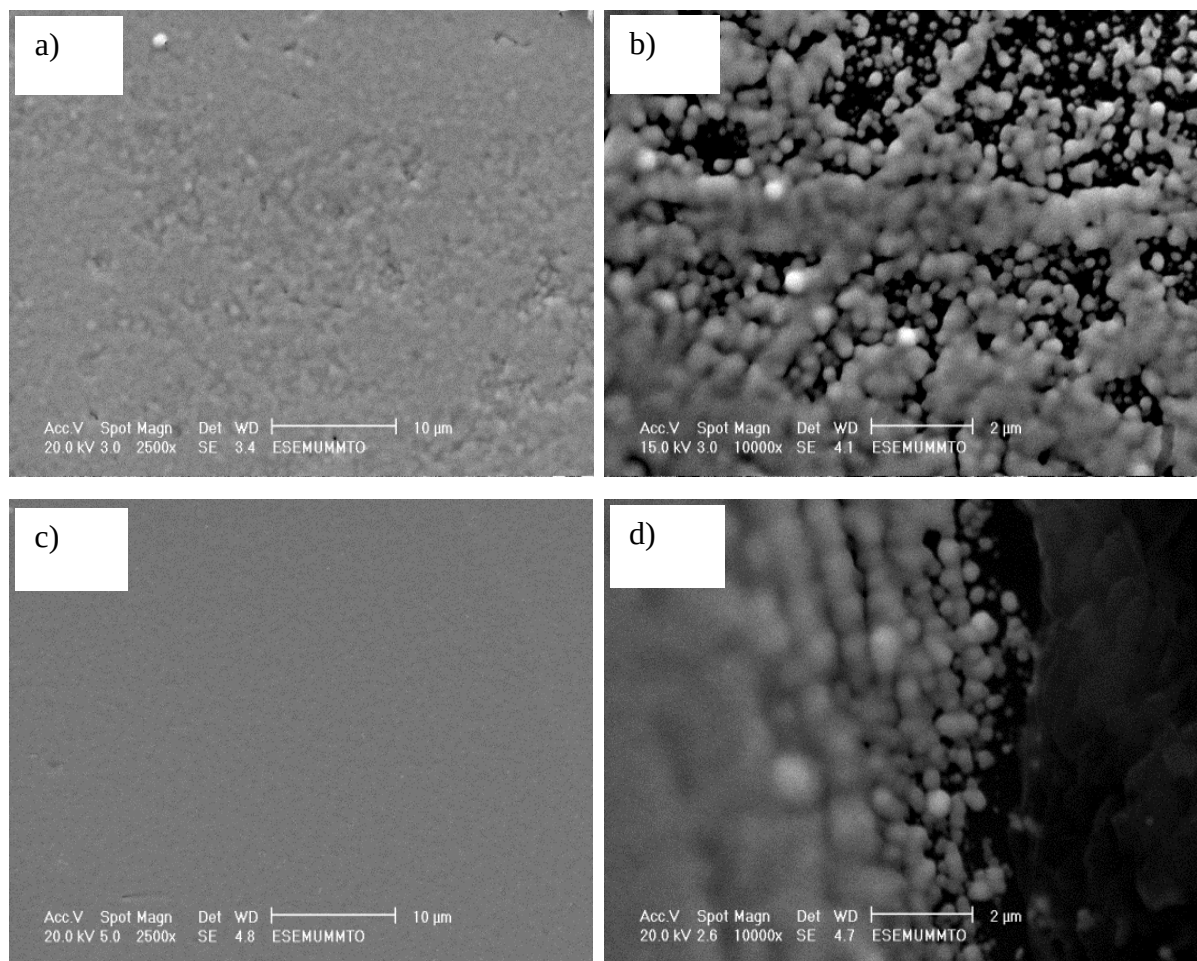


Figure. IV. 10. Micrographies des surfaces des films de permalloy pour les tensions de dépôt à différents grandissements : a) et b) potentiel de -1.6 V, c) et d) potentiel de -1.8 V.

Les observations MEB effectuées pour les tensions de dépôts (-2 V et -2.2 V) sont représentées sur la figure IV. 11. Pour une tension de déposition de -2V, nous avons observé une surface lisse et homogène. Lorsque la tension augmente (-2.2 V) nous avons remarqué l'apparition d'une légère porosité. La formation de ces trous est sans doute causée par les bulles d'hydrogène qui se forme de façon concurrentielle lors des dépôts. En effet pour cette tension, relativement grande, l'effet du dégagement d'hydrogène est plus important.

Il est important de noter que cette même morphologie, de particule sphérique a été observée par Sam et al. [8] pour des solutions diluées de Py. Contrairement à Cao et al. [5] qui ont observé que le NiFe croît sous forme colonnaire.

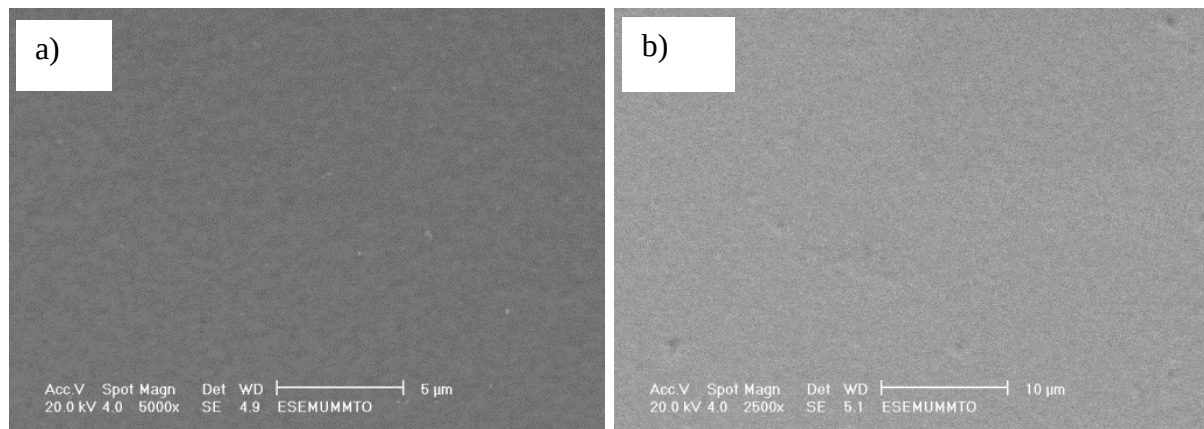


Figure. IV. 11. Micrographies des surfaces des films de permalloy pour différentes tensions de dépôt: a) -2 V et b) -2.2 V.

IV. 2. 2. 2. Microscopie à force atomique

Afin de mieux observer les surfaces et de mesurer la rugosité des films minces de Py pour différentes tensions de dépôts, nous avons utilisé l'AFM. La figure IV. 12, représente les résultats obtenus pour tensions de dépôts (-2V et -2.2 V). La figure montre des surfaces relativement homogènes pour les deux tensions de dépôt. Nous avons également observé de façon plus précise l'existence de petits « trous » sur la surface, formée par le dégagement de bulles d'hydrogène qui bloquent la surface du silicium. Le dégagement d'hydrogène durant les dépôts de NiFe est inévitable, et fait encore l'objet de nombreuses études [8, 11]. Les valeurs de RMS obtenus pour cette série sont de 11.34 nm, 3.22 nm 5.92 nm et 10.07 nm pour

les tensions de -1.6 V, -1.8 V, -2 V et -2.2 V respectivement et sont en accord avec les observations MEB.

Il est également intéressant de noter que Gao et al. [5] ont observé une structure identique pour les couches minces de permalloy déposées sur du silicium. Quemper et al. [10] ont obtenu des valeurs du RMS variant entre 5 et 10 nm, pour des films de Py. Spada et al. [1] ont obtenu un facteur RMS égal à 3 nm pour des films de NiFe de 2000 nm déposés sur du silicium (100).

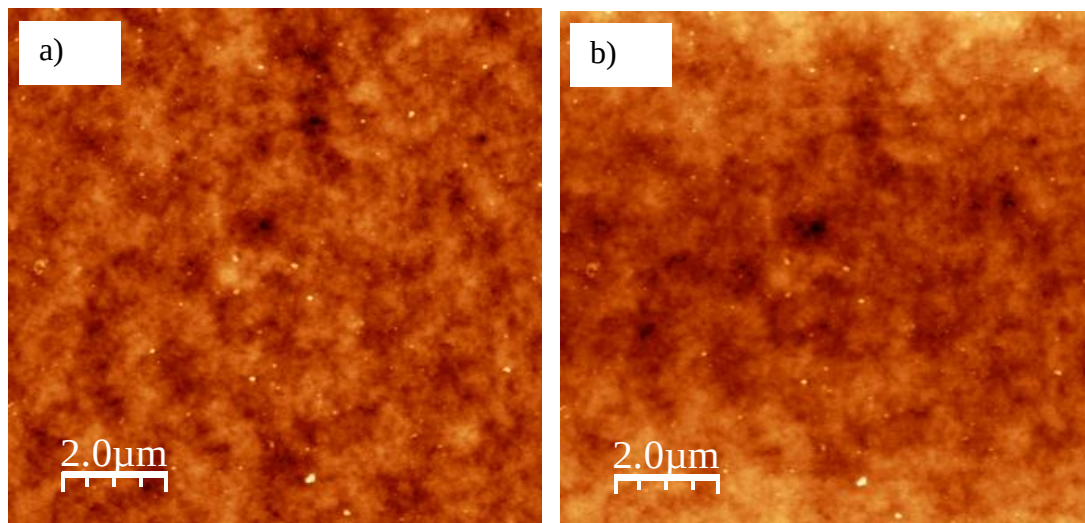


Figure IV. 12. Observation par AFM des surfaces des films de NiFe obtenues par électrodéposition: a) tension de -2 V, b) tension de -2.2 V.

IV. 2. 3. Propriétés magnétiques

IV. 2. 3. 1. Magnétométrie à échantillon vibrant

Les cycles d'hystérésis des couches minces de NiFe, déposés sur du silicium, obtenus pour différents potentiels de dépôts ont été obtenus en utilisant un VSM (voir chapitre II). Les courbes d'hystérésis obtenues, en appliquant un champ magnétique parallèle à la surface des échantillons sont représentées sur la figure IV. 13. A partir de ces cycles nous avons extrait certains paramètres magnétiques tels que le champ coercitif, H_c , le squarness, $S = M_r/M_s$, et le champ à saturation, H_s . Les valeurs obtenues sont récapitulées dans le tableau IV. 2.

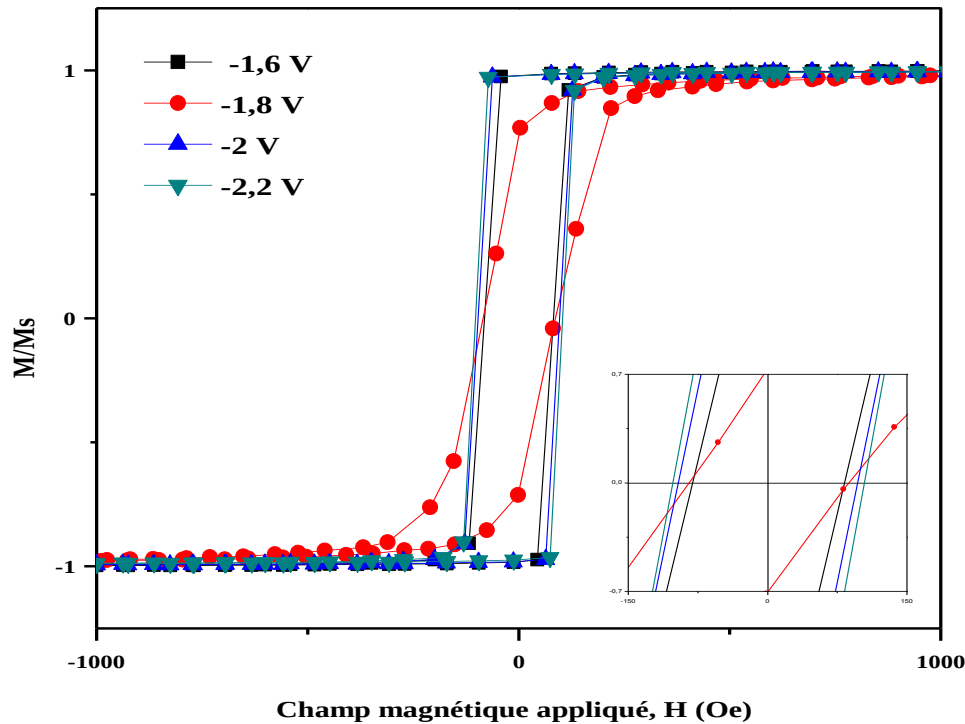


Figure IV. 13. Cycles d'hystérésis des couches minces de permalloy pour différents potentiels de dépôt.

Les valeurs du champ coercitif passent de 80.5 Oe à 102 Oe lorsque la tension passe de -1.6 V à -2.2 V respectivement. Une valeur maximale de H_c égale à 105 Oe a été obtenue pour l'échantillon déposé à -1.8 V. Ces valeurs relativement élevées de la coercitivité sont probablement dues à la discontinuité des films, à cause de la présence des bulles d'hydrogène [5]. À titre de comparaison, il est intéressant de citer les travaux de D. Cao et al. [12] qui ont obtenu des valeurs du champ coercitif inférieures à 50 Oe, pour des films de NiFe élaborés par électrodéposition en utilisant un substrat d'ITO. Gao et al. [5] ont observé que la coercitivité passe de 340 Oe à 6.8 Oe lorsque l'épaisseur des films de Py déposés sur du silicium passe de 12 nm à 150 nm. Spada et al. [1] ont obtenu des valeurs du champ coercitif de 3.5 Oe pour des films de FeNi déposés sur du Si (100) par électrodéposition. Kuru et al. [13] ont obtenu des valeurs de H_c égale à 4 Oe pour une tension de dépôt de -1.8 V pour du permalloy, en utilisant le Ti comme substrat.

Les champs à saturation sont proches pour les tensions de -1.6V, -2V et -2.2V. Alors que pour l'échantillon déposé à -1.8 V un champ à saturation élevé égale à 2430 Oe est observé.

Tension (V)	D (nm)	Hc (Oe)	S	Hs (Oe)
-1.6	12.8	80.5	0.978	1221
-1.8	14.1	105	0.733	2430
-2	16.2	95.5	0.975	1504
-2.2	14.8	102	0.976	1302

Tableau. IV. 2. Valeurs des paramètres magnétiques obtenus à partir des cycles d'hystérésis pour différents potentiels de dépôt.

IV. 2. 3. 2. Microscopie optique à effet Kerr

L'observation de la microstructure magnétique a été effectuée par microscopie à effet Kerr (chapitre II). Le mode longitudinal a été utilisé pour l'observation des domaines magnétiques pour les différentes tensions de dépôt. La figure IV. 14 représente les observations des domaines pour les échantillons déposés à différentes tensions. Nous avons observé l'existence de très larges domaines ayant des aimantations opposées indépendamment de la tension de dépôt. Les largeurs des domaines magnétiques dépassent les 200 μm . Pour la plus grande tension de dépôt (-2.2 V), nous avons confirmé la grande porosité de l'échantillon, bien que celle-ci ne montre aucune influence sur l'observation des domaines.

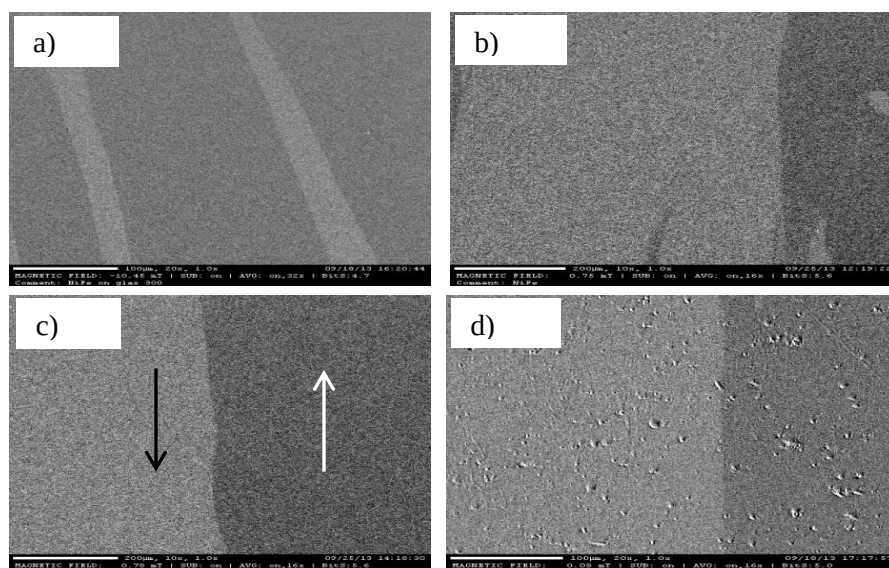


Figure IV. 14. Image par MOKE des couches minces de NiFe élaborées par électrodéposition sous différentes tensions: a) -1.6 V, b) -1.8 V, c) -2 V et d) -2.2 V.

Comme nous l'avons déjà vu dans le chapitre précédent, les domaines magnétiques sont alignés selon la direction de facile aimantation. En respectant cette direction, nous avons choisi l'échantillon de Py obtenu à une tension de -2 V, pour tracer un cycle d'hystérésis et observer le comportement des domaines. Nous avons appliqué un champ magnétique extérieur allant de -2 mT à 2 mT. Nous avons alors observé les multi domaines qui disparaissent au profit du mono domaine magnétique lorsque la saturation est atteinte (Figure IV.15). Il est intéressant de noter que la saturation est atteinte pour des valeurs du champ appliqué relativement faibles, en comparaisant aux travaux de Cao et al. [12] qui n'obtiennent la saturation (mono domaine) que pour des valeurs du champ supérieures à 10 mT, pour des films de NiFe de 370 nm d'épaisseurs élaborés par électrodéposition. La valeur du champ coercitif obtenu pour cet échantillon est de 0.75 mT.

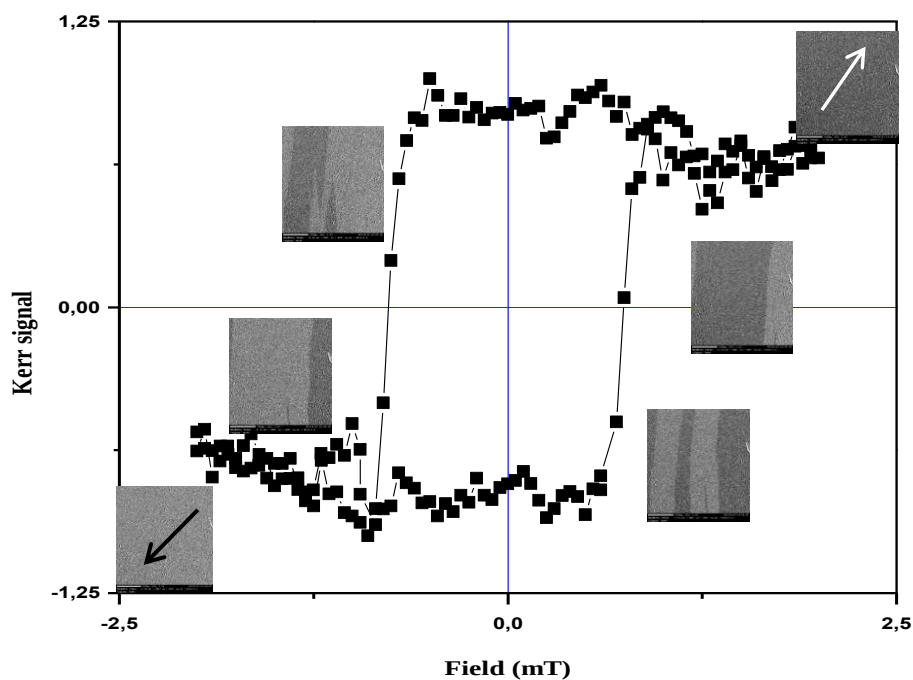


Figure. IV. 15. Courbes hystérésis magnéto optique du film de Py déposé à -2 V.

Conclusion

L'élaboration de films minces de permalloy a été effectuée en utilisant la méthode de l'électrodéposition. Le substrat utilisé est du silicium de type n, plusieurs potentiels ont été appliqués pour obtenir les dépôts de NiFe. Nous avons étudié l'effet de la tension sur les propriétés structurales (DRX), microstructurales (MEB et AFM) et magnétiques (VSM et MOKE) des couches minces de Py. A partir des spectres DRX, nous avons observé que les films présentent une texture selon la direction (111) pour tous les potentiels de dépôt. Nous avons remarqué une diminution monotone du paramètre de maille lorsque le potentiel de dépôt passe de -1.6V à -2.2V. Le calcul de la déformation, montre que les couches minces sont sous des contraintes compressives. Les observations MEB et AFM ont révélé que les films minces sont formés par l'agglomération de particules sphériques. Nous avons également constaté la présence de petits trous, formés à cause des bulles d'hydrogène qui bloquent la surface du silicium. Les mesures magnétiques ont révélés des champs coercitifs variant entre 80.5 Oe à 102 Oe. La microstructure magnétique montre l'existence de deux larges domaines magnétiques pour tous les échantillons.

Il serait intéressant pour cette série de couches minces, de faire un léger recuit qui permettra d'éliminer la porosité des films.

Bibliographie

- [1] E. R. Spada, L. S. de Oliveira, A. S. da Rocha, A. A. Pasa, G. Zangari, M. L. Sartorelli, J. Magn. Magn. Mater. 272-276 (2004) e891-e892
- [2] V. C. Kieling, Surf. Coat. Tech. 96 (1997) 135-139
- [3] S. Aravamudhan, K. Luongo, P. Poddar, H. Srikanth, S. Bhansali, Appl. Phys. A 87 (2007) 773-780
- [4] J. O'M. Bockris, S. U. M. Khan, « *Surface Electrochemistry* », Plenum Press, New York (1993) 833
- [5] L. J. Gao, P. Ma, K. M. Novogradecz, and P. R. Norton, J. Appl. Phys. 8 (1997) 7595-99
- [6] T. Yeh, J. M. Sivertsen, J. H. Judy, IEEE. Trans. Magn. 23 (1987) 2215
- [7] S. Kotapati, A. Javed , N. Reeves-McLaren , M. R. J. Gibbs , N. A. Morley, J. Magn. Magn. Mater. 331(2013) 67-71
- [8] S. Sam, G. Fortas, A. Guittoum, N. Gabouze, S. Djebbar, Surface Science 601 (2007) 4270-4273
- [9] Á. Llavona, L. Pérezza, M. C. Sánchez, V. de Manuel, Electrochim. Acta. 106 (2013) 392-397
- [10] J. M. Quemper, S. Nicolas, J. P. Gilles, J. P. Grandchamp, A. Bosseboeuf, T. Bourouina, E. Dufour-Gergam, Sens Actuators. A. Phys. 74 (1999) 1-4
- [11] K. Msellak, J. Chopart, O. Jbara, O. Aaboubi, J. Amblard, J. Magn. Magn.Mater, 281 (2004) 295-304
- [12] D. Cao, Z. Wang, E. Feng, J. Wei, J. Wang, Q. Liu, J. Alloys Compd. 581(2013) 66-70
- [13] H. Kuru, H. Kockar, M. Alper, O. Karaagac, J. Magn. Magn. Mater. 377 (2015) 59-64.

Chapitre V

**Elaboration et caractérisation des films de permalloy
déposés sur des nanofils de silicium par voie
électrochimique.**

Ce dernier chapitre a pour perspective de développer une nouvelle nanostructure à base de permalloy avec des propriétés intéressante. Nous avons élaboré des nanofils de silicium (SiNWs) par la méthode de l'attaque chimique assistée par métal. Puis nous avons utilisé ces nanofils comme substrats, pour effectuer des dépôts électrochimiques de permalloy. L'effet du potentiel de dépôt, sur les propriétés structurales, microstructurales et magnétiques des échantillons a été étudié. Ce chapitre contient les détails de la méthode d'élaboration des SiNWs, leurs caractérisations, avant et après dépôts du Py, ainsi que les résultats obtenus et les discussions relatives.

V. 1. Elaboration et caractérisation des nanofils de silicium

V. 1. 1. Synthèse des nanofils de silicium

Comme nous l'avons vu dans le chapitre II, les nanofils de silicium ont été élaborés en utilisant la gravure chimique assistée par métal en deux étapes. La première étape consiste en un dépôt chimique de particules d'argent. Le dépôt obtenu à $t = 1$ min est visible sur la figure V. 1. L'étape suivante consiste à faire une attaque chimique puis un nettoyage avec du HNO_3 . La surface du silicium obtenue suite à la formation des nanofils de silicium, après rinçage et séchage sous azote devient noire (figure V. 1)

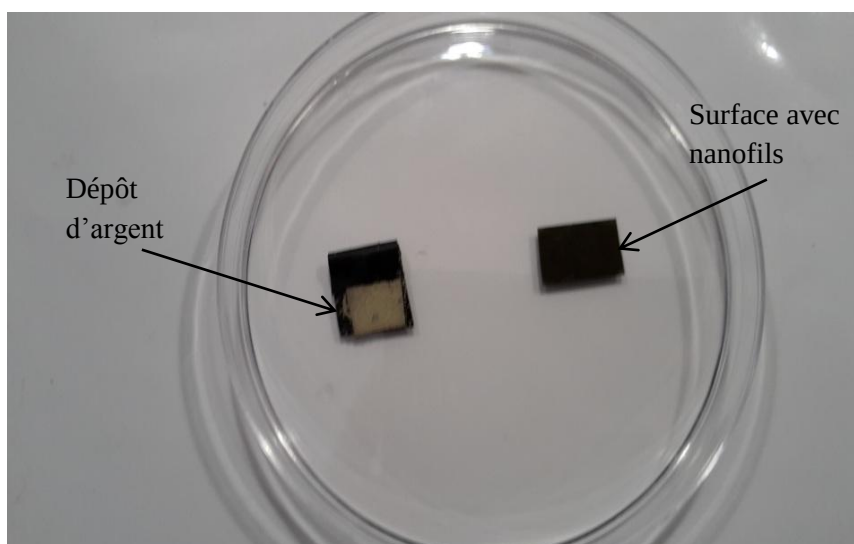


Figure. V. 1. Surface du silicium après l'étape de dépôt d'Argent et après l'attaque chimique pour la formation des nanofils et le nettoyage avec du HNO_3 .

L'étape de l'attaque chimique pour la formation des nanofils de Si a été réalisée en utilisant une solution aqueuse ($\text{HF} + \text{H}_2\text{O}_2$) à température ambiante (25°C). Ces conditions ont été optimisées suite à des tests à différentes températures (celles-ci étant mesurées à l'aide d'un thermocouple). L'attaque chimique a été effectuée dans un bain marie en utilisant le dispositif de la figure V. 2. Le temps de l'attaque chimique est un paramètre également très important. Dans ce travail, nous avons fixé l'étape de l'attaque chimique à $t = 60$ min.

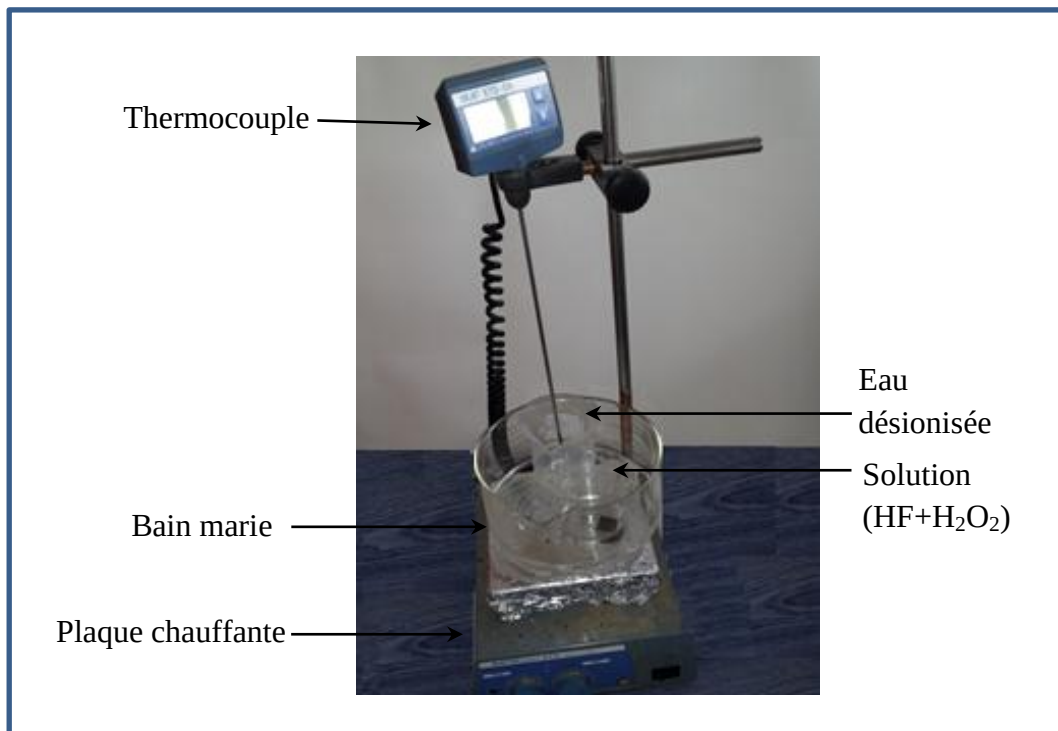


Figure V. 2. Dispositif utilisé pour l'attaque chimique assistée par métal du Si (100).

V. 1. 2. Analyse par DRX des nanofils de silicium

Des mesures par DRX ont été réalisées après la phase de dépôt des particules d'argent, et après nettoyage par de l'acide nitrique.

La figure V. 3, représente le diffractogramme obtenu pour les nanofils de silicium (SiNWs) avant et après le nettoyage de l'argent. Ce spectre de diffraction révèle la présence de tous les pics caractéristique de l'Ag. Les pics ont été indexés en se référant à la fiche JCPDS d'argent N° 04-0783[1].

Il est à noter qu'après l'attaque chimique et l'immersion des échantillons de nanofils de silicium dans une solution de HNO_3 durant 30 min, ces pics ont disparu. Ceci confirme la dissolution totale des particules d'argent. Nous avons également observé qu'après cette étape, les SiNWs conservent une bonne cristallinité ainsi que la même orientation.

A titre de comparaison, il est intéressant de citer les travaux de Chiou et al. [2] qui ont observé la présence des pics Ag (111), Ag (200), Ag (220) et Ag (311) et qu'après le traitement de HNO_3 , les auteurs ont observé uniquement les pics caractéristiques du silicium.

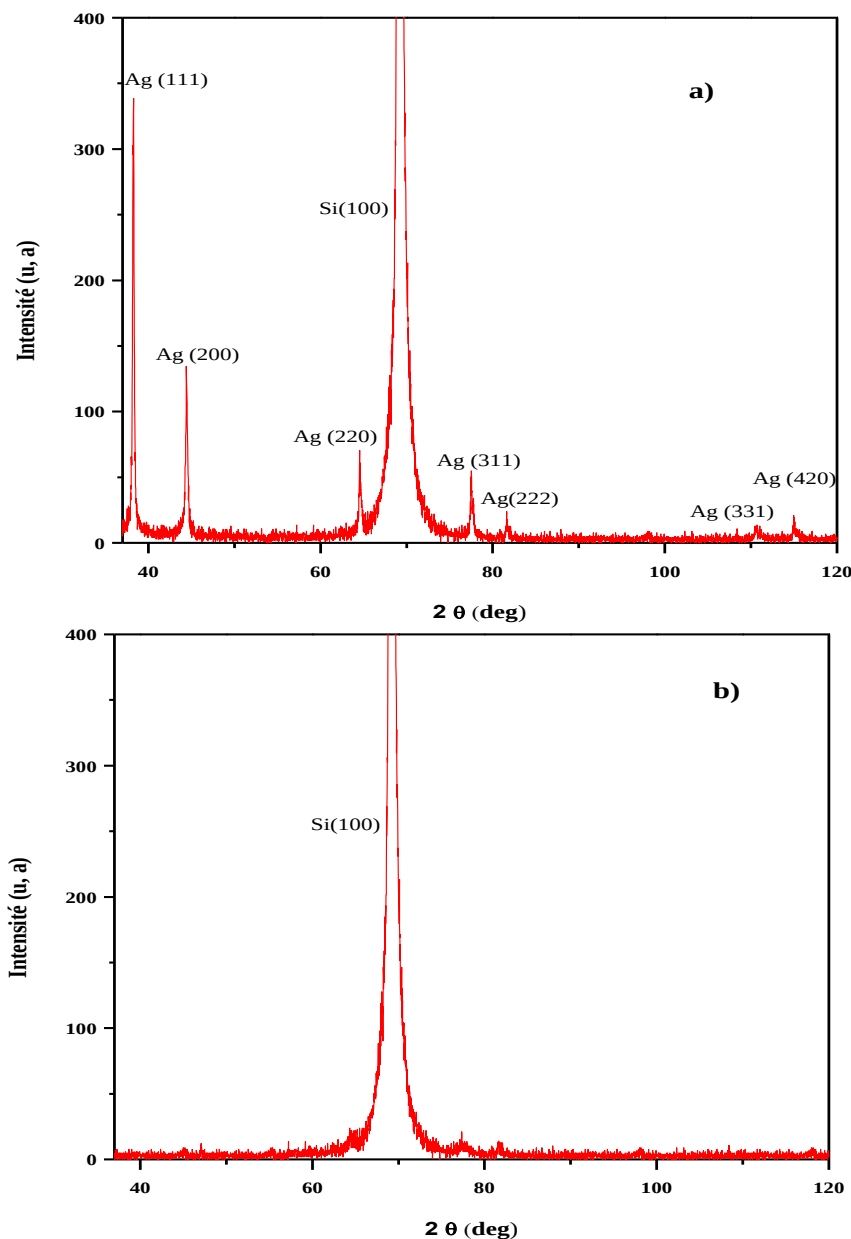


Figure V. 3. Diffractogrammes des rayons X : a) Avant nettoyage des particules d'argent, b) Après nettoyage par HNO_3 .

V. 1. 2. Morphologie des nanofils de silicium

La morphologie des dépôts d'argent, et des substrats de nanofils de silicium obtenus par gravure chimique à deux étapes, a été observée par MEB (détails voir chapitre II).

La figure V. 4 représente la surface du silicium, lors de la première étape de l'élaboration des nanofils de silicium. En effet cette figure représente la surface du silicium après l'étape du dépôt d'argent. Nous avons observé la formation de nanoparticules d'argent sur la surface du silicium, en plus de la formation de dendrites d'argent. Les particules sont de forme arrondie, et ont des tailles de l'ordre du nanomètre. En effet, nous avons estimé le rayon d'une particule à 68 nm.

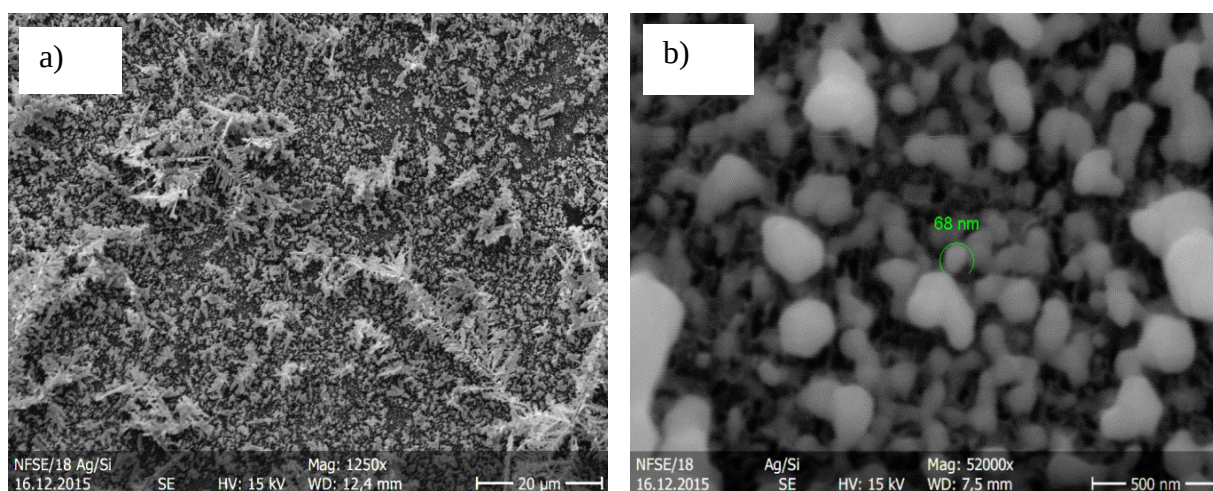


Figure V. 4. Micrographies MEB des échantillons de nanoparticules d'argent à différents grossissements : a) à $\times 1250$ et b) à $\times 52000$.

La figure V. 5 (a et b) représente des micrographies de la surface des échantillons pour différents grossissements après l'attaque chimique et nettoyage par acide nitrique. Nous avons observé que l'attaque chimique s'est faite de manière uniforme sur la surface du silicium. Cette attaque a donné lieu à la formation de nanofils de silicium regroupés à leurs sommets sous forme de bouquets. La formation de ces bouquets est attribuée à la force d'attraction de van der Waals [3]. D'après ces figures, les dimensions des nanofils de silicium est de l'ordre du micromètre en longueur, et d'une dizaine nanomètre en diamètre.

Pour une meilleure observation des nanofils de silicium, nous avons effectué une coupe transversale des substrats. La figure V. 5 (c et d) représente les images MEB en section des

échantillons pour différents grandissements. Nous avons observé une large quantité de nanofils de silicium bien alignés et perpendiculaires à la surface. La longueur de ces nanofils de silicium est d'environ 25 μm .

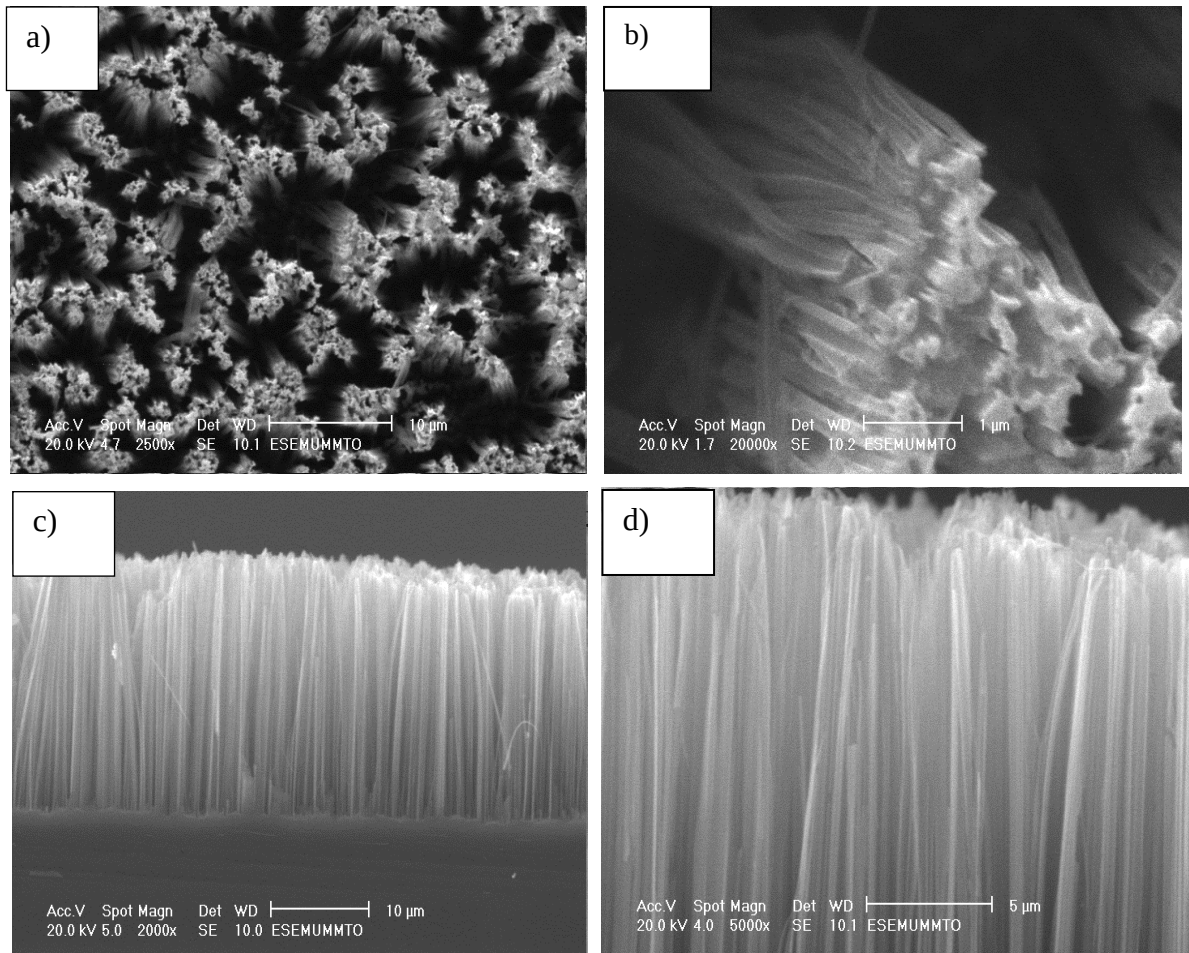


Figure V. 5. Micrographies MEB des échantillons de nanofils de silicium: (a, b) en surface, (c, d) en section.

V. 2. Dépôt de Permalloy

Les échantillons de nanofils de silicium ont été utilisés comme électrode de travail. Pour minimiser la formation d'oxyde de silicium sur la surface des nanofils, ces derniers ont été plongés dans une solution d' HF dilué (2%) durant quelques secondes, rincés, puis séchés sous azote avant de procéder au dépôt. Les couches minces de permalloy sur nanofils ont été déposées en utilisant exactement les mêmes conditions que celles utilisées sur le silicium plat

(chapitre IV). Pour cette série, Nous nous sommes limités aux tensions de dépôt de -1.6V, -1.8 V et -2 V, car comme nous l'avons vu dans le chapitre précédent, au-delà de cette tension le dégagement d'hydrogène est trop important. A la fin de l'opération de dépôt, les échantillons sont rincés et séchés sous un jet d'azote délicatement pour éviter de casser les nanofils, puis gardés sous vide pour prévenir l'oxydation. Les échantillons ont été analysés par DRX, MEB, EDXRF, AFM et VSM.

V. 2. 1. Propriétés structurales

L'analyse des propriétés structurale des couches minces de Py/SiNWs obtenues par électrodéposition pour différentes tensions a été effectuée par DRX (voir chapitre II). Une gamme angulaire entre 40° et 90° a été balayée en utilisant un pas de 0.02° .

La figure V. 6, représente les spectres de la diffraction X des couches minces de permalloy déposées à différentes tensions. Pour les échantillons déposés à -1.6 V et -1.8 V, nous avons observé un seul pic situé à $2\theta = 44.25^\circ$. Ce pic a été identifié comme étant le pic (111) de la phase cubique face centrées (CFC) du $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (JCPDS N° 47-1417) [4]. A partir de là, nous avons déduit que ces échantillons présentent une texture $\langle 111 \rangle$. Pour l'échantillon déposé à -2V, en plus du pic (111), apparaissent deux autres pics situés à $2\theta = 51.60^\circ$ et $2\theta = 76.27^\circ$. Ces pics ont été identifiés comme étant les pics (200) et (220) de la phase cfc du NiFe respectivement. A partir des rapports des intensités I_{200}/I_{111} , I_{220}/I_{111} et par comparaison à la fiche JCPDS, nous avons conclu que ces rapports sont comparables à la fiche JCPDS. Ceci nous a laissé conclure que pour le potentiel de dépôt de -2 V, l'échantillon présente une structure polycristalline.

A titre de comparaison, on cite les travaux de Zhang et al. [5], qui ont obtenu une direction préférentielle selon la direction $\langle 111 \rangle$ pour des films de permalloy électro-déposés dans des membranes poreuses d'oxyde d'aluminium anodisé.

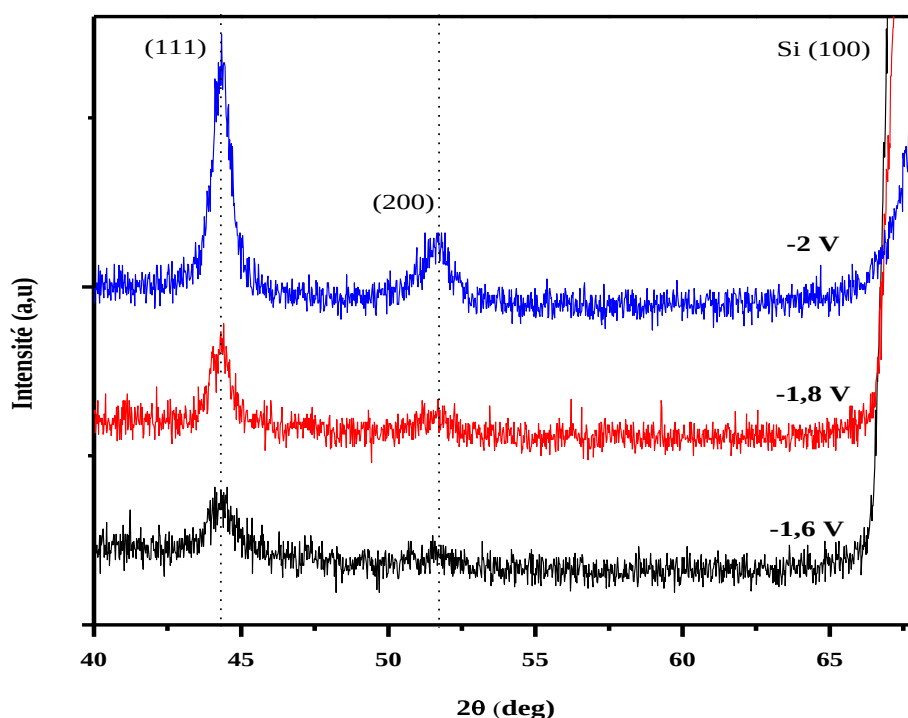


Figure. V. 6. Spectres de diffraction du Py/SiNWs pour différentes tensions de dépôts.

A partir des spectres de diffraction des échantillons de NiFe/ SiNWs, nous avons calculé la taille des cristallites en utilisant la formule de Scherrer (chapitre III). Les valeurs de $\langle D \rangle$ obtenues pour les différents potentiels de dépôts sont récapitulées dans le tableau V. 1. A partir de ces valeurs, il est clair que $\langle D \rangle$ augmente légèrement lorsque le potentiel diminue. En effet les valeurs de $\langle D \rangle$ varient de 10 ± 0.2 nm (-1.6 V) à 14 ± 0.2 nm (-2 V). Dans notre cas il semblerait que la taille des grains est faible en comparaison à d'autres travaux. A titre d'exemple Ouir et al. [6] ont obtenu des valeurs de la taille des grains entre 21.5 nm et 28 nm pour du NiFe déposé sur des nanopores de silicium. Aussi, Zhang et al. [5] ont observé une augmentation de la taille des grains de 10.6 nm à 101.6 nm, pour des nanofils de permalloy déposés par électrodéposition à des tensions allant de -0.8 V à -1.2V, en utilisant un substrat de membranes poreuses d'oxyde d'aluminium anodisé.

Dans notre cas, nous pensons que les basses valeurs de la tailles des grains ainsi que leurs légère augmentation, est probablement due à la faible nucléation. En effet il est bien connu que pour la déposition des métaux, la compétition entre la croissance et la nucléation détermine la granulométrie des dépôts [7]. Nous pensons que durant le processus d'électrodéposition, la concentration de l'électrolyte et les potentiels sont élevés donc la

vitesse de nucléation est plus basse que la vitesse de croissance. Cela se traduit par un faible taux de nucléation par rapport la vitesse de croissance et conduit à une mauvaise cristallisation des dépôts de Py.

A partir des spectres DRX, nous avons calculé le paramètre de maille, a (Å), et la déformation (strain), ε (%) (voir chapitre III). Les valeurs obtenues de a (Å) et ε (%) pour différents potentiels de dépôt sont récapitulées dans le tableau V. 1. A partir de ce tableau nous avons remarqué que les valeurs du paramètre de maille diminuent de 3.5419 ± 0.0002 Å à 3.5389 ± 0.0002 Å, lorsque le potentiel passe de -1.6 V à -2 V. De plus, nous avons noté que les valeurs obtenues sont plus élevées que les valeurs du Py massif, égale à 3.5385 Å [8].

Concernant les valeurs des déformations, nous avons noté que ε (%) diminue de 0.096 % pour un potentiel de -1.6 V à 0.011% pour -2V. Toutes les valeurs des contraintes sont positives, ce qui signifie que les films de Py/SiNWs sont sous des contraintes de dilatation. Nous pensons que l'état de surface des substrats peut être la raison de ces valeurs des contraintes.

Potential (V)	$\langle D \rangle$ (nm) ± 0.2	a (Å) ± 0.0002	ε (%)
-1.6	10	3.5419	0.096
-1.8	12.6	3.5418	0.093
-2	14	3.5389	0.011

Tableau V. 1. Paramètres structuraux des films de NiFe/SiNWs déposés à différents potentiels.

V. 2. 2. Propriétés microstructurales

V. 2. 2. 1. Microscopie électronique à balayage

L'observation des surfaces et des sections des couches minces de Py élaborées par électrodéposition, pour différentes tensions de dépôt, et en utilisant les nanofils de silicium comme substrat a été réalisé en utilisant la microscopie électronique à balayage et la microscopie à force atomique (voir chapitre II).

La figure V. 7 représente les micrographies de la surface des échantillons déposés à -1.6 V à différents grossissements. Pour le plus petit grossissement, nous avons observé que le dépôt s'effectue sur toute la surface de l'électrode de travail de 1 cm² (surface en contact avec la solution). Pour des grossissements plus importants, nous avons observé un dépôt non uniforme sur les extrémités des nanofils de silicium. En effet on peut observer la formation de petites particules, s'agglomérant sous différentes formes.

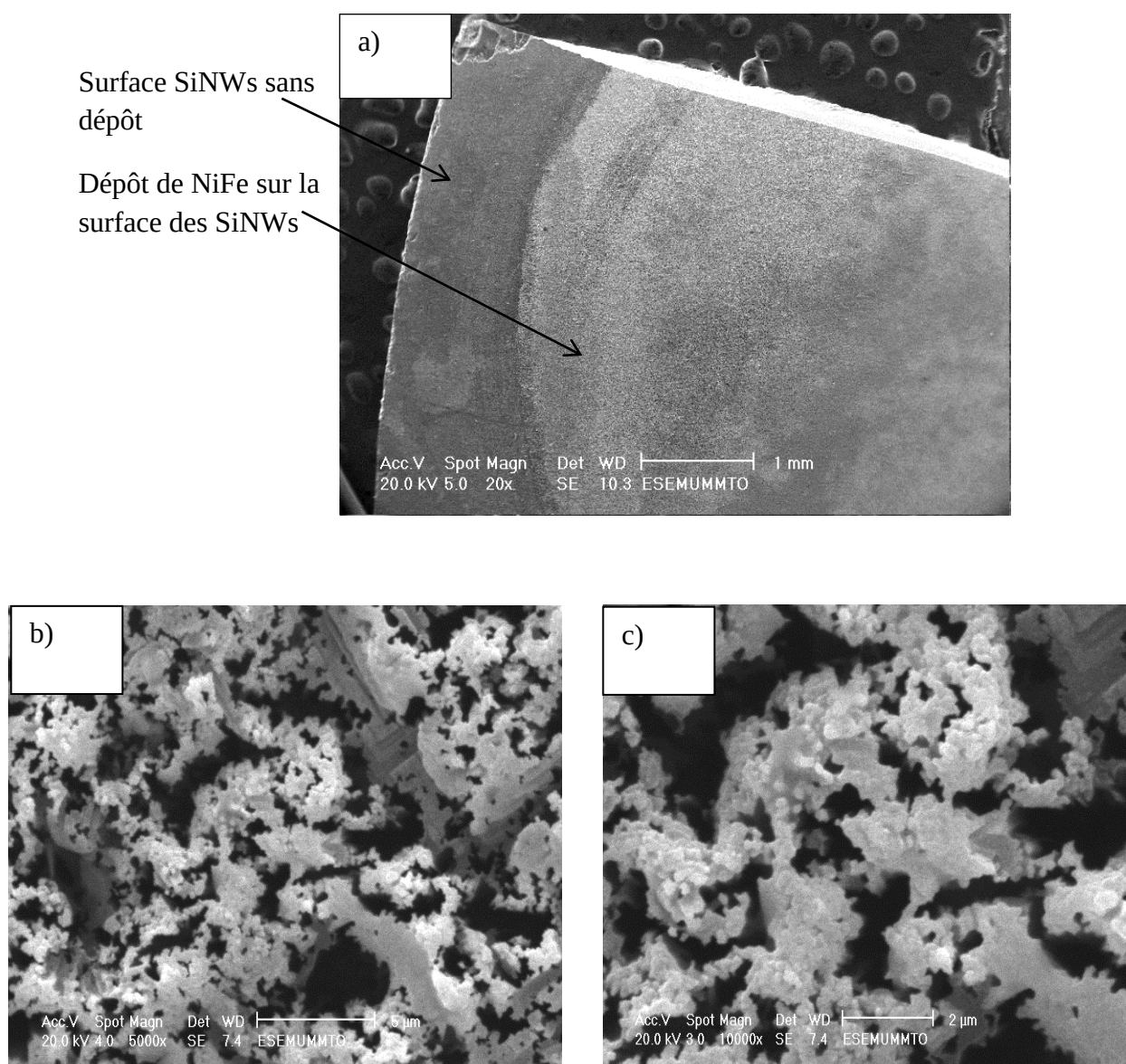


Figure V. 7. Micrographies MEB de la surface des dépôts NiFe pour $E = -1.6$ V, sur des nanofils de silicium à différents grossissements: (a) $\times 20$, (b) $\times 5000$ et (c) $\times 10000$.

La figure V.7, représente les images MEB de la surface et de la section de l'échantillon NiFe/SiNWs déposé à une tension de -1.8 V. Nous avons observé une surface aussi irrégulière. On n'a remarqué aucun changement de la morphologie de la surface des dépôts avec le changement de la tension appliquée. En clivant cet échantillon, nous avons observé des nanofils de silicium perpendiculaires au substrat du silicium. Pour un grandissement de $\times 1500$, on remarque que certains des fils de silicium formés se sont cassés, sans doute lors du découpage transversal de l'échantillon.

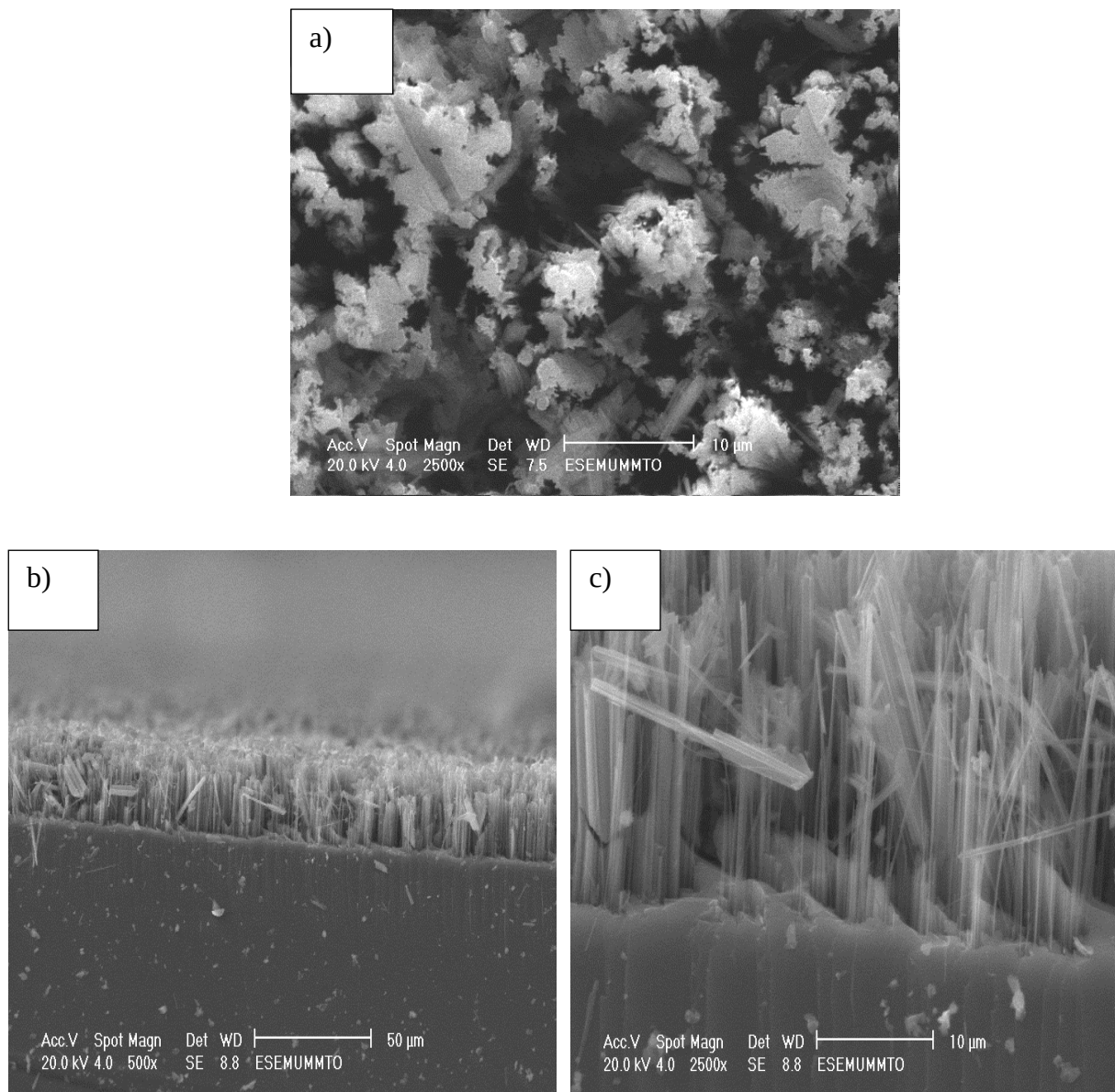


Figure V. 8. Micrographies MEB des échantillons de NiFe, sur des nanofils de silicium pour $E = -1.8 \text{ V}$ à différents grandissements: a) en surface, (b et c) en section.

La figure V. 9, représente les micrographies MEB obtenues pour l'échantillon NiFe déposé à une tension de -2V, sur des nanofils de silicium. Sur cette image, nous avons observé que la morphologie des dépôts change. En effet nous avons remarqué que pour un potentiel de dépôt appliquée $E = -2V$, il y a une formation de particules sphériques sur les sommets des nanofils de silicium. Le diamètre de ces particules est d'environ $2\mu m$.

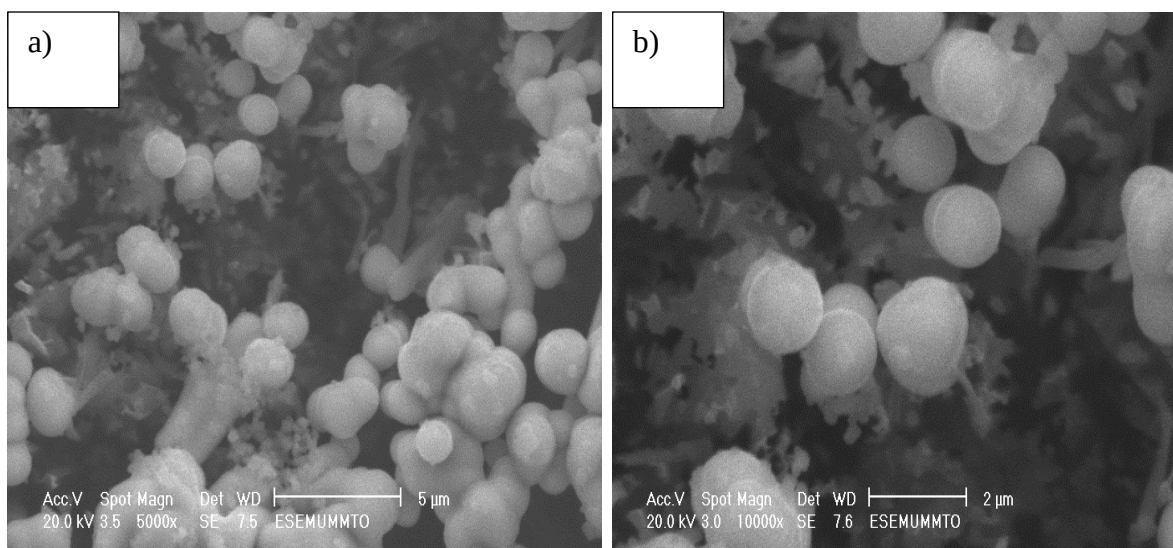


Figure V. 9. Micrographies de la surface de échantillon de NiFe, sur des nanofils de silicium pour $E = -2 V$ à différents grossissements: (a) $\times 5000$, (b) $\times 10000$.

A partir de ces images MEB, on peut dire que le potentiel appliqué lors de l'élaboration des échantillons de NiFe sur des nanofils de silicium par électrodéposition, influe dramatiquement sur la morphologie des dépôts. Nous pouvons également dire que, d'après ces résultats, la croissance des dépôts se fait en surface. Afin de pouvoir vérifier s'il y a une croissance à l'intérieur de la nanostructure du silicium, des observations par les électrons rétrodiffusés en section sont nécessaires.

V. 2. 2. 2. Microscopie à force atomique

La microscopie à force atomique a été utilisée pour l'observation de la surface des échantillons Py/SiNWs. En raison des très grandes rugosités des échantillons, la mesure par AFM, n'a pu être effectuée que pour l'échantillon déposé à -2 V.

La figure V. 10, représente les résultats obtenus pour le Py/SiNWs déposé à -2 V. Une surface très rugueuse est observée. La rugosité moyenne de la surface a été estimée à $0.384\ \mu\text{m}$, et la plus grande valeur est de $3.36\ \mu\text{m}$. Cette méthode nous a permis d'observer la morphologie des échantillons. Nous avons observé des formes sphériques, d'un diamètre d'environ $2\ \mu\text{m}$, qui peuvent être identifiées comme les particules du dépôt NiFe par analogie aux observations MEB.

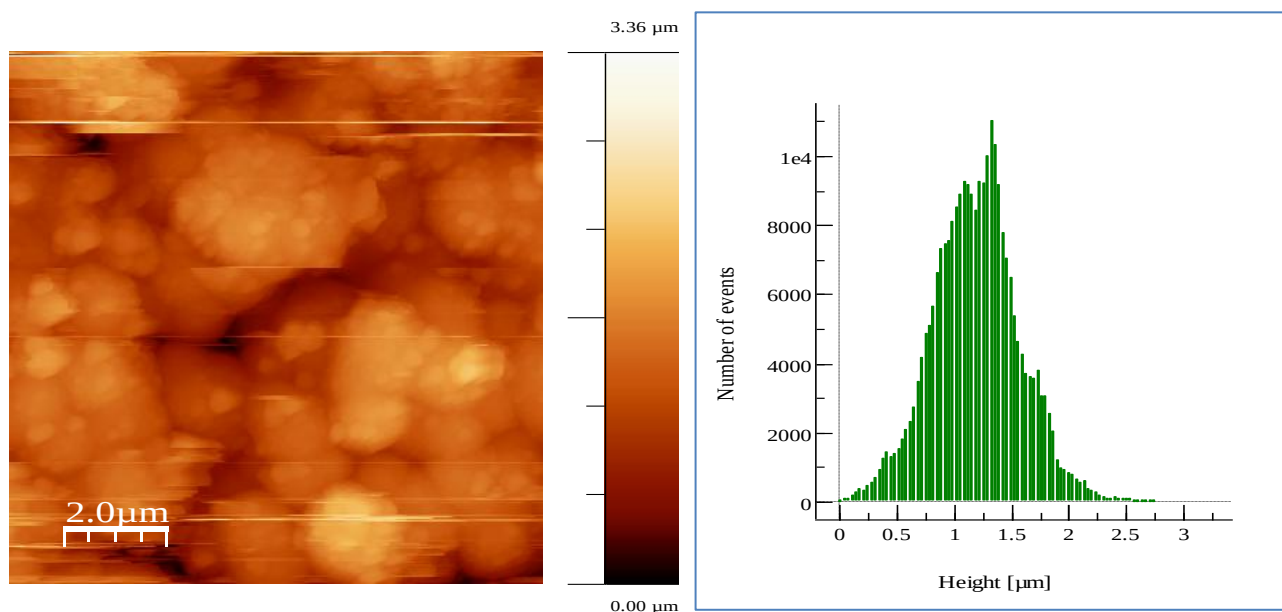


Figure V. 10. Observation de la surface et calcul du facteur RMS du film de Py/SiNWs déposé à -2 V.

V. 2. 3. Composition des dépôts

Les alliages à base de fer et de nickel sont caractérisés par une co-déposition anormale. Afin d'analyser la stœchiométrie des échantillons, nous avons effectué une analyse de dispersion d'énergie par fluorescence X (EDXRF). Un exemple du spectre obtenu pour la tension de -2 V est représenté sur la figure V. 11. A partir de ce spectre, nous avons observé que seul les pics correspondant aux éléments Fe et Ni ont été obtenus. Ceci confirme l'absence de contamination des échantillons par l'oxyde ainsi que la dissolution totale des particules d'argent. L'analyse quantitative a donné lieu à une composition de NiFe proche de celle du permalloy (80% Ni : 20% Fe).

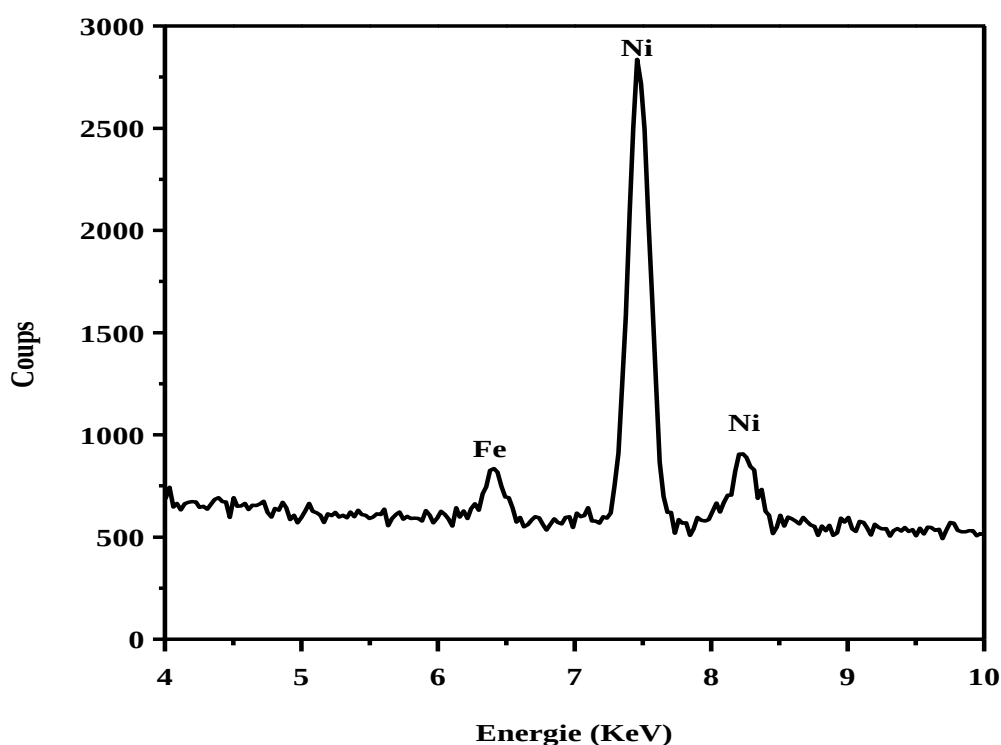


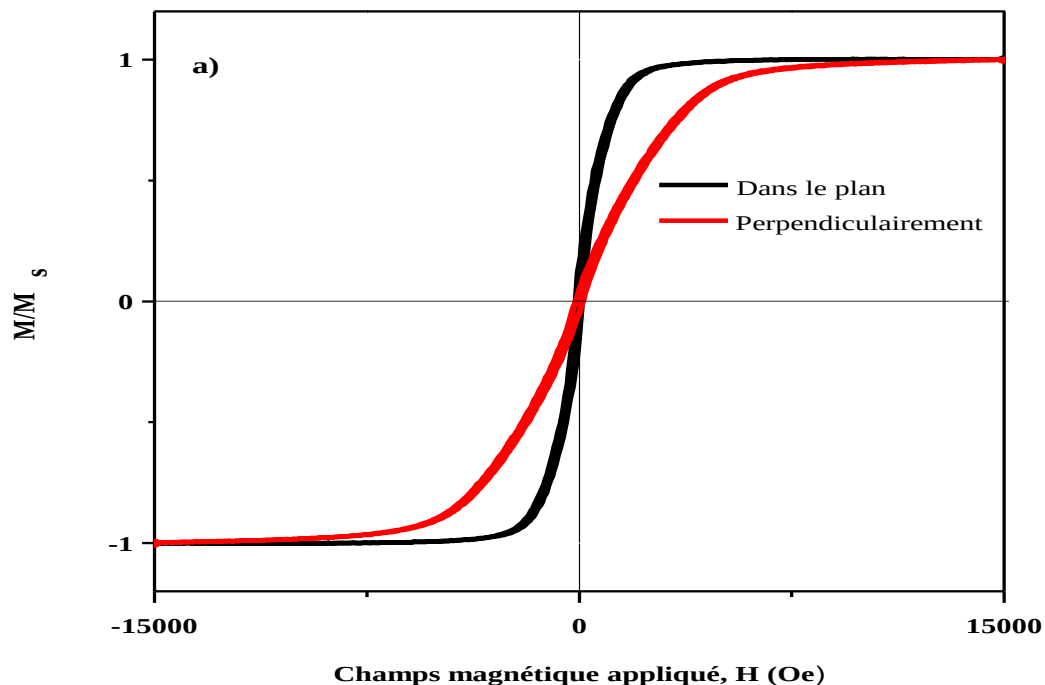
Figure V. 11. Exemple d'un spectre EDXRF pour le Py/ SiNWs déposé à -2 V.

V. 2. 4. Propriétés magnétiques

Les mesures magnétiques de tous les échantillons ont été faites au moyen d'un magnétomètre à échantillon vibrant (voir chapitre II). Deux configurations ont été étudiées : la configuration dans laquelle la direction du champ magnétique extérieur (champ appliqué) se trouve dans le plan de l'échantillon (perpendiculairement aux nanofils de silicium), et la configuration perpendiculaire dans laquelle le champ magnétique extérieur a une direction perpendiculaire au plan du dépôt (dans le plan des nanofils de silicium).

Sur la figure V.12 (a), un exemple des cycles d'hystérésis de l'échantillon de NiFe/ SiNWs déposé à une tension de -1.8V est représenté. A partir de ces cycles on peut observer l'aimantation dans le plan et hors plan, lorsqu'un champ magnétique extérieur allant jusqu'à ± 15000 Oersted (Oe) est appliqué parallèlement et perpendiculairement au plan de l'échantillon. Les valeurs des champs à saturation dans le plan et hors plan sont récapitulées dans le tableau V.2.

A partir des valeurs magnétiques, nous avons remarqué que le champ à saturation perpendiculaire ($H_s \perp$) est supérieur au champ à saturation parallèle ($H_s \parallel$) pour tous les échantillons. Ceci indique que l'axe de facile aimantation est dans le plan des échantillons (perpendiculaire aux nanofils de silicium). Il est également important de noter que les valeurs de H (de 6030 Oe à 7000 Oe) sont grandes en comparant aux valeurs des champs à saturations observé dans le cas des films minces de permalloy. En effet S. Kotapati et al. [9], ont obtenus des champs à saturation de 15 kA m^{-1} (188.49 Oe) pour des films de NiFe de 75 nm d'épaisseur). Malkinski et al. [10] ont obtenu un champ à saturation de 50 Oe pour les couches minces de permalloy d'une épaisseur de 150 nm.



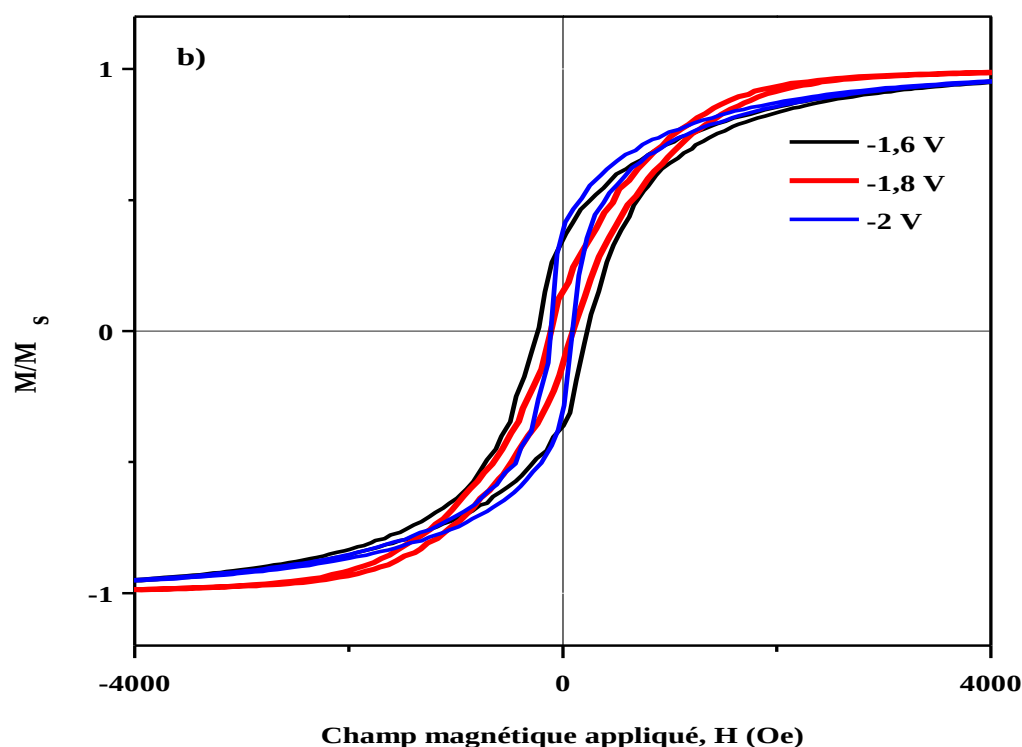


Figure V. 12. Cycles d'hystérésis normalisés: a) Cycle d'hystérésis du Py/SiNWs déposé à - 1.8 V (H appliqué parallèlement et perpendiculairement à la surface de l'échantillon), b) Cycles d'hystérésis superposés pour les films de Py/SiNWs pour différents potentiels de dépôts.

Les cycles d'hystérésis des échantillons de NiFe/SiNWs pour différentes tensions de dépôts sont représentés sur la figure V.12 (b). Ces cycles ont été obtenus en appliquant un champ magnétique extérieur ± 15000 Oe parallèle au plan des échantillons.

A partir de ces cycles, les valeurs du champ coercitif $H_{C//}$ (Oe) ont été obtenues, ces valeurs sont récapitulées sur le tableau V. 2. Ces valeurs varient entre 102 Oe et 236 Oe et sont relativement grandes en comparaison aux films de permalloy déposés sur du silicium vierge voir référence [10- 13]. Ces valeurs élevées de $H_{C//}$ peuvent s'expliquer par la prédominance de l'interaction dipolaire sur le basculement et le champ d'anisotropie comme ça a été rapporté par Granitzer et al. [14] dans le cas du Ni déposé sur des nanopores de silicium. Toutefois, les valeurs de $H_{C//}$ obtenues sont comparable à celles trouvées par certains auteurs.

En effet à titre de comparaison, Zhang et al. [5] ont obtenu une coercivité variant entre 280 Oe et 731 Oe pour des nanofils de NiFe déposés sur des nanopores d'oxyde d'aluminium anodisé par voie électrochimique. Ouir et al. [6] ont obtenus un champ coercitif de 34 Oe pour du permalloy déposé dans des nanopores de silicium. Aravamudhan et al. [15] ont obtenu des champs coercitifs variant 50-60 Oe. Pour du NiFe déposé sur des nanopore de silicium.

Potential (V)	$H_{s//}$ (Oe)	$H_{s\perp}$ (Oe)	$H_{C//}$ (Oe)
-1.6	6300	14000	236
-1.8	6030	14100	103
-2	7000	14120	102

Tableau V. 2. Paramètres magnétiques des films NiFe/SiNWs pour différents potentiels.

Conclusion

Des nanofils de silicium (SiNWs), ont été préparé par attaque chimique assisté par métal. Ces derniers ont été utilisés comme substrats pour élaborer des films de Permalloy (Py). Les propriétés structurales, microstructurales et magnétiques des films de NiFe/SiNWs ont été étudiées en utilisant la diffraction des rayons X (DRX), la microscopie électronique à balayage (MEB) et la magnétométrie à échantillons vibrants (VSM). Les résultats de la DRX montrent un changement de la texture des films de Py/SiNWs avec le changement du potentiel de dépôt. La taille des grains varie de 10 nm à 14 nm et les valeurs du paramètre de maille est supérieur à celle du massif. A partir des micrographies MEB, des nanofils bien perpendiculaires, ayant un diamètre d'une dizaine de nanomètres et une longueur de 25 μ m ont été observés. Aussi, un changement important de la morphologie des films de Py/SiNWs, a été noté lorsque le potentiel de dépôt augmente.). Les mesures d'AFM révèlent une surface très rugueuse de l'échantillon. L'analyse des cycles d'hystérésis, nous a permis de voir que l'axe de facile aimantation est dans le plan de l'échantillon.

Bibliographie

- [1] JCPDS 04-0783, International Center for diffraction Data (1997)
- [2] A. H. Chiou, T. C. Chien, C. K. Su, J. F. Lin, C. Y Hsu, *Curr. Appl. Phys.* 13, (2013) 717-724
- [3] O. Fellahi, M. R. Das, Y. Coffinier, S. Szunerits, T. Hadjersi, M. Maamache, R. Boukherroub, *Nanoscale*. 3, (2011) 4662-9
- [4] JCPDS 47-1417, International Center for diffraction Data (1997)
- [5] X. Zhang, H. Zhang, T. Wu, Z. Li, Z. Zhang, H. Sun, *J. Magn. Magn. Mater.* 331 (2013) 162-167
- [6] S. Ouir, G. Fortas, S. Sam, H. Aliouat, A. Manseri, Y. Belaroussi, N. Gabouze, A. Y. Khereddine, *J. Phys. Chem. Solids* 73 (2012) 162-167
- [7] E. Budevski, G. Staikov, W.J. Lorenz, *Electrochim. Acta* 45 (2000) 2559
- [8] T. Yeh, J.M. Sivertsen, J.H. Judy, *IEEE. Trans. Magn.* 23 (1987) 2215
- [9] S. Kotapati, A. Javed, N. Reeves-McLaren, M. R. J. Gibbs, N. A. Morley, *J. Magn. Magn. Mater.* 331 (2013) 67-71
- [10] L. M. Malkinski, R. Eskandari, A. L. Fogel, and S. Min, *J. Appl. Phys.* 111 (2012) 07A320
- [11] E. R. Spada, L. S. de Oliveira, A. S. da Rocha, A. A. Pasa, G. Zangari, M. L. Sartorelli, *J. Magn. Magn. Mater.* 272-276 (2004) e891-e892
- [12] A. Guittoum, A. Bourzami, A. Layadi, G. Schmerber, *Eur. Phys. J. Appl. Phys.* 58 (2012) 20301
- [13] X. Zhu, Z. Wang, Y. Zhang, L. Xi, J. Wang, Q. Liu, *J. Magn. Magn. Mater.* 324 (2012) 2899-2901
- [14] P. Granitzer, K. Rumpf, S. Surnev, H. Krenn, *J. Magn. Magn. Mater.* 290 (2005) 735-737
- [15] S. Aravamudhan, K. Luongo, P. Poddar, H. Srikanth, S. Bhansali, *Appl. Phys. A* 87 (2007) 773-780.

Conclusion générale

Conclusion générale

Dans ce travail de thèse, nous avons utilisé deux techniques d'élaborations de couches minces qui sont l'évaporation par effet joule et l'électrodéposition pour synthétiser des couches minces de permalloy (Py). Pour les couches minces de permalloy évaporées, nous avons étudié l'effet du substrat et de l'épaisseur sur les propriétés structurales, microstructurales et magnétiques. Concernant la série élaborée par électrodéposition, nous avons étudié l'effet du potentiel de dépôt sur les propriétés physiques des films minces Py déposés sur du silicium vierge ainsi que sur des nanofils de silicium, Si. L'élaboration de nanofils de Si a été faite en utilisant une attaque chimique assistée par métal. Les échantillons obtenus des deux séries ont été caractérisés par plusieurs techniques (profilomètre, RBS, MEB, AFM, MFM, VSM et MOKE).

Les couches minces de permalloy élaborées par évaporation ont été déposées sur trois types de substrats (verre, silicium et quartz) et pour des épaisseurs allant de 16 nm à 90 nm. A partir des spectres DRX, 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. Le paramètre de maille diminue lorsque l'épaisseur augmente alors que la taille des grains augmente avec l'augmentation de l'épaisseur pour les trois types de substrats. L'étude microstructurale a permis d'observer les surfaces des couches minces de Py et de mesurer leurs rugosités. Les surfaces des films changent en fonction du substrat utilisé. La plus grande rugosité a été obtenue pour les couches minces de Py déposées sur du quartz. L'investigation des propriétés magnétiques révèle que le champ coercitif dépend très fortement du type de substrat utilisé. Le champ coercitif diminue avec l'augmentation de la taille des grains, et suggère que les joints de grains jouent un rôle important dans l'évolution de la coercivité. Les observations par MFM montrent l'existence de parois de type cross tie uniquement pour le substrat de verre ayant des épaisseurs de 60 nm et 90 nm. La microscopie à effet Kerr révèle des domaines magnétiques dont la taille et la forme changent en fonction de l'épaisseur et du substrat. Elle montre également que la microstructure des domaines change avec la direction du champ appliqué.

Les films de permalloy élaborés par électrodéposition sur un substrat de silicium vierge, ont été obtenus pour des potentiels allant de -1.6 V à -2.2 V. A partir des spectres DRX, nous avons observé que les films présentent une texture selon la direction $\langle 111 \rangle$ pour

tous les potentiels de dépôt. Nous avons remarqué une diminution monotone du paramètre de maille lorsque le potentiel de dépôt augmente. Les observations MEB et AFM ont révélé des particules de forme sphériques ainsi que la présence de petits trous, formés à cause des bulles d'hydrogène qui bloquent la surface du silicium. Les mesures magnétiques ont révélés des champs coercitifs variant de 80.5 Oe à 102 Oe. La microstructure magnétique montre l'existence de deux larges domaines magnétiques pour tous les échantillons.

Des nanofils de silicium (SiNWs), ont été préparé par attaque chimique assisté par métal. Ces derniers ont été utilisés comme substrats pour élaborer des films de Permalloy (Py). Les résultats de la DRX montrent un changement de la texture des films de Py/SiNWs avec le changement du potentiel de dépôt. La taille des grains varie de 10 nm à 14 nm et les valeurs du paramètre de maille est supérieur à celle du massif. A partir des micrographies MEB, des nanofils bien perpendiculaires, ayant un diamètre d'une dizaine de nanomètres et une longueur de 25 μm ont été observés. Aussi, un changement important de la morphologie des films de Py/SiNWs, a été noté lorsque le potentiel de dépôt augmente. Les observations par AFM révèlent une surface très rugueuse des échantillons. L'analyse des cycles d'hystérésis, nous a permis de conclure que l'axe de facile aimantation est dans le plan de l'échantillon.

En perspective de ce travail, il serait intéressant de mener une étude sur les couches minces de permalloy sur des nanofils de Si en utilisant le mode pulsé de l'électrodéposition. Nous pensons que ce mode pourrait augmenter le taux de pénétration du dépôt dans les nanofils et induire un changement dans les propriétés structurales et magnétiques dans les nanostructures élaborées.

Valorisations dans le cadre de la thèse

Publications internationales

- S. Lamrani, A. Guittoum, R. Schäfer, M. Hemmous, V. Neu, S. Pofahl, T. Hadjersi, N. Benbrahim, “*Morphology, structure and magnetic study of permalloy films electroplated on silicon nanowires*” Journal of Magnetism and Magnetic Materials 396 (2015) 263–267.
- S. Lamrani, A. Guittoum, R. Schäfer Rudolf, S. Pofahl, V. Neu, M. Hemmous, and N. Benbrahim, “*Microstructure investigation and magnetic study of permalloy thin films grown by thermal evaporation*”, The European Physical Journal Applied Physics, 74 (2016) 30302.

Publication nationale

- S. Lamrani, A. Guittoum, T. Hadjersi, S. Bouanik, M. Mebarki, N. Benbrahim, “*Structural and magnetic properties of electrodeposited NiFe alloy on silicon nanowires*”, Journal of New Technology and Materials 04 (2014) 50-52.

Communications internationales

- S. Lamrani, A. Guittoum, T. Hadjersi, N. Benbrahim, “*Morphological study of NiFe thin films deposited on n-Si (100) substrates by an electrochemical process*”, 1st International Conference on Materials for Energy & Environmental Engineering ICM3E’14, Algiers, 23-25 November 2014.
- S. Lamrani, A. Guittoum, R. Schäfer, M. Messaoud, S. Pofahl, V. Neu, N. Benbrahim, “*X-ray diffraction and magnetic studies of permalloy thin films grown by evaporation*”, 10th International conference on the Scientific and Clinical Applications of Magnetic Carriers, Dresden, Germany, 10-14 June 2014.
- S. Lamrani, A. Guittoum, T. Hadjersi, S. Bouanik, M. Mebarki, N. Benbrahim , “*Influence of Silicon nanowires morphology on NiFe properties*”, International conference on Nanostructures for Sensing and Energy Conversion NaSEC’14, à l’hotel Hilton d’Alger.

Autres publications

- M. Kezrane, A. Guittoum, M. Hemmous, S. Lamrani, A. Bourzami, W. Weber, “*Elaboration, Microstructure, and Magnetic Properties of Nanocrystalline Fe₉₀Ni₁₀ Powders*”, Journal of Superconductivity and Novel Magnetism 28 (2015) 2473–2481.
- S. Naama, T. Hadjersi, H. Menari, G. Nezzal, L. Baba Ahmed, S. Lamrani, “*Enhancement of the tartrazine photodegradation by modification of silicon nanowires with metal nanoparticles*” Materials Research Bulletin 76 (2016) 317–326.
- A. Guittoum, S. Lamrani, A. Bourzami, M. Hemmous, N. Souami, and W. Weber “*Elaboration, structure, microstructure and magnetic properties of soft Fe₈₀Ni₂₀ nanomaterials elaborated by high energy ball milling*” The European Physical Journal Applied Physics, (2014) 65: 30401.
- M. Kezrane, A. Guittoum, N. Boukherroub, S. Lamrani, T. Sahraoui “*Mössbauer and X-ray diffraction studies of nanostructured Fe₇₀Al₃₀ powders elaborated by mechanical alloying*” Journal of Alloys and Compounds, 536S (2012) S304– S307

Résumé

Nous avons étudié l'effet de l'épaisseur sur les propriétés structurales, microstructurales et magnétiques des couches minces de $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (Permalloy : Py), élaborés par évaporation sous vide et par électrodéposition. Les films de Py ont été évaporés sur des substrats de verre, de silicium et de quartz. Les épaisseurs des couches minces varient entre 16 et 90 nm. Les spectres de diffraction X montrent une orientation préférentielle dans la direction $\langle 111 \rangle$ pour les films de faible épaisseur. Alors que les couches minces de plus grandes épaisseurs exhibent une orientation aléatoire. La taille des grains augmente et le paramètre de maille diminue lorsque l'épaisseur augmente. Les observations par Microscopie à Force Magnétique montrent des parois de domaines de type cross-ties, uniquement pour les épaisseurs de 60 et 90 nm pour les films de Py/verre. La microstructure magnétique obtenue en utilisant la microscopie à effet Kerr, montre la présence de domaines magnétiques qui changent avec le changement de la direction du champ magnétique. Le champ coercitif, H_c , diminue avec l'augmentation de l'épaisseur indépendamment du type de substrat utilisé. Pour la technique de l'électrodéposition, nous avons rapporté l'effet du potentiel de dépôt sur la morphologie, la structure et les propriétés magnétiques des dépôts de Py sur du silicium et sur des nanofils de silicium (SiNWs). Les analyses par DRX montrent un changement de la texture des films avec le changement du potentiel de dépôt. La taille des grains, le paramètre de maille et les microdéformations ont été étudiées en fonction du potentiel de dépôt. La morphologie des SiNWs et des Py/SiNWs ont été réalisées par microscopie électronique à balayage (MEB). Les images MEB révèlent la formation des SiNWs et montrent un changement de la morphologie en fonction des potentiels de dépôt. A partir des cycles d'hystérésis, nous avons montré que l'axe de facile aimantation est dans le plan des échantillons de Py/SiNWs.

Mots clés: Films de Permalloy, Nanofils de Silicium, MEB, Structure, Propriétés magnétiques, Microscopie à Force Magnétique, Microscopie à effet Kerr

Abstract

We study the effect of thickness on the structural, microstructural and magnetic properties of $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ (Permalloy:Py) thin films, elaborated by evaporation and electrodeposition process. The Py films were evaporated on glass, silicon and quartz substrates. The films thicknesses range from 16 to 90 nm. From X-ray diffraction spectra analysis, we show that the thinner films present a $\langle 111 \rangle$ preferred orientation. However, the thicker films exhibit a random orientation. The grains size increases and the lattice parameter decreases with increasing thickness. The Magnetic Force Microscopy observations display cross-tie walls features only for the two thicker films (60 and 90 nm thick films) for the Py/glass substrate. The magnetic microstructure, carried out by Kerr microscopy technique, shows the presence of magnetic domains changing with the direction of applied magnetic field. The coercive field, H_c , was found to decrease independently of the substrate. For the electrochemical process, we report the effect of deposition potential on the morphology, structure and magnetic properties of Py deposits on to silicon and silicon nanowires (SiNWs). The analysis of X-ray diffraction spectra shows a change in the texture with the deposition potential. The grain size, the lattice parameter and the strain were studied as a function of the deposition potentials. The Morphology of SiNWs and Py/SiNWs were performed with scanning electron microscopy (SEM). The SEM micrographs reveal the formation of SiNWs and clearly show a change in the morphology with the deposition potential. From hysteresis loops, we have shown that the magnetization easy axis is the plane of the Py/SiNWs samples.

Keywords: Permalloy film, Silicon nanowires, SEM, Structure, Magnetic properties Magnetic force microscopy, Kerr microscopy.