



**HAL**  
open science

# Etude et réalisation de couches minces à caractère magnétique par pulvérisation cathodique magnétron. Application pour des capteurs de type GMI

Rafik Nouar

► **To cite this version:**

Rafik Nouar. Etude et réalisation de couches minces à caractère magnétique par pulvérisation cathodique magnétron. Application pour des capteurs de type GMI. Mécanique [physics.med-ph]. Université de Technologie de Belfort-Montbéliard, 2009. Français. NNT : 2009BELF0117 . tel-00608886

**HAL Id: tel-00608886**

**<https://theses.hal.science/tel-00608886>**

Submitted on 15 Jul 2011

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.

N° D'ordre : 107

Ecole Doctorale "Sciences pour l'Ingénieur Microtechnique"

Université de Franche-Comté

Université de Technologie de Belfort-Montbéliard

## THESE

Présentée pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Technologie de Belfort-Montbéliard

par

**Rafik NOUAR**

*Etude et réalisation de couches minces à caractère magnétique par pulvérisation cathodique magnétron. Application pour des capteurs de type GMI*

Soutenance prévue le 18/11/2009 devant le jury composé de :

**Rapporteurs :**

Mr. Philippe PIGEAT, Chargé de Recherche CNRS CR1, Université Henri Poincaré

Mr. Salim-Mourad CHERIF, Professeur, LPMTM, Université Paris 13

**Examineurs :**

Mr. Francisco ALVES, Professeur, LGEP Université Paris Sud

Mr. Nicolas MARTIN, Professeur, FEMTO ST, UFC

Mr. Alain BILLARD, Professeur, LERMPS, UTBM

Mr. Nouredine FENINECHE , MCF HDR, LERMPS, UTBM



## Remerciements

Ces travaux ont été réalisés au sein du Laboratoire d'Etude et de Recherches sur les Matériaux, les Procédés et les surfaces (LERMPS) de l'Université de Technologie de Belfort Montbéliard (UTBM) sous la direction de Monsieur Noureddine Fenineche et de Monsieur Alain Billard.

J'adresse mes premiers remerciements à Monsieur le professeur Christian Coddet qui m'a accueilli au sein de son laboratoire.

Je suis également reconnaissant à Mr. N. Fenineche de m'avoir offert l'opportunité de réaliser ma thèse sous sa direction.

Me remerciements s'adressent également à Mr. Alain Billard qui, en plus d'avoir accepté de co-encadrer ce travail, m'a toujours donné les moyens de me déplacer vers d'autres laboratoires.

J'adresse mes vifs remerciements à, Messieurs Philippe Pigeat et le Professeur Salim-Mourad Cherif qui ont accepté d'apporter un jugement critique sur mon travail, et à Messieurs les professeurs Francisco Alves et Nicolas Martin d'avoir accepté de faire partie du jury.

A David, merci pour ton aide en début de thèse.

A Madame C. Bellouard du LPM, merci pour le temps de manip accordé sur le VSM.

A Monsieur J.F. Pierson du LSGS, merci pour l'accès aux mesures de résistivité.

A Monsieur R. Barrué du SATIE, merci pour le temps que vous m'avez accordé, nos discussions scientifiques ont été plus que bénéfiques pour moi. Merci également d'avoir pris le temps de m'apprendre à utiliser le microscope à effet Kerr. Je vous souhaite une heureuse et longue retraite.

A Monsieur F. Alves du LGEP, merci pour le temps que vous m'avez accordé, pour les manip que j'ai eu l'occasion de faire en votre compagnie et pour votre enthousiasme dès lors qu'il s'agit de capteurs GMI.

A Monsieur J.M. Greneche du LPEC, pour son aide et sa disponibilité ainsi que pour les résultats d'analyse par spectrométrie Mössbauer.

Je remercie également l'ensemble du personnel du laboratoire pour leur précieuse aide tout au long de la thèse.

- Les experts Montbéliard Odile, Sophie et Olivier pour les différentes carac
- Adrien, Chris et Eric pour les aides techniques
- Nathalie et Kanta pour leur aide à la préparation des cours

- Une mention spéciale à Khalid pour son aide immense durant la thèse. Son désintéressement et son dévouement m'ont toujours permis de gagner du temps et d'avancer rapidement dans mon travail. Ses qualités humaines (justice, honnêteté, franchise, ouverture au dialogue et son sens de l'autocritique) font de lui une personne exceptionnelle.

A mes amis, Momo Assal et Pania, Salim, Maz et Rayane, Mira, Mina, Zhang et Zhang, Fanfan, Chris, Adrien, Abdul, Nassirou, Kahina, Rahil, Bogdan et Bogdan, Lionel et bien d'autres encore, merci pour tous les bons moments passés au labo ou à l'extérieur.

Merci aux profs et tuteurs qui m'ont tout au long de ma scolarité marqué et motivé pour continuer mes études : Saoudik, Jackie, Tabib, Le petit, Rémy, Pigeat.

Enfin, un grand merci à ma famille sans qui je n'aurai jamais pu venir en France et y "survivre" durant les deux premières années. Que mes cousins et cousines trouvent ici toute ma gratitude et mon affection.

A toi Nabila, merci de m'avoir accompagné depuis 2004, de m'avoir soutenue et de m'avoir apporté plein bonheur.

Ce travail est dédié à une femme exceptionnelle DRIFA.



# Sommaire

Listes des Figures .....	9
Liste des tableaux .....	13
Equations et unités du magnétisme .....	15
Introduction générale.....	17
Chapitre I. Rappels et synthèse bibliographique .....	19
Introduction .....	21
I.1. Magnétisme .....	21
I.1.1. Ferromagnétisme .....	22
I.1.1.1. Cycle d'hystérésis .....	23
I.1.1.2. Anisotropie de forme et champ démagnétisant .....	25
I.1.1.3. Anisotropie magnéto-cristalline .....	26
I.1.1.4. Anisotropie magnéto-strictive .....	27
I.1.1.5. Domaines magnétiques et parois de Bloch.....	27
I.1.1.6. Température de Curie .....	29
I.1.2. Notion de matériaux ferromagnétiques doux et durs .....	30
I.1.3. Autres types de magnétisme.....	30
I.1.3.1. Matériaux diamagnétiques .....	30
I.1.3.2. Paramagnétisme .....	31
I.1.3.3. Antiferromagnétisme.....	32
I.1.3.4. Ferrimagnétisme.....	32
I.2. Dépôts physiques en phase vapeur [19-30].....	34
I.2.1. La pulvérisation cathodique .....	35
I.2.1.1. Principe de fonctionnement.....	36
I.2.1.2. Interactions ions-cible, Pulvérisation et autres phénomènes [27,28,31] .....	38
I.2.2. Évolution de la technique: de la pulvérisation cathodique à la pulvérisation cathodique magnétron .....	40
I.2.2.1. Pulvérisation triode [29-32] .....	41
I.2.2.2. Pulvérisation cathodique magnétron .....	42
Configurations du magnétron.....	43
I.2.3. Pulvérisation des cibles ferromagnétiques: .....	46
I.2.4. Germination et croissance des couches :.....	50
I.3. L'alliage FeSi [13,15,40] .....	53
I.3.1. Diagramme de phases de l'alliage FeSi .....	57
I.3.1.1. Influence de la teneur en Si sur la résistivité.....	61
I.3.1.2. Influence de la teneur en Si sur les propriétés magnétiques.....	63
I.4. La Magnéto-impédance .....	66
I.4.1. Pourquoi un capteur GMI.....	66
I.4.2. Comment utiliser un capteur GMI pour mesurer un champ magnétique [57,58]	67
I.4.3. Quelques applications [59].....	68
I.4.4. Origine de la Magnéto-impédance .....	69
I.4.5. Les différentes configurations de capteurs GMI .....	71
Conclusion du chapitre I .....	73
Chapitre II. Protocole expérimental et techniques de caractérisation.....	74
Introduction .....	76
II.1. Matériel utilisé pour l'élaboration des couches minces .....	77
II.1.1. Réacteur de pulvérisation .....	77

II.1.2.	Modifications et améliorations apportées au réacteur pour l'élaboration d'alliages à forte teneur en Si.....	79
II.1.3.	Protocole expérimental pour la pulvérisation des cibles en Fer.....	81
II.2.	Moyens de caractérisation.....	83
II.2.1.	Caractérisations structurale et morphologique.....	83
II.2.1.1.	Diffractomètre de rayons X (DRX).....	83
II.2.1.2.	Microscopie électronique à balayage (MEB).....	84
II.2.1.3.	Spectroscopie à décharge lumineuse (SDL) ou (GDOES) pour Glow Discharge Optical Emission Spectroscopy.....	85
II.2.1.4.	Spectroscopie par dispersion d'énergie des photons X.....	86
II.2.1.5.	Mesures d'épaisseur par profilométrie.....	86
II.2.2.	Mesures Magnétiques et électriques.....	87
II.2.2.1.	Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM).....	87
II.2.2.2.	Observation des domaines magnétiques par Effet Kerr Magnéto-Optique (MOKE) 90	
II.2.2.3.	Mesure de résistivité par méthode quatre pointes.....	92
II.2.2.4.	Test des capteurs.....	93
	Conclusion du chapitre II.....	95
	Chapitre III. Résultats expérimentaux et discussion.....	96
	Introduction.....	98
III.1.	Elaboration de l'alliage FeSi par pulvérisation de cible composite.....	98
III.1.1.	Optimisation des conditions expérimentales.....	99
III.1.1.1.	Détermination de la pression de travail.....	99
III.1.1.2.	Positionnement du substrat.....	100
III.1.1.3.	Homogénéité en composition.....	102
III.1.1.4.	Choix et préparation des substrats.....	103
Résumé:	.....	104
III.1.2.	Résultats et discussions.....	105
III.1.2.1.	Composition et épaisseur.....	105
III.1.2.2.	Etude structurale.....	110
III.1.2.3.	Etude magnétique.....	113
III.1.2.4.	Etude électrique.....	117
III.2.	Elaboration de l'alliage Fe-Si par co-pulvérisation avec substrat rotatif.....	119
III.2.1.	Optimisation des conditions expérimentales.....	119
III.2.1.1.	Homogénéité en épaisseur et en composition.....	119
III.2.2.	Résultats et discussion.....	121
III.2.2.1.	Composition et épaisseur.....	121
III.2.2.2.	Etude structurale.....	123
III.2.2.3.	Etude magnétique.....	127
III.2.2.4.	Etude électrique:.....	133
III.2.2.5.	Caractérisation des domaines magnétiques:.....	135
	Conclusion du chapitre III.....	137
	Chapitre IV. Elaboration et test de capteurs à magnéto-impédance.....	139
	Introduction.....	141
IV.1.	Optimisation de l'orientation des domaines magnétiques.....	143
IV.2.	Elaboration des capteurs.....	146
IV.3.	Test des capteurs.....	147
	Conclusion du chapitre IV.....	156
	Conclusion générale.....	158
	Bibliographie.....	162



# Liste des Figures

Figure I-1. Effet de l'interaction d'échange à courte portée sur l'ordre magnétique macroscopique dans les matériaux ferromagnétiques.....	23
Figure I-2. Cycle d'hystérésis caractéristique d'un matériau ferromagnétique.....	24
Figure I-3. Influence de la forme d'un matériau ferromagnétique sur l'orientation de l'aimantation. ....	25
Figure I-4. Anisotropie magnétique d'un monocristal de Fer d'après [7].....	26
Figure I-5. Image obtenue par microscopie à effet Kerr de domaines magnétiques dans un alliage Fe-Si.....	28
Figure I-6. Schéma d'une paroi de Bloch séparant deux domaines magnétiques adjacents.....	28
Figure I-7. Circulation des lignes de champs dans un monocristal ferromagnétique en fonction de la forme des domaines de Weiss. ....	29
Figure I-8. Cycles caractéristiques des matériaux ferromagnétiques (a) durs et (b) doux.....	30
Figure I-9. Schéma explicatif du diamagnétisme à l'échelle microscopique. ....	31
Figure I-10. Schéma explicatif du paramagnétisme.....	32
Figure I-11. Schéma de base de l'élaboration d'une couche mince par dépôt physique en phase vapeur. ....	34
Figure I-12. Schéma du dispositif de pulvérisation cathodique diode. ....	36
Figure I-13. Régime de polarisation possible d'une cible pulvérisée (a) courant continu, (b) courant continu pulsé, (c) radiofréquence. ....	38
Figure I-14. Différents phénomènes possibles suite au bombardement d'une cible par un ion énergétique. ....	38
Figure I-15. Trois régimes de pulvérisation par collisions élastiques. (a) Collision simple. (b) Collision linéaire. (c) Collision de pointe. ....	39
Figure I-16. Schéma du dispositif de pulvérisation cathodique triode.....	41
Figure I-17. Schéma d'une cathode équipée d'un système magnétron. ....	42
Figure I-18. Schéma du dispositif de pulvérisation cathodique magnétron. ....	43
Figure I-19. Configurations possibles des magnétrons. (a) Équilibré, (b) et (c) Déséquilibrés. ....	44
Figure I-20. Usure inhomogène de la cible dans le procédé magnétron. ....	45
Figure I-21. Schéma d'un dispositif de pulvérisation cathodique magnétron avec aimant central pivotant [33]. ....	46
Figure I-22. Dispositif comprenant deux magnétrons classiques placés en vis-à-vis [35]. ....	48
Figure I-23. Schéma du magnétron modifié. Champ magnétique produit par supraconducteur [36]. ....	49
Figure I-24. Schéma représentatif d'un magnétron (vue en coupe) : (a) équipé d'une cible non magnétique; (b) équipé d'une cible magnétique; (c) équipé d'une cible magnétique modifiée [37]. ....	49
Figure I-25. Influence de l'énergie des atomes lors de la croissance du revêtement sur sa morphologie. (a) revêtement dense, (b) revêtement poreux.....	51
Figure I-26. Diagramme de zones de Thornton [39].....	52
Figure I-27. Diagramme de phase de l'alliage FeSi d'après [41].....	57
Figure I-28. Agrandissement du diagramme de phase entre 0 et 50 at.% de Si.....	58
Figure I-29. Les positions occupées par l'atome de Si dans les alliages Fe-Si. (a) Le Si se substitue à n'importe quel atome de Fer; (b) Le Si se substitue préférentiellement à l'atome de Fer au centre du cube; (c) Le Si se substitue aux atomes de Fer des sites B dans un site sur deux. ....	60

Figure I-30. Diagrammes de diffraction de rayons X d'alliages Fe-Si élaborés par pulvérisation cathodique magnétron avant (a) et après (b) recuit et courbe d'évolution de la résistivité de ces revêtements (c) d'après [52].	62
Figure I-31. Evolution de la résistivité des films Fe-Si à température ambiante en fonction de la teneur en Si d'après [43].	63
Figure I-32. Evolution du champ coercitif en fonction de la teneur en Si pour des alliages Fe-Si élaborés par PVD magnétron. Les symboles "•" et "x" indiquent le sens d'application du champ durant la mesure dans le VSM: "•" le champ est appliqué dans le sens radial de la cible et "x" le champ est appliqué dans le sens azimutal de la cible. D'après [45].	64
Figure I-33. Positionnement des capteurs MI par rapport aux autres capteurs de champs magnétiques. D'après [56].	67
Figure I-34. Evolution typique de l'impédance relative d'un capteur à magnéto-impédance géante.	68
Figure I-35. Différentes configurations des capteurs GMI: a) micro-fils; b) rubans; c) couches minces.	71
Figure I-36. Différentes configurations possibles des capteurs GMI en couches minces: a) couche simple; b) multicouches; c) structure sandwich.	72
Figure II-1. Vue externe du dispositif de pulvérisation	77
Figure II-2. Schéma du bâti de pulvérisation.	79
Figure II-3. Schéma représentatif des flux pulvérisés à partir de deux cibles.	79
Figure II-4. Cible composite composée de deux matériaux.	80
Figure II-5. Chambre de réaction en configuration co-pulvérisation.	81
Figure II-6. Evolution de la tension de polarisation de la cible en fer en fonction du temps de pulvérisation pour différentes puissances injectées.	82
Figure II-7. a) Schéma descriptif du diffractomètre de rayons X - b) Diagramme de diffraction d'un revêtement de Fer pur en incidence rasante.	83
Figure II-8. Photographie MEB du faciès de rupture d'un revêtement de Fe-Si déposé sur substrat en Si monocristallin.	84
Figure II-9. Mesure par SDL de la composition d'un revêtement FeSi sur substrat en Cu (notre étude).	85
Figure II-10. Spectre d'analyse EDS d'un revêtement Fe-Si	86
Figure II-11. Capture d'écran d'une mesure d'épaisseur effectuée par profilométrie.	87
Figure II-12. Cycle d'hystérésis d'un matériau ferromagnétique.	88
Figure II-13. Schéma représentatif du magnétomètre à échantillon vibrant.	89
Figure II-14. Configurations de mesures magnétiques dans le VSM.	89
Figure II-15. Photographie du VSM utilisé (avec autorisation du Ipm).	90
Figure II-16. Différentes configurations de l'effet Kerr magnéto-optique: (a) Longitudinale; (b) Transverse; (c) Polaire.	91
Figure II-17. Schéma représentatif du microscope à effet Kerr et image réelle obtenue (dimension 2x3 mm).	92
Figure II-18. Schéma du banc de caractérisation des capteurs à magnéto-impédance.	94
Figure III-1. Image d'une cible composite de pulvérisation.	99
Figure III-2. Epaisseur normalisée en fonction de la distance à l'axe de la cible.	101
Figure III-3. Schéma représentatif du positionnement du substrat par rapport à la cible.	102
Figure III-4. Distribution inhomogène des atomes pulvérisés	102
Figure III-5. Evolution de la composition dans un revêtement Fe-Si élaboré par pulvérisation d'une cible composite en fonction de la distance à l'axe de la cible.	103
Figure III-6. Compositions chimiques déterminées par SDL des films synthétisés à 0,5Pa.	107
Figure III-7. Compositions chimiques déterminées par SDL des films synthétisés à 0,3Pa.	108

Figure III-8. Evolution de la teneur en oxygène à la surface des revêtements en fonction du temps d'analyse SDL. ....	109
Figure III-9. Evolution de la composition en fonction de la surface des pastilles en Si des revêtements élaborés à 0,5 Pa. ....	109
Figure III-10. Evolution de la composition en fonction de la surface des pastilles en Si des revêtements élaborés à 0,3 Pa. ....	110
Figure III-11. Diagramme de diffraction de rayons X des revêtements élaborés à 0,5 Pa.....	111
Figure III-12. Diagramme de diffraction des rayons X pour des revêtements élaborés à 0,3 Pa. ....	112
Figure III-13. Faciès de ruptures obtenues par MEB des revêtements de Fe-Si pour différentes teneurs en Si élaborés à 0,3 Pa. ....	113
Figure III-14. Cycles d'hystérésis d'un revêtement en fer pur : (a) champ magnétique appliqué parallèlement au substrat et (b) perpendiculaire au substrat. ....	114
Figure III-15. Cycles d'hystérésis des films Fe-Si élaborés à 0,5 Pa. Mesures sous un champ magnétique parallèle au plan du substrat. ....	115
Figure III-16. Cycles d'hystérésis des films Fe-Si élaborés à 0,3 Pa. Mesures sous un champ magnétique parallèle au plan du substrat. ....	116
Figure III-17. Evolution du champ coercitif en fonction de la teneur en Si dans les revêtements à base de Fer élaborés à 0,5 Pa et à 0,3 Pa. ....	117
Figure III-18 Evolution de la résistivité des revêtements Fe <sub>2</sub> Si élaborés à 0,3 Pa en fonction de la teneur en Si. ....	118
Figure III-19. Evolution de l'épaisseur en fonction de la distance à l'axe du porte substrat. .	120
Figure III-20. Evolution de la composition en fonction de la distance à l'axe du substrat pour un échantillon de Fe-Si élaboré par co-pulvérisation. ....	121
Figure III-21. Evolution de la composition et de l'épaisseur des revêtements en fonction du rapport des puissances injectées sur les cibles en Fe et la cible en Si polarisée avec le générateur de courant continu Advanced Energy Pinnacle. ....	122
Figure III-22. Evolution de la composition des revêtements élaborés en fonction du rapport des puissances injectées sur les cibles en Fe et la cible en Si polarisée avec le générateur Advanced Energy MDX-500. ....	123
Figure III-23. Diagrammes de diffraction des rayons X des revêtements élaborés par co-pulvérisation à 0,5 Pa. ....	125
Figure III-24. Diagrammes de diffraction des rayons X des revêtements, cristallisés, élaborés par co-pulvérisation à 0,5 Pa. ....	126
Figure III-25. Evolution du paramètre de maille des revêtements élaborés par co-pulvérisation à 0,5 Pa. ....	126
Figure III-26. Cycles d'hystérésis des revêtements cristallisés. ....	128
Figure III-27. Cycles d'hystérésis des revêtements amorphes. ....	129
Figure III-28. Evolution du champ coercitif en fonction de la teneur en Si dans les revêtements élaborés par co-pulvérisation. ....	131
Figure III-29. Evolution de la constante magnéto-strictive en fonction de la teneur en Si dans l'alliage Fe-Si, d'après [45]. ....	132
Figure III-30. Evolution de la constante magnéto-cristalline en fonction de la teneur en Si dans l'alliage Fe-Si, d'après [53]. ....	132
Figure III-31. Evolution de la résistivité des revêtements FeSi élaborés par co-pulvérisation. ....	134
Figure III-32. Superposition des valeurs mesurées de la résistivité pour les échantillons élaborés par pulvérisation d'une cible composite et par co-pulvérisation. ....	135
Figure III-33. Domaines magnétiques observés par effet Kerr magnéto-optique. ....	136

Figure IV-1. (a) Orientation optimale des domaines magnétiques par rapport au sens de circulation du courant électrique; (b) Schéma représentatif d'un capteur à MI en structure sandwich où $l$ est la largeur du matériau conducteur et $L$ la largeur totale du capteur..	142
Figure IV-2. Schéma explicatif du positionnement de l'échantillon sur le porte substrat et des zones d'observation des domaines magnétiques.....	143
Figure IV-3. Photographies des domaines magnétiques observés par effet Kerr en fonction de la distance à l'axe du porte substrat pour un échantillon Fe-Si contenant 24 at.% de Si. ....	144
Figure IV-4. Reconstitution des domaines magnétiques sur un échantillon le long de l'axe radial du porte substrat. ....	145
Figure IV-5. Différentes étapes nécessaires à la réalisation d'un capteur MI. ....	146
Figure IV-6. Schéma représentatif de la disposition des différents substrats pour l'élaboration des capteurs. ....	147
Figure IV-7. Cellule de positionnement et de connexion des capteurs.....	148
Figure IV-8. Schéma explicatif des dimensions latérales et de l'orientation des domaines magnétiques dans les capteurs caractérisés. ....	149
Figure IV-9. Courbes de caractérisation du capteur Type 1. A: Variation relative d'impédance pour différentes fréquences en fonction du champ externe appliqué en mode TMI. B: Variation relative d'impédance pour différentes fréquences en fonction de champ externe appliqué en mode TMI. C: Variation relative maximum en fonction de la fréquence pour les modes TMI et LMI. D: Dimensions latérales du capteur et orientation des domaines magnétiques. ....	151
Figure IV-10. Courbes de caractérisation du capteur Type 2. A: Variation relative d'impédance à 5 MHz pour les modes TMI et LMI. B: Variation relative d'impédance à 10 MHz pour les modes TMI et LMI. C: Dimensions latérales du capteur et orientation des domaines magnétiques. ....	152
Figure IV-11. Courbes de caractérisation du capteur Type 3. A: Variation relative d'impédance pour différentes fréquences en fonction du champ externe appliqué en mode TMI. B: Variation relative maximum en fonction de la fréquence pour le mode TMI. C: Dimensions latérales du capteur et orientation des domaines magnétiques.....	154
Figure IV-12. Histogramme de classification des capteurs en fonction de leur type et du mode d'application du champ magnétique externe. ....	155

# Liste des tableaux

Tableau 1. Principales grandeurs du magnétisme exprimé dans le système SI et dans le système mécanique CGS. ....	16
Tableau 2. Récapitulatif de la forme et des propriétés des alliages FeSi en fonction des applications visées. ....	55
Tableau 3. Valeur de la tension cathodique pour différentes pressions de gaz plasmagène.	100
Tableau 4. Principaux paramètres d'élaboration dans le cas de la pulvérisation d'une cible composite .....	104
Tableau 5. Récapitulatif des principales conditions opératoires .....	105



# Equations et unités du magnétisme

Dans ce qui suit, sont présentées les principales équations et unités du magnétisme utilisées dans ce manuscrit. Dans les ouvrages scientifiques, en fonction du domaine, les systèmes CGS ou SI sont tous les deux utilisés pour exprimer des grandeurs relatives au magnétisme.

C'est le système SI qui a été retenu dans la rédaction de ce manuscrit. Un récapitulatif des équations du magnétisme et des facteurs de conversion entre les deux systèmes est proposé.

## ▪ Système SI

L'induction magnétique  $B$  dans un matériau soumis à un champ extérieur  $H$ , s'écrit en fonction du champ  $H$  et de l'aimantation  $M$  comme suit :

$$B = \mu_0(H + M) \quad (1)$$

Où  $\mu_0$  est la perméabilité du vide et est égale à  $4\pi \cdot 10^{-7}$  H/m

Dans le cas particulier du vide  $B$  s'écrit :

$$B = \mu_0 H \quad (2)$$

On définit la susceptibilité magnétique  $\chi$  par le rapport de l'aimantation  $M$  sur le champ  $H$ .

$$\chi = \frac{M}{H} \Rightarrow M = \chi H \quad (3)$$

En injectant (3) dans (1) on obtient :

$$B = \mu_0(H + \chi H) = \mu_0(1 + \chi)H = \mu_0 \mu_r H \quad (4)$$

où  $\mu_r = 1 + \chi$  est la perméabilité relative du matériau.

Notons que l'équation (4) ne fait pas apparaître le *facteur démagnétisant*  $N$  (voir §-I.1.1.2). Ce champ est produit par les moments magnétiques existants dans le matériau et s'oppose au champ extérieur.

L'équation (4) s'écrit donc

$$B = \mu_0(H_i + M) \quad (5)$$

où  $H_i$  est le champ effectif dans le matériau, défini par

$$H_i = H_a - NM \quad (6)$$

où  $H_a$  est le champ magnétique appliqué et  $N$  dépend de la géométrie du matériau.

L'équation (5) peut donc s'écrire :

$$B = \mu_0(H_a - NM + M) = \mu_0(H_a + (1 - N)M) \quad (7)$$

#### ▪ **Système CGS**

Dans le système CGS,  $B$  s'écrit

$$B = H + 4\pi M \quad (8)$$

Cette différence dans la définition de l'induction  $B$  par rapport au système SI peut parfois être source de confusion dans la lecture des résultats expérimentaux. Le *Tableau 1* récapitule les unités des principales grandeurs utilisées en magnétisme ainsi que les facteurs de conversion entre le système international et le système CGS.

*Tableau 1. Principales grandeurs du magnétisme exprimé dans le système SI et dans le système mécanique CGS.*

Grandeur	Symbole	SI	CGS
Champ magnétique	H	1 A m <sup>-1</sup>	= 10 <sup>3</sup> /4π Oe
Induction magnétique	B	1 T	= 10 <sup>4</sup> G
Aimantation	M	1 A m <sup>-1</sup>	= 10 <sup>-3</sup> Oe
Moment magnétique	μ	1 A m <sup>2</sup>	= 10 <sup>-3</sup> erg <sup>-1</sup>
Susceptibilité	X	Sans dimension	Sans dimension

# Introduction générale

L'alliage Fe-Si coté riche en Fe est largement utilisé dans industrie pour ses propriétés ferromagnétiques et électriques ainsi que sont faible coût comparée à d'autres alliages ferromagnétiques (à base de Co ou de Ni par exemple). En effet, cet alliage allie un faible champ coercitif à une résistivité élevée. C'est donc un bon candidat, tant pour les applications basses fréquences, que pour les applications à moyennes voire hautes fréquences. D'autant qu'à l'état amorphe son champ coercitif décroît de manière très importante et en fait un matériau extrêmement doux, particulièrement sensible aux champs magnétiques extérieurs. C'est pourquoi l'utilisation de cet alliage est envisagée, entre autres, dans les dispositifs de capteurs de champs.

En plus des propriétés physiques particulièrement intéressantes de l'alliage Fe-Si le choix de ce matériau dans notre étude à été également dicté par le souci de continuer sur une thématique abordé précédemment dans la structure d'accueil (le laboratoire LERMPS), a savoir la thèse de Mr Cherigui qui porte sur les matériaux ferromagnétiques (parmi lesquelles l'alliage Fe-Si) réalisés par projection thermique.

L'alliage Fe-Si produit sous forme de tôles entre dans la fabrication des transformateurs électriques, des machines tournantes, et autres dispositifs de grande taille. Sous forme de rubans, et de revêtements épais projetés, il est utilisé pour le blindage magnétique et dans divers appareillages de plus faible dimension. Cependant, son utilisation dans les dispositifs types MEMS nécessite l'utilisation de techniques adaptées pour son élaboration. Parmi les différentes techniques existantes, notre choix s'est porté sur la pulvérisation cathodique magnétron. En effet, cette technique permet de revêtir des objets de dimensions micrométriques avec des revêtements dont l'épaisseur peut varier de quelques nanomètres à environ 10  $\mu\text{m}$ . De plus, cette technique largement répandue dans le milieu industriel offre, en général, des résultats reproductibles.

L'objectif premier de ce travail de thèse est de mettre en place un dispositif expérimental adapté à la pulvérisation de matériaux ferromagnétiques tels que le fer. Ce dispositif, une fois optimisé, devra permettre l'élaboration de revêtements Fe-Si avec des teneurs en Si allant de 0 à 50 at.% à des vitesses de croissance suffisamment élevées (> 250 nm/H). Les conditions expérimentales (telles que la pression, la polarisation des cibles et du substrat et la distance de tir) devront être ajustées afin d'obtenir les revêtements les plus

homogènes possible en épaisseur et en composition. De plus, une attention particulière sera apportée aux problèmes liés à l'usure inhomogène dans le temps de la cible en Fe, et un protocole expérimental sera proposé afin de limiter les conséquences de ces dérives sur propriétés des films réalisés.

Le second objectif sera de réaliser différentes caractérisations (structurales, magnétiques et électriques) sur les alliages élaborés afin de corréler les propriétés magnétiques et structurales aux paramètres d'élaboration.

Enfin, dans le but d'apporter un aspect applicatif à notre recherche nous nous sommes attelés à concevoir une application à nos revêtements. Notre choix s'est porté sur les capteurs à magnéto-impédance. En effet, au moins un revêtement, parmi ceux que nous avons élaboré, possède les propriétés adéquates pour ce type d'application. Un prototype de capteur a été conçu en laboratoire et a été testé.

Le rapport de thèse est structuré comme suit:

Le premier chapitre est consacré à une étude bibliographique ainsi qu'à des rappels sur le magnétisme, la pulvérisation cathodique magnétron et la magnéto-impédance.

Le second chapitre décrit le protocole expérimental ainsi que les dispositifs de caractérisation que nous avons utilisé dans notre étude.

Dans le troisième chapitre nous avons présenté les résultats expérimentaux obtenus ainsi que leurs interprétations.

Enfin, le quatrième chapitre est consacré à des travaux de réalisation de plusieurs capteurs à magnéto-impédance à partir des revêtements élaborées et caractérisés dans le troisième chapitre.

## Chapitre I. Rappels et synthèse bibliographique



## Introduction

Ce chapitre est divisé en quatre parties. La première partie traite du magnétisme en général et du ferromagnétisme en particulier. On y retrouve les notions nécessaires à la compréhension des résultats d'analyses magnétiques exposés dans la suite du travail. Dans la seconde partie, un bref rappel des techniques d'élaboration de couches minces par PVD est effectué et une synthèse bibliographique consacrée à l'élaboration de matériaux ferromagnétiques par l'une de ces techniques est présentée. La troisième partie de ce chapitre est dédiée à l'étude bibliographique de l'alliage Fe-Si, et particulièrement aux travaux menés sur les alliages Fe-Si élaborés par pulvérisation cathodique magnétron. Enfin, la magnéto-impédance est abordée dans la quatrième partie au travers d'une synthèse bibliographique axée sur les capteurs à base de couches minces.

### I.1. Magnétisme

Depuis la découverte des aimants dans la nature jusqu'aux expériences de confinement magnétique les plus récentes, le magnétisme n'a jamais cessé de fasciner et d'exciter la curiosité des scientifiques. La recherche aussi bien fondamentale qu'appliquée sur le magnétisme est, encore aujourd'hui, parmi les plus dynamiques. Notons, parmi les avancées les plus récentes, le développement d'appareils d'imagerie médicale à résonance magnétique (IRM) [1], la réalisation de capteurs de champs magnétiques de dimensions nanométriques basés sur la magnéto-impédance géante (GMI) [2-5] et les travaux menés par Grünberg et Fert sur la magnéto-résistance géante (GMR) pour lesquels ceux-ci ont obtenu le prix Nobel de Physique en 2007 [6].

Si aujourd'hui de grands progrès ont été réalisés dans la compréhension du magnétisme, il reste encore bien des questions en suspens, et bien des applications basées sur des effets magnétiques à inventer.

Avant de décrire les principaux types de matériaux magnétiques et particulièrement les matériaux ferromagnétiques, rappelons brièvement l'origine du magnétisme dans la matière (une discussion plus avancée se trouve dans l'annexe 1).

Le magnétisme macroscopique de la matière est intimement lié aux moments magnétiques des atomes la constituant.

De la même manière, le magnétisme atomique est lié à celui de ses constituants (électrons, neutrons, protons). En pratique, les moments magnétiques électroniques sont les principaux contributeurs au magnétisme atomique [7,8]. Le moment magnétique électronique englobe deux moments d'origines différentes: le moment magnétique orbital dû au mouvement de la charge électrique portée par l'électron au cours de sa révolution autour du noyau, et le moment magnétique de spin qui est d'origine quantique [7-9].

Dans le cas d'un atome à plusieurs électrons, c'est la somme des moments magnétiques électroniques qui détermine le moment magnétique atomique (qui peut être nul si les moments électroniques s'annulent). C'est l'interaction entre ces moments magnétiques atomiques qui détermine le magnétisme de la matière [10].

Ainsi, différents types de magnétisme dans la matière sont identifiés à ce jour :

- Le ferromagnétisme
- Le diamagnétisme
- Le paramagnétisme
- L'antiferromagnétisme
- Le ferrimagnétisme
- L'anti-ferrimagnétisme
- Le super-paramagnétisme

Les matériaux ferromagnétiques, ferrimagnétiques et super-paramagnétiques sont présents dans de nombreux domaines de l'électronique et l'électrotechnique, tandis que les matériaux diamagnétiques et paramagnétiques présentent peu d'intérêt d'un point de vue applicatif en raison d'une interaction faible avec les champs magnétiques externes.

Nous allons, dans les paragraphes suivants, nous pencher particulièrement sur le ferromagnétisme qui est le type de magnétisme qui caractérise les revêtements élaborées par la suite.

### I.1.1. Ferromagnétisme

Dans un matériau ferromagnétique, chaque moment magnétique atomique tend à s'aligner avec le moment magnétique atomique voisin. Il résulte de cette interaction de proche en proche un ordre à longue distance - Figure I-1. Le phénomène qui régit l'interaction entre moments magnétiques voisins est appelé *interaction d'échange d'Heisenberg* [11,9,12].

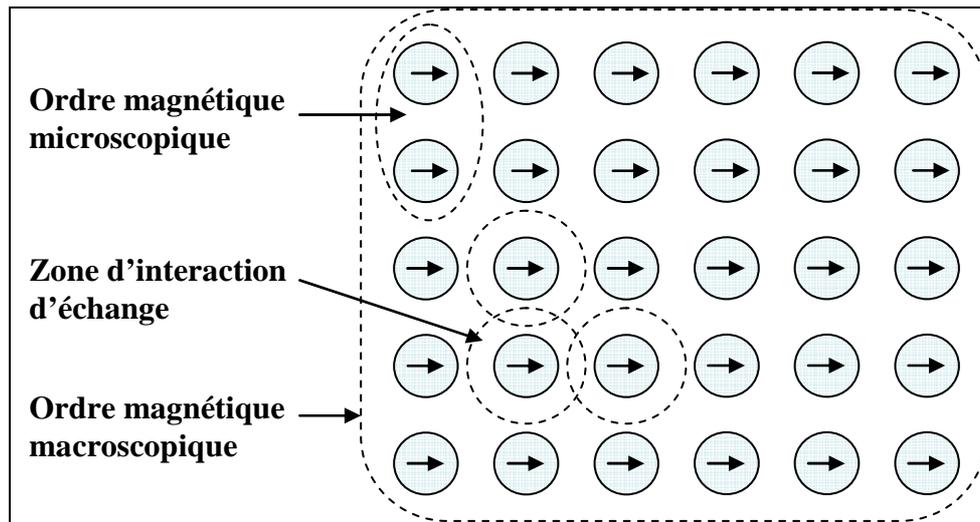


Figure I-1. Effet de l'interaction d'échange à courte portée sur l'ordre magnétique macroscopique dans les matériaux ferromagnétiques.

L'interaction d'échange agit à courte portée et concerne deux séries de matériaux :

- ✓ Les métaux de transition dont la couche 3d est partiellement remplie [13] :
  - Sc, Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu
- ✓ Les terres rares dont la couche 4f est partiellement remplie :
  - La, Ce, Pr, Nd, Pm, Sm, Eu , dites terre rares légères sont antiferromagnétiques (voir § I.1.3.3) ;
  - Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb , dites terre rares lourdes sont ferromagnétiques.

Bien que l'on décompte dans cette liste une dizaine de matériaux ferromagnétiques, seuls trois d'entre eux (Fe, Ni, Co) conservent leurs propriétés ferromagnétiques à température ambiante lorsqu'ils sont purs. Cependant, il est possible d'élaborer un grand nombre d'alliages ferromagnétiques à partir de ces matériaux.

En fonction de l'application visée, il est possible d'utiliser différents matériaux ferromagnétiques. Le choix d'un matériau peut être effectué en se référant à son cycle d'hystérésis.

#### I.1.1.1. Cycle d'hystérésis

Le cycle d'hystérésis représente la carte d'identité du matériau ferromagnétique, il représente l'aimantation du matériau en fonction du champ magnétique externe qui lui est appliqué - Figure I-2.

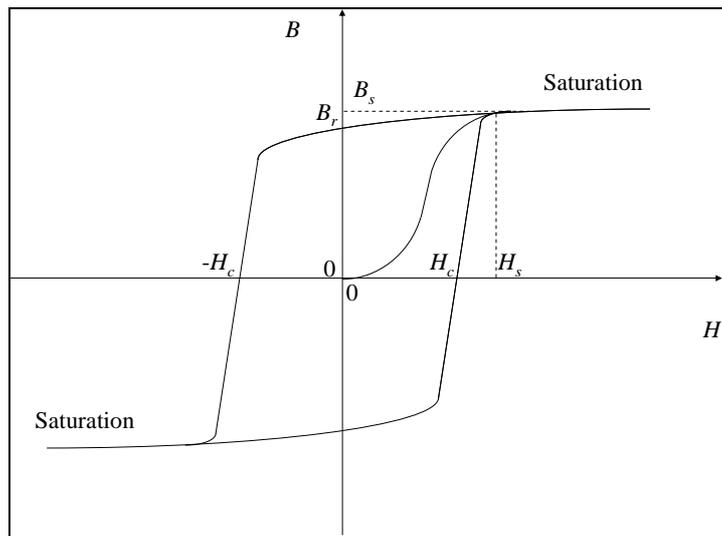


Figure I-2. Cycle d'hystérésis caractéristique d'un matériau ferromagnétique.

Sur la Figure I-2,  $B$  représente l'induction magnétique dans le matériau et  $H$  le champ magnétique extérieur appliqué.

Les principales caractéristiques d'un cycle d'hystérésis sont :

- La courbe de première aimantation : permet d'accéder à la perméabilité relative initiale du matériau  $B = \mu_r H$
- L'induction à saturation  $B_s$  : traduit la capacité du matériau à canaliser une densité plus ou moins élevée de flux extérieur
- Le champ magnétique de saturation  $H_s$  : c'est le champ magnétique minimum nécessaire à la saturation du matériau
- L'induction rémanente  $B_r$  : c'est la valeur d'induction mesurée après saturation à champ nul.
- Le champ coercitif  $H_c$  : c'est la valeur du champ extérieur qu'il est nécessaire d'appliquer pour ramener l'induction à une valeur nulle dans le matériau après saturation.
- Niveau de pertes : l'aire sous la courbe d'hystérésis permet de mesurer les pertes magnétiques statiques, dans le cas de l'application d'un champ extérieur quasi

statique, et dynamiques, dans le cas d'un champ magnétique appliqué à une fréquence donnée.

Nous venons de voir quelles sont les valeurs mesurables grâce au cycle d'hystérésis. Il convient, cependant, à chaque fois que l'on présente un cycle d'hystérésis, de préciser dans quelles conditions celui-ci a été obtenu. En effet, si un échantillon possède une anisotropie magnétique, le tracé du cycle d'hystérésis peut être fortement modifié en fonction de la direction d'application du champ magnétique externe.

L'anisotropie magnétique dans un matériau peut avoir plusieurs origines. Les anisotropies de forme, magnéto-cristalline et magnéto-strictive, en sont les principales.

### I.1.1.2. Anisotropie de forme et champ démagnétisant

L'anisotropie de forme traduit l'influence de la forme d'un matériau ferromagnétique sur la direction de son aimantation [7,8]. Par analogie avec les dipôles électriques et le champ électrique dépolarisant, on définit, en magnétisme, le champ démagnétisant  $H_d$  comme un champ magnétique s'opposant à l'aimantation du matériau. Celui-ci s'exprime sous forme d'un tenseur à trois dimensions. Sans entrer dans les détails, il suffit de remarquer que le champ démagnétisant joue un rôle important dans l'aimantation des matériaux ferromagnétiques, particulièrement des couches minces. En effet, dans un film mince la composante de  $H_d$  perpendiculaire au plan du film est non nulle tandis que celles contenues dans le plan du film sont nulles. En conséquence, l'aimantation s'oriente préférentiellement dans le plan du film [14]. Ainsi, la forme géométrique des matériaux ferromagnétiques doit être prise en compte lors de leur fabrication dans l'optique d'obtenir une aimantation orientée d'une manière particulière.

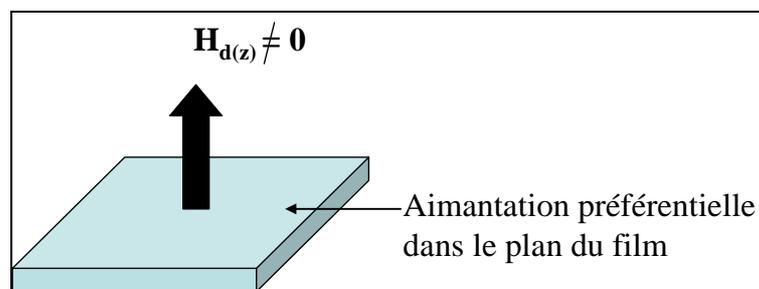


Figure I-3. Influence de la forme d'un matériau ferromagnétique sur l'orientation de l'aimantation.

I.1.1.3. Anisotropie magnéto-cristalline

L'anisotropie magnéto-cristalline exprime le rapport existant entre le réseau cristallin et l'aimantation dans un solide ferromagnétique [15,7,8]. Dans un monocristal les moments magnétiques des atomes s'orientent préférentiellement selon un axe dit, de *facile aimantation*. Cette configuration minimise l'énergie d'interaction entre les moments magnétiques et le réseau cristallin d'ions positifs. L'axe selon lequel cette énergie d'interaction est la plus élevée correspond à l'axe de *difficile aimantation*.

La grandeur qui quantifie cette anisotropie est *le champ d'anisotropie magnéto-cristalline*  $H_A$ . C'est le champ nécessaire pour faire basculer l'aimantation dans le cristal de la direction de facile aimantation à la direction de difficile aimantation. Cette anisotropie peut être importante pour certains ferromagnétiques tels que le fer et le cobalt.

Comme le montre la *Figure I-4*, le champ extérieur nécessaire pour atteindre la saturation, et donc l'énergie à fournir, est différent selon que le champ soit parallèle à l'axe de facile aimantation ou perpendiculaire à celui-ci.

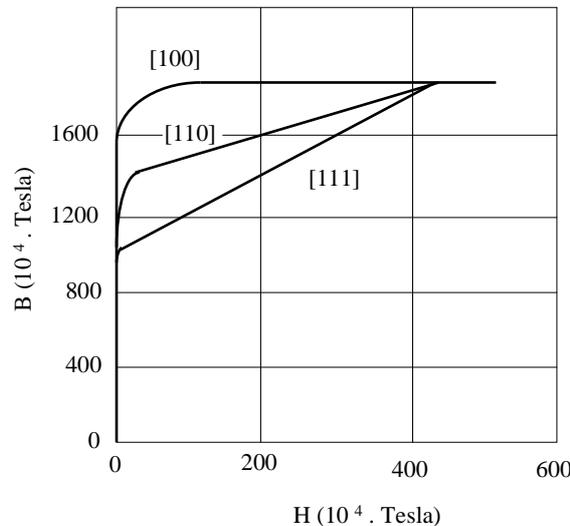


Figure I-4. Anisotropie magnétique d'un monocristal de Fer d'après [7].

On exprime l'énergie nécessaire pour amener, à partir d'un état désaimanté, l'ensemble des moments magnétiques dans la direction du champ par :

$$W_k = K_1(\alpha_1^2\alpha_2^2 + \alpha_2^2\alpha_3^2 + \alpha_1^2\alpha_3^2) + K_2(\alpha_1^2\alpha_2^2\alpha_3^2 + \dots)$$

Où  $K_1$ ,  $K_2$  sont des constantes d'anisotropie de premier et second ordre (on se limite dans la plus part des cas au premier ordre) ;

$\alpha_1$  ,  $\alpha_2$  ,  $\alpha_3$  : cosinus directeurs de l'aimantation par rapport à l'axe du cristal.

Pour le Fe :  $K_1 = 4,5 \cdot 10^5 \text{ J/m}^3$

Pour le Co :  $K_1 = 4,5 \cdot 10^5 \text{ J/m}^3$

Pour le Ni :  $K_1 = 4,5 \cdot 10^5 \text{ J/m}^3$

Pour le Sm Co :  $K_1 = 10^7 \text{ J/m}^3$

Souvent pour  $K_1 > 0$  l'axe de facile aimantation est l'axe c du cristal [8].

#### I.1.1.4. Anisotropie magnéto-strictive

Lorsqu'un matériau ferromagnétique est aimanté, une déformation linéaire peut survenir. Elle s'effectue à volume constant. C'est la magnéto-striction linéaire.

Ce phénomène est lié à l'interaction entre le réseau cristallin et les orbitales électroniques dont les orientations sont modifiées par le champ extérieur. Si la magnéto-striction peut être importante dans les matériaux ferromagnétiques de structure uni-axiale tels que les terres rares, elle reste généralement faible comparativement à l'anisotropie magnéto-cristalline dans les matériaux qui ont une structure cubique.

Notons qu'en appliquant une contrainte à un matériau ferromagnétique, il est possible de créer une anisotropie de magnéto-striction en favorisant (via la contrainte appliquée) une direction de facile aimantation différente de celle obtenue dans le cas relaxé. C'est le cas du Ni où une contrainte de  $10^{-8} \text{ N/m}^2$  suffit à modifier l'axe de facile aimantation [16].

Toutes les énergies mises en jeu dans les anisotropies magnétiques citées précédemment entrent également en jeu dans l'établissement des orientations possibles de l'aimantation dans un matériau. En définitif, la configuration permettant de minimiser le bilan énergétique est adoptée. D'un point de vue macroscopique, les domaines magnétiques traduisent l'équilibre magnétique microscopique d'un matériau ferromagnétique.

#### I.1.1.5. Domaines magnétiques et parois de Bloch

Un *domaine magnétique* (appelé également domaine de Weiss) est un espace dans lequel tous les moments magnétiques sont orientés dans la même direction (Voir Figure I-5). Deux domaines voisins sont séparés par une paroi appelée *paroi de Bloch*. Celle-ci assure une transition graduelle de l'aimantation d'un domaine à l'autre [7,17] (Voir Figure I-6).

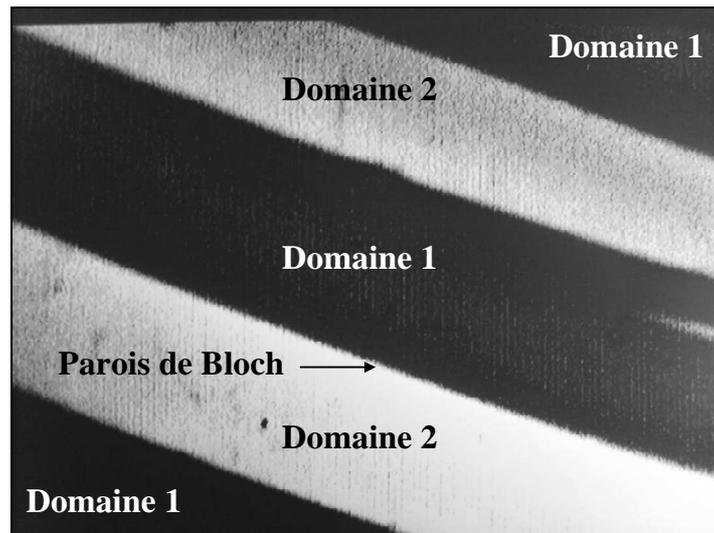


Figure I-5. Image obtenue par microscopie à effet Kerr de domaines magnétiques dans un alliage Fe-Si.

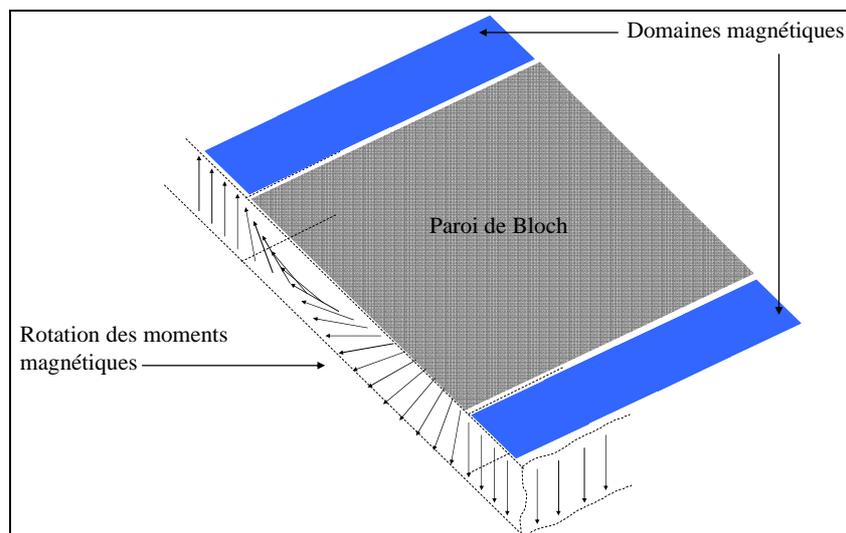


Figure I-6. Schéma d'une paroi de Bloch séparant deux domaines magnétiques adjacents.

Un matériau ferromagnétique possède un moment magnétique macroscopique. Dans le cas idéal d'un monocristal, tous les moments magnétiques ont la possibilité de s'orienter dans la même direction et de former un domaine unique. Cependant, cette configuration est coûteuse en énergie et une subdivision en plusieurs domaines magnétiques lui est préférable énergétiquement (voir Figure I-7).

La limite à cette subdivision vient de l'énergie mise en jeu pour la création des parois de Bloch. En effet, les moments magnétiques n'étant, dans une paroi de Bloch, ni parallèles entre

eux ni parallèles à l'axe de facile aimantation, le maintien de cette zone implique une dépense d'énergie d'échange [7].

Si les axes de facile aimantation sont multiples, la rotation des moments magnétiques entre deux domaines ne se fait plus obligatoirement à  $180^\circ$ . De plus si l'anisotropie cristalline est suffisamment faible, des domaines parallèles aux surfaces apparaissent. Ils minimisent l'énergie dipolaire en accroissant l'énergie d'anisotropie. Ce sont les domaines de fermeture [7,16,17].

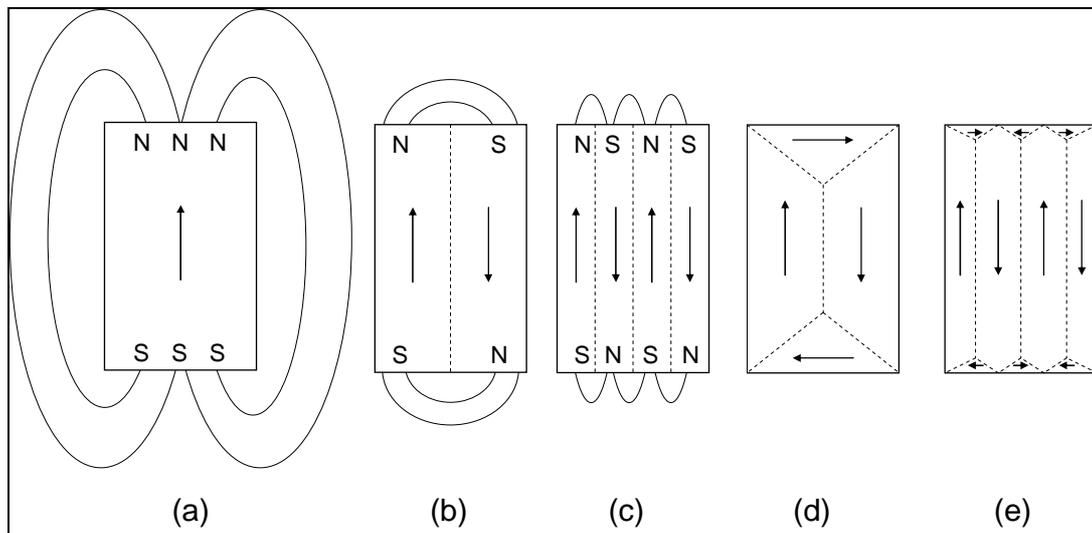


Figure I-7. Circulation des lignes de champs dans un monocristal ferromagnétique en fonction de la forme des domaines de Weiss.

Si les dimensions d'un matériau ferromagnétique sont de l'ordre de sa paroi de Bloch, l'existence de celle-ci n'est énergétiquement plus favorable, et le matériau restera saturé même sous champ extérieur nul. Il devient *monodomaine* [16,9,12].

#### I.1.1.6. Température de Curie

C'est la température pour laquelle l'aimantation macroscopique d'un matériau ferromagnétique devient nulle [15,16]. En effet, au delà d'une certaine température appelée température de Curie ( $T_c$ ), l'énergie thermique des électrons devient supérieure à la somme des énergies d'échange et dipolaire. Il en résulte une distribution aléatoire des moments magnétiques atomiques. Le matériau ferromagnétique se comporte alors comme un matériau paramagnétique. La température de Curie du Fer est de  $769^\circ\text{C}$ .

### I.1.2. Notion de matériaux ferromagnétiques doux et durs

On parle de matériaux magnétiques doux lorsque le champ coercitif est inférieur à 1000 A/m (environ 12,5 G). Lorsque le champ coercitif est plus élevé, les matériaux sont dits matériaux magnétiques durs [15,18].

La Figure I-8 présente deux cycles d'hystérésis à la même échelle. Le cycle le plus large est caractéristique d'un alliage magnétiquement dur tandis que le plus étroit est caractéristique d'un alliage magnétiquement doux.

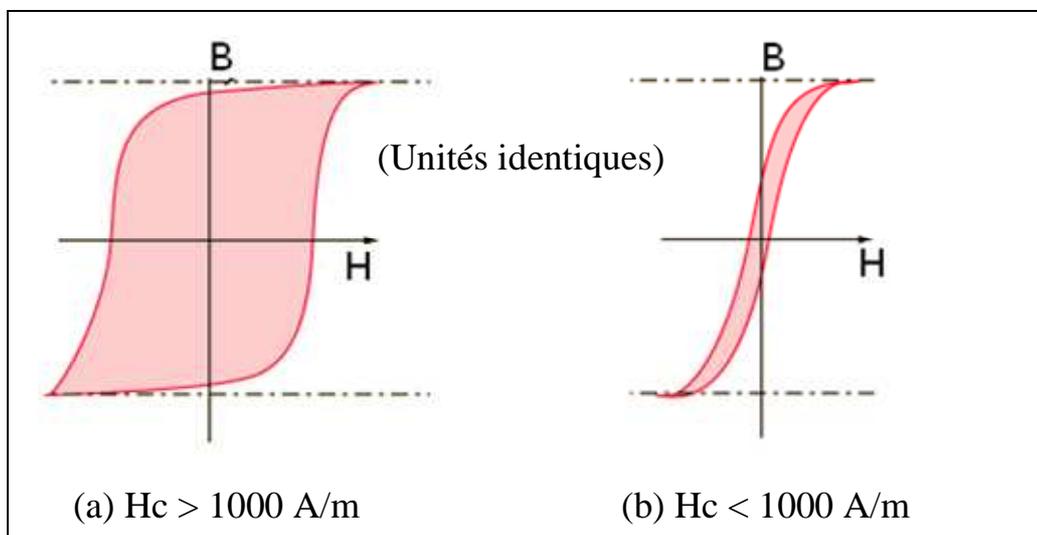


Figure I-8. Cycles caractéristiques des matériaux ferromagnétiques (a) durs et (b) doux.

### I.1.3. Autres types de magnétisme

#### I.1.3.1. Matériaux diamagnétiques

Le moment magnétique atomique dans un matériau diamagnétique est nul. L'application d'un champ magnétique extérieur à un matériau diamagnétique modifie le mouvement des électrons de ce dernier sur les orbitales électroniques. Il en résulte l'apparition d'une faible aimantation opposée au champ extérieur (Voir Figure I-9). Le diamagnétisme est un

phénomène de très faible intensité qui existe dans tous les matériaux, et qui cesse sitôt que l'on n'applique plus de champ extérieur.

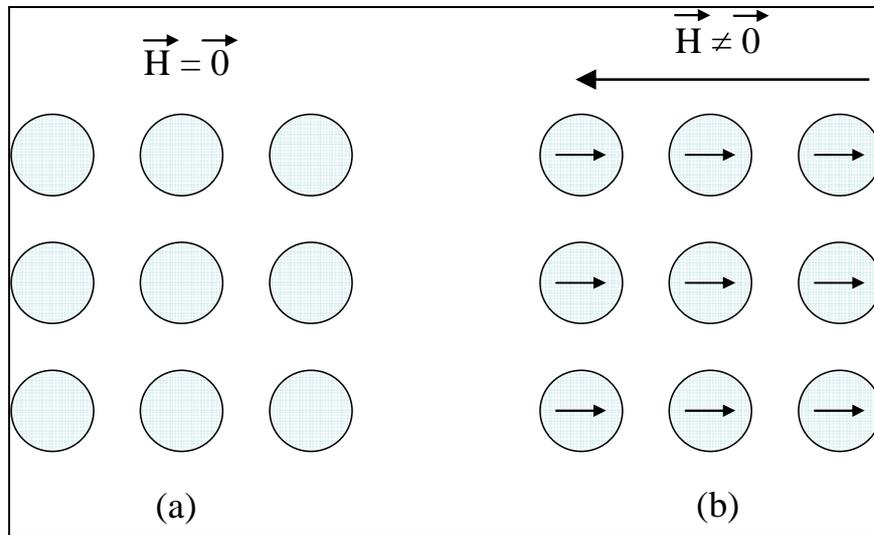


Figure I-9. Schéma explicatif du diamagnétisme à l'échelle microscopique.

### I.1.3.2. Paramagnétisme

Certains matériaux ne possèdent pas de moment magnétique total, bien que chaque atome possède un moment magnétique individuel. Les moments magnétiques des atomes s'additionnent de manière à ce que la résultante soit nulle *Figure I-10-(a)*.

Si l'on applique à un tel matériau un champ magnétique extérieur, les moments magnétiques des atomes s'alignent dans la direction du champ extérieur à le renforcent *Figure I-10-(b)*. Dans les matériaux paramagnétiques, les moments magnétiques élémentaires s'orientent indépendamment les uns des autres. Le paramagnétisme, comme le diamagnétisme, est un phénomène dépendant de l'action d'un champ extérieur, qui cesse avec l'annulation de celui-ci.

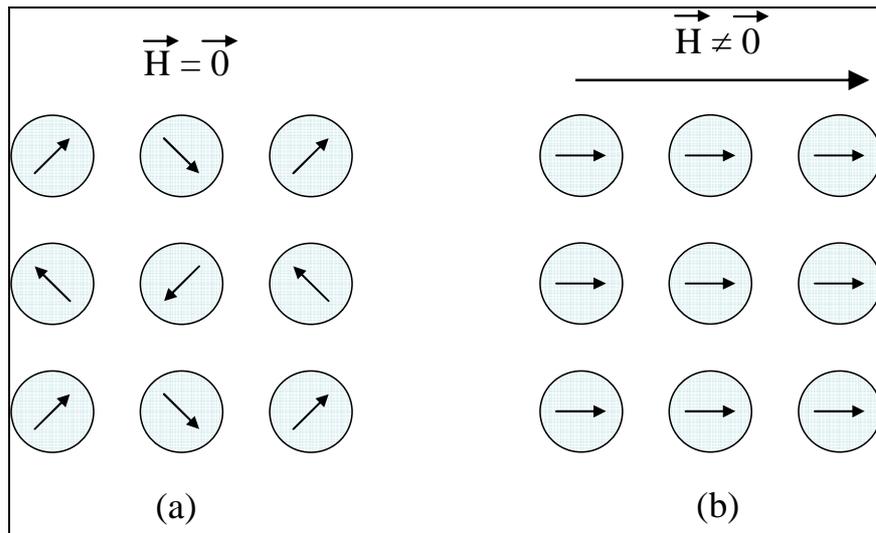


Figure I-10. Schéma explicatif du paramagnétisme.

#### I.1.3.3. Antiferromagnétisme

Les matériaux antiferromagnétiques possèdent deux sous-réseaux dont les orientations magnétiques sont antagonistes. La compensation de ces moments induit un moment magnétique macroscopique nul. Les matériaux antiferromagnétiques, du fait de l'absence d'une aimantation spontanée, présentent peu d'intérêt dans la plupart des applications.

#### I.1.3.4. Ferrimagnétisme

Contrairement aux matériaux antiferromagnétiques, la compensation des moments magnétiques dans les matériaux ferrimagnétiques n'est pas complète. Il subsiste donc une aimantation spontanée. Elle est, cependant, plus faible que celle observée dans le cas des matériaux ferromagnétiques. Les matériaux ferrimagnétiques possèdent en général une température de Curie plus basse que celle des ferromagnétiques, mais suffisante dans de nombreuses applications. Leur résistivité élevée en fait des candidats particulièrement performants pour les applications hautes fréquences.

Après ce rappel de notions de magnétisme, nous allons nous intéresser à la technique utilisée pour mettre à l'échelle les films minces magnétiques. Cette technique (la pulvérisation cathodique magnétron) fait partie d'un ensemble de techniques connu sous le nom de technique de dépôt physique en phase vapeur.



## I.2. Dépôts physiques en phase vapeur [19-30]

Les techniques de dépôts physiques en phase vapeur, appelés PVD (en anglais : Physical Vapour Deposition), sont des techniques d'élaboration de couches minces.

Elles peuvent être divisées en plusieurs parties selon le procédé mis à profit pour l'obtention de la couche mince :

- ✓ La pulvérisation cathodique et sa variante, la pulvérisation cathodique magnétron
- ✓ L'évaporation par faisceau d'électron
- ✓ Le bombardement ionique
- ✓ Le dépôt par arc

Dans toutes ces techniques le principe de base est d'élaborer une couche mince à partir d'un matériau massif (voir Figure I-11). Le procédé comporte trois éléments principaux: Une *cible*, composée du matériau à déposer sous sa forme solide, un *substrat* qui est le matériau à revêtir, et la *couche mince* obtenue par transport de la matière de la cible au substrat.

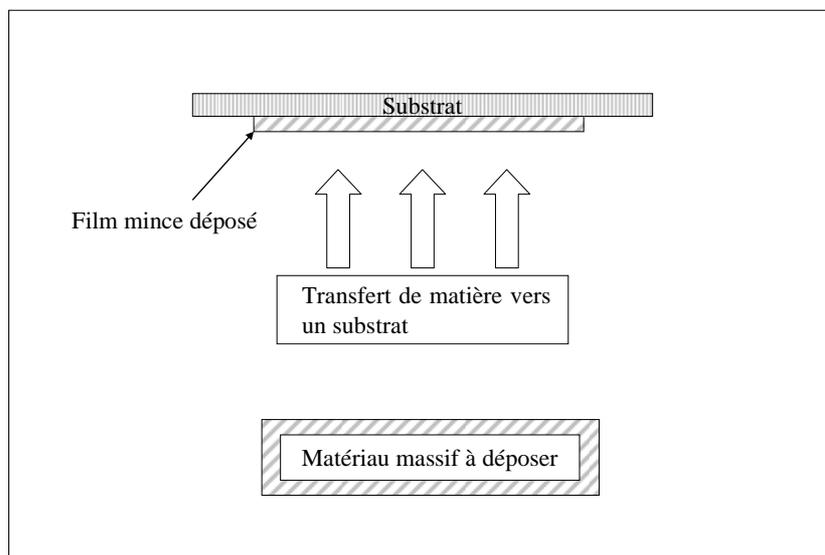


Figure I-11. Schéma de base de l'élaboration d'une couche mince par dépôt physique en phase vapeur.

Les techniques se différencient par le procédé qui permet d'arracher les atomes à déposer de la cible, ainsi que par la nature du milieu présent entre la cible et le substrat. L'utilisation de l'une ou l'autre de ces techniques est généralement conditionnée par

l'application visée, la nature du matériau à déposer, le coût, ainsi que la pureté et la qualité de la couche obtenue, et enfin la vitesse de dépôt souhaitée.

Dans cette partie nous allons nous intéresser plus particulièrement à la pulvérisation cathodique et sa variante la pulvérisation cathodique magnétron qui est la technique utilisée durant notre travail de thèse.

### I.2.1. La pulvérisation cathodique

La pulvérisation cathodique, est une technique de dépôt en couches minces. Les étapes de la formation d'une couche mince par pulvérisation cathodique sont :

1. La pulvérisation des espèces à déposer à partir d'une cible par bombardement ionique.
2. Le transport des espèces pulvérisées, sous forme de vapeur, vers le substrat
3. La condensation de la vapeur sur le substrat et la formation de la couche

La pulvérisation cathodique magnétron est une amélioration de la pulvérisation cathodique simple. Cette amélioration sera décrite en détail dans la section - § I.2.2.2.

Un réacteur de pulvérisation cathodique simple est schématisé sur la Figure I-12. Il est constitué de :

- ✓ Une enceinte de pulvérisation (E)
- ✓ Une cible constituée de l'élément ou de l'alliage à déposer, elle fait également office de cathode
- ✓ Un porte substrat sur lequel sont disposés les substrats à revêtir
- ✓ Un système de pompage destiné à abaisser la pression à l'intérieur de l'enceinte
- ✓ Un système d'injection de gaz destiné à contrôler la pression et la nature du ou des gaz présents dans l'enceinte
- ✓ Un générateur DC ou RF affecté à la cible, destiné à générer un plasma dans l'enceinte pour pulvériser la cible
- ✓ Un générateur DC ou RF affecté au porte substrat, destiné à décaper le substrat avant l'étape de pulvérisation et / ou à apporter de l'énergie au film mince durant sa croissance
- ✓ Un système de refroidissement affecté à la cible : Permet de préserver la cible d'un échauffement excessif durant sa pulvérisation

- ✓ Un dispositif de refroidissement ou de chauffage affecté au substrat : destiné à en contrôler la température durant la croissance des films
- ✓ Un cache amovible permettant une pré-pulvérisation de la cible

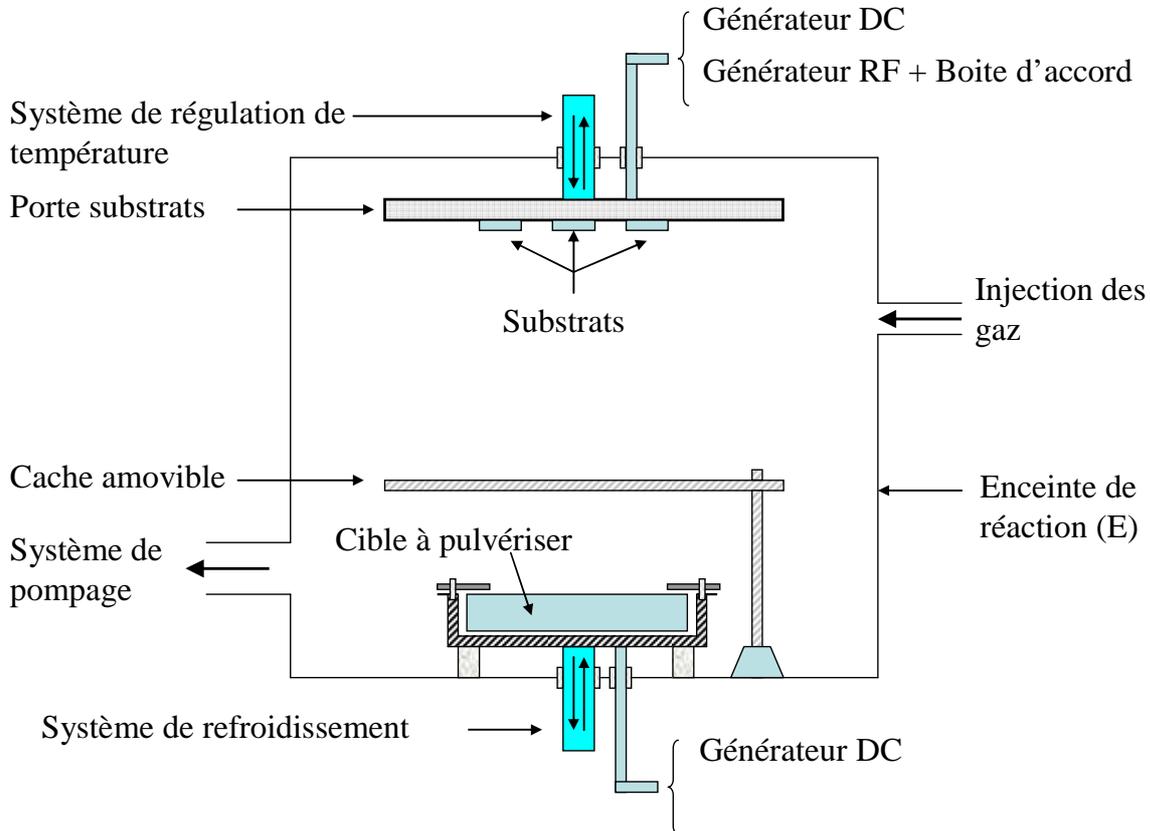


Figure I-12. Schéma du dispositif de pulvérisation cathodique diode.

#### I.2.1.1. Principe de fonctionnement

La pulvérisation cathodique est une technique d'élaboration de films minces sous pression réduite. Un gaz (généralement de l'argon) est introduit dans l'enceinte. Une décharge est produite par application d'une tension négative entre la cible (cathode) et le substrat (anode) ou la cible et l'enceinte du réacteur (voir § I.2.2.2). Cette décharge entraîne l'ionisation du gaz, on parle alors de plasma. Les ions du plasma sont accélérés vers la cible. Ils transfèrent, lors de collisions élastiques, leur énergie aux atomes de la cible. Ces derniers sont éjectés avec une énergie cinétique suffisante pour traverser le plasma et se condensent sur la première surface rencontrée, en particulier le substrat. Malgré des vitesses de croissance de films minces faibles et un coût élevé comparativement aux autres techniques PVD telles

que l'évaporation par faisceau d'électron, la pulvérisation cathodique est préférée dès lors que la qualité et la pureté des films revêtent une importance dans l'application visée.

Les principaux modes de polarisation d'une cible sont les suivants :

La polarisation en courant continu ou DC (Direct Current) : utilisée pour les matériaux conducteurs et semi conducteurs dopés. Les ions positifs du plasma sont attirés vers la cible polarisée négativement. Les générateurs DC permettent, en général, de fixer un courant constant, une tension constante (voir Figure I-13-a), ou une puissance constante. Le contrôle en courant est le plus souvent utilisé car c'est lui qui génère une décharge stable. Ce mode de polarisation permet les vitesses de dépôt les plus élevées puisque le flux pulvérisé est continu.

La polarisation en courant continu pulsé : ce type de polarisation possède deux principaux avantages. Il permet, dans certains cas, de pulvériser des cibles peu conductrices ou semi conductrice et il augmente la densité des revêtements élaborés. Le principe de cette alimentation est de polariser la cible négativement avec une forte tension mais pendant un laps de temps très court (voir Figure I-13-b). La puissance ainsi injectée dans un pulse est élevée et confère aux espèces pulvérisées une plus grande énergie cinétique par rapport à une pulvérisation en courant direct. Ce surplus d'énergie est utilisé par les particules pulvérisées pour mieux s'arranger dans le réseau lors de la croissance du revêtement. Il en résulte une densité du film final accrue. De plus, la tension nulle ou légèrement positive imposée entre deux pulses successifs permet, dans le cas des cibles isolantes, d'assurer le retour des charges positives accumulées sur la cible dans le plasma. L'entretien de la décharge s'en trouve facilité. L'inconvénient de la décharge DC pulsé par rapport à une décharge DC classique est la diminution de la vitesse de croissance des revêtements en raison de l'interruption du flux pulvérisé entre deux pulses

La polarisation radio fréquence RF : utilisée pour les matériaux isolants et semi-conducteurs non dopés (voir forme du signal sur la Figure I-13-c). Elle permet d'évacuer les charges qui s'accumulent au niveau des cibles durant la polarisation négative de celles-ci. La décharge est ainsi maintenue alors qu'une alimentation en DC mènerait à son extinction. Ce mode de pulvérisation peut être avantageusement utilisé dans la pulvérisation de cibles ferromagnétiques telles que le fer. Nous traiterons, dans le paragraphe I.2.3 ce cas particulier.

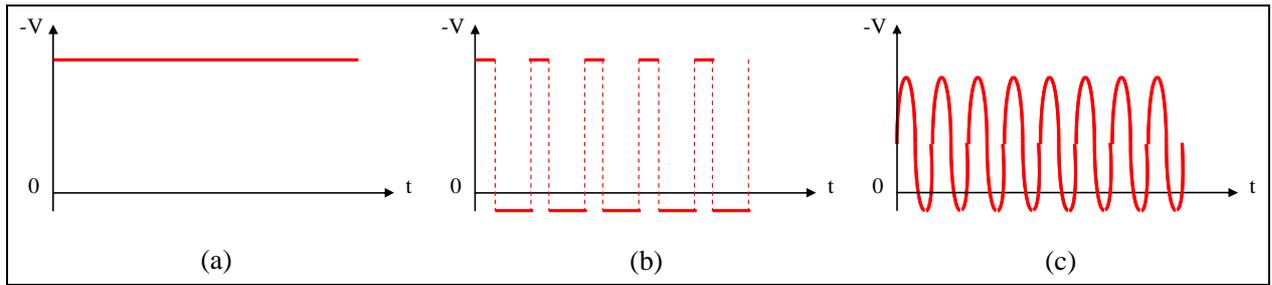


Figure I-13. Régime de polarisation possible d'une cible pulvérisée (a) courant continu, (b) courant continu pulsé, (c) radiofréquence.

I.2.1.2. Interactions ions-cible, Pulvérisation et autres phénomènes [27,28,31]

Dans ce qui suit nous allons décrire le phénomène de pulvérisation ainsi que d'autres phénomènes résultant du bombardement ionique de la cible par le plasma (voir la Figure I-14). Chaque phénomène décrit pourrait faire à lui seul l'objet d'une étude approfondie. Cependant, une description simple suffit à la compréhension du présent manuscrit. Nous apportons une attention plus particulière au phénomène de la pulvérisation puisque c'est celui qui est mis à profit dans le procédé d'élaboration de couches minces.

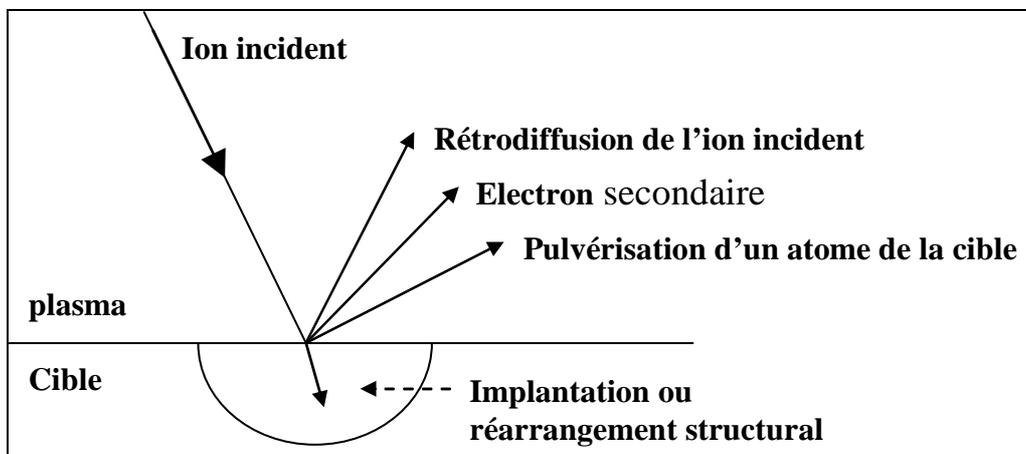


Figure I-14. Différents phénomènes possibles suite au bombardement d'une cible par un ion énergétique.

Pulvérisation de particules neutres (cas d'une décharge DC ou RF) :

Lorsqu'une tension négative est appliquée à une cible, les ions présents dans le plasma sont accélérés par le champ électrique de la gaine cathodique et acquièrent une énergie cinétique qu'ils cèdent aux atomes de la cible lors de collisions élastiques, suite à quoi un ou plusieurs atomes sont éjectés de la cible avec une énergie cinétique. Trois régimes de

collisions élastiques menant à cette éjection sont distingués en fonction de l'énergie des ions incidents selon le modèle de Sigmund (voir Figure I-15) [28].

- a. Régime de collision simple - Figure I-15-(a): L'énergie reçue par un atome de la cible est suffisante pour l'expulser mais pas pour entraîner une série de collisions. Ce mécanisme est le plus souvent rencontré lorsque les ions sont légers et faiblement énergétiques (<KeV).
- b. Régime de cascades linéaires - Figure I-15-(b) : l'énergie mise en jeu dans ce mécanisme est suffisamment élevée pour créer une série de collisions binaires pouvant entraîner l'éjection d'un atome si une collision a lieu près de la surface. C'est le cas lorsque les ions ont des énergies allant du KeV au MeV
- c. Régime de pointes - Figure I-15-(c) : L'énergie des ions est cédée dans un volume réduit (cas des ions lourds). Il en résulte de nombreuses collisions et un nombre d'atomes en mouvement important.

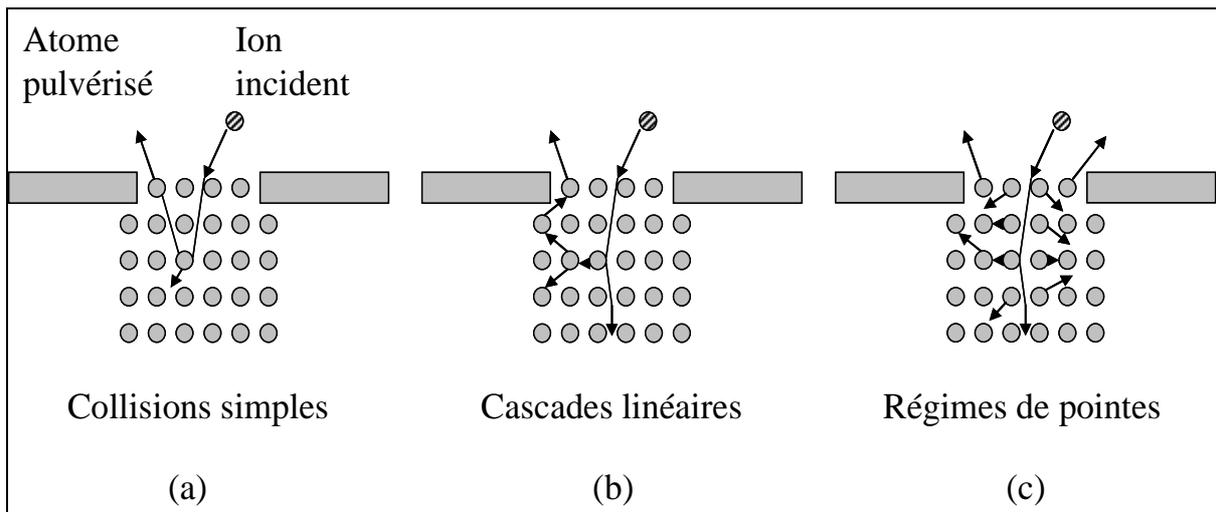


Figure I-15. Trois régimes de pulvérisation par collisions élastiques. (a) Collision simple. (b) Collision linéaire. (c) Collision de pointe.

Un atome pulvérisé de la cible ira se déposer sur la première surface rencontrée sur sa trajectoire. S'il atteint le substrat avec suffisamment d'énergie il se combinera aux autres atomes pulvérisés. Nous verrons par la suite (§ I.2.4) les étapes qui mènent à la formation d'un revêtement.

D'autres phénomènes ont lieu lors du bombardement. Ils sont brièvement décrit dans ce qui suit:

✓ Emission d'électrons secondaires :

La collision entre un ion et la cible peut donner lieu à l'émission d'électrons appelés *électrons secondaires*. C'est un phénomène primordial en pulvérisation cathodique. En effet, ce sont les électrons secondaires qui garantissent le maintien d'une décharge en ionisant les atomes de gaz présents dans la chambre de réaction.

✓ Rétrodiffusion de l'ion incident :

Lorsque l'énergie des ions n'est pas suffisante pour pénétrer dans la cible, ils seront réfléchis après avoir été neutralisés.

✓ Implantation :

Le phénomène d'implantation a lieu lorsque les ions n'ont plus assez d'énergie pour ressortir de la cible. Ce mécanisme est recherché dans certains cas tels que la nitruration par bombardement ionique. Il est favorisé lorsque l'énergie des ions est grande et que la profondeur de pénétration dans le matériau cible est élevée.

✓ Réarrangement structural du matériau de la cible :

L'énergie apportée par les ions peut entraîner des modifications structurales du matériau cible telles que des lacunes ou des interstitiels mais aussi des réarrangements d'atomes en surface.

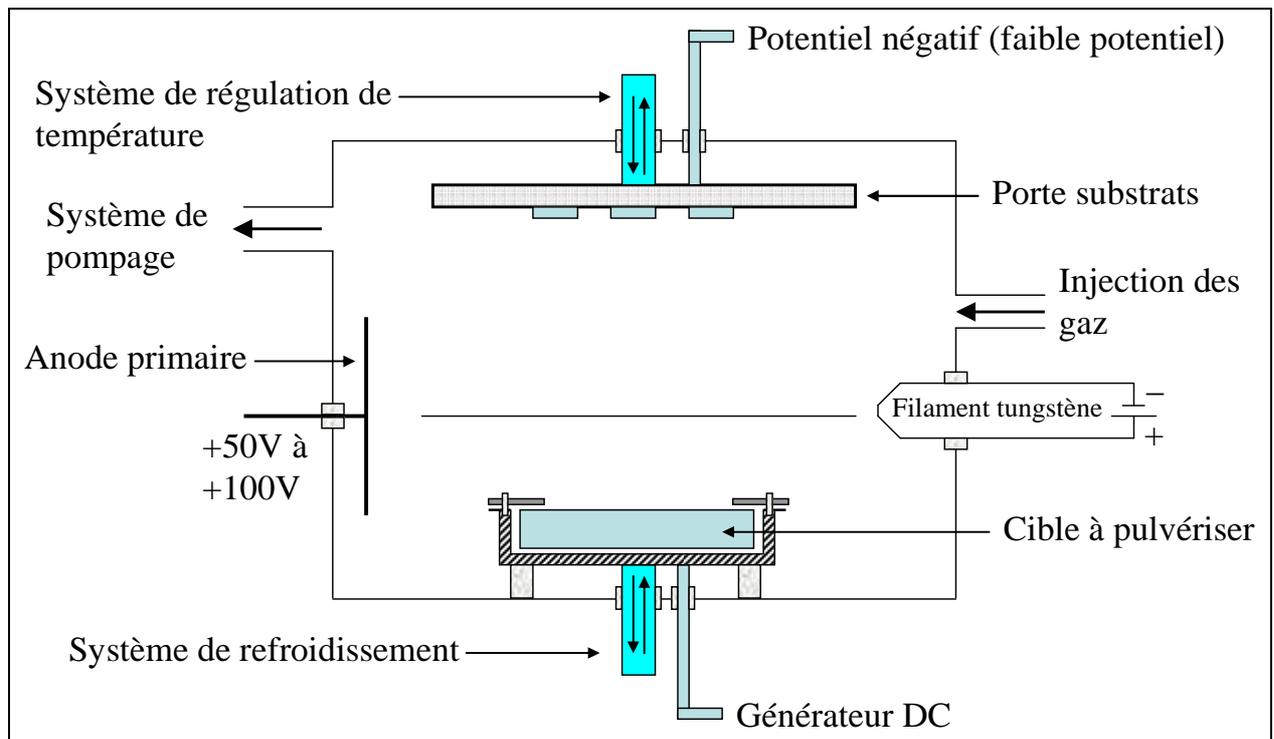
### I.2.2. Évolution de la technique: de la pulvérisation cathodique à la pulvérisation cathodique magnétron

La pulvérisation cathodique nécessite de faire un compromis sur la valeur de la pression de pulvérisation. En effet une pression trop basse nuit à l'entretien de la décharge, tandis qu'une pression trop haute empêche les espèces pulvérisées d'atteindre le substrat. De plus l'absence d'un système favorisant l'ionisation du plasma rend nécessaire l'utilisation d'une tension très élevée pour maintenir la décharge.

Malgré cela, la vitesse de dépôt en pulvérisation cathodique reste médiocre, et exclut une utilisation industrielle du procédé. Aussi plusieurs améliorations ont été apportées à ce procédé dans le but d'en accroître le rendement et d'améliorer le contrôle de la qualité des revêtements.

## I.2.2.1. Pulvérisation triode [29-32]

Dans ce procédé, la plupart des électrons qui entretiennent le plasma ne proviennent pas de la cible, mais d'une cathode chauffée, constituée d'un ruban de tungstène. Une anode dite anode primaire est placée en face du ruban de tungstène et portée à un potentiel suffisant pour ioniser le gaz plasmagène introduit dans l'enceinte. Les ions, ainsi créés, sont attirés par la cible qu'ils pulvérisent. Le porte substrat peut lui aussi être porté à un potentiel faiblement négatif afin d'attirer des d'ions du plasma *Figure I-16*. Ceci permet d'améliorer la qualité des films déposés (voir § I.2.4). L'efficacité de ce dispositif peut être améliorée par l'application d'un champ magnétique longitudinal. En effet, la trajectoire hélicoïdale des électrons autour des lignes de champs permet d'augmenter la probabilité d'une collision entre un électron et un atome du gaz.



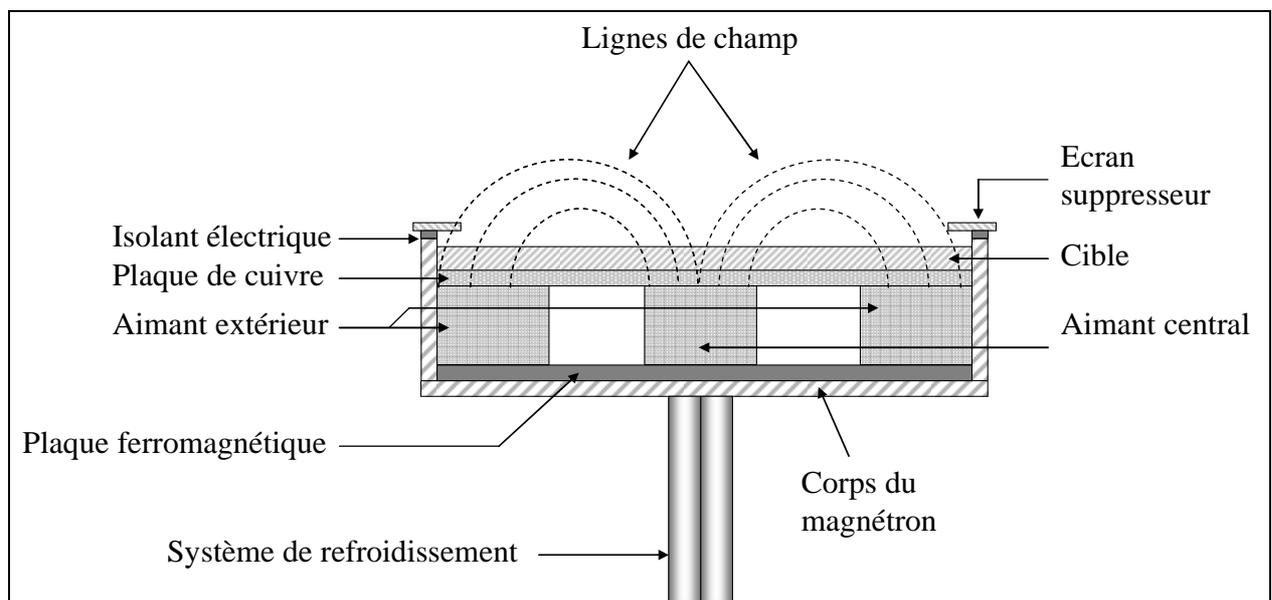
*Figure I-16. Schéma du dispositif de pulvérisation cathodique triode.*

La pulvérisation triode permet des vitesses de pulvérisation de l'ordre de 40 nm/min sous une pression de 0.1 Pa. De plus, elle rend possible le contrôle de la densité d'ions récoltés par la cible en agissant directement sur l'émission électronique, et sans avoir à modifier la tension de la cible ou la pression de gaz. Cependant, le système présente des inconvénients, et notamment, une vitesse de pulvérisation inhomogène (plus importante du côté du filament) ce qui implique une inhomogénéité dans l'épaisseur du film déposé. De plus, le temps de vie

du filament est réduit lors de l'utilisation d'un gaz réactif ( $O_2$ ,  $N_2$ ) en supplément du gaz plasmagène.

### I.2.2.2. Pulvérisation cathodique magnétron

Ce dispositif reprend celui de la pulvérisation cathodique diode avec une cathode modifiée. Deux aimants permanents sont disposés à l'arrière de la cible. L'induction magnétique, de l'ordre de 20 à 50 mT dans l'espace situé à l'avant de la cible, piège les électrons secondaires émis lors du bombardement de la cible par les ions du plasma - *Figure I-17* et *Figure I-18*. Le piégeage des électrons augmente la probabilité de collision entre un électron secondaire et un atome du gaz à proximité de la cible. Il en résulte un accroissement de la densité du plasma près de la cible et une augmentation de la vitesse de pulvérisation (Jusqu'à 50 fois plus élevée que dans le procédé diode). Il est donc possible de maintenir une vitesse de pulvérisation élevée à faible pression (0.1 Pa). L'abaissement de la pression nécessaire à maintenir une décharge participe également à l'augmentation de la vitesse de croissance des revêtements puisque le libre parcours moyen des particules augmente.



*Figure I-17. Schéma d'une cathode équipée d'un système magnétron.*

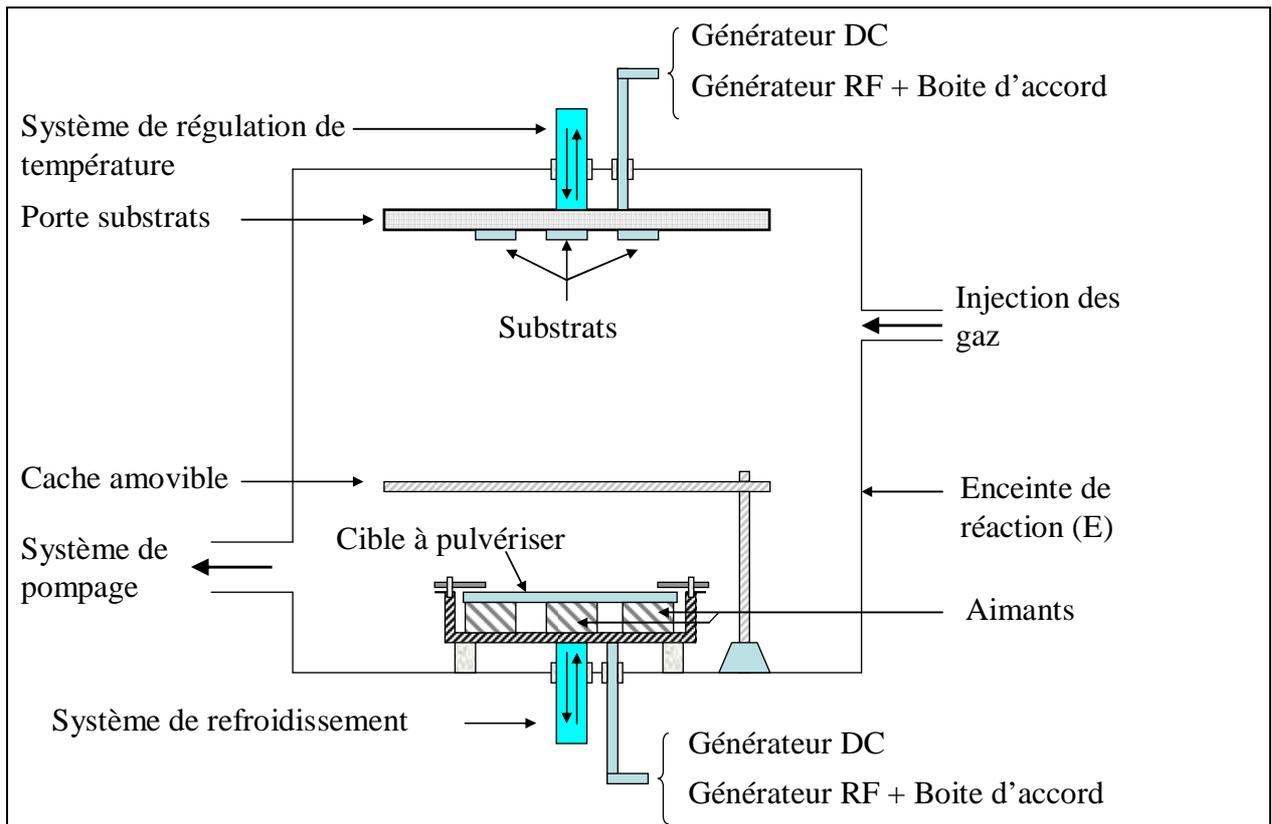


Figure I-18. Schéma du dispositif de pulvérisation cathodique magnétron.

Une autre différence entre le procédé magnétron et le procédé diode réside dans la manière de polariser la cible et le substrat. En effet, contrairement à la pulvérisation diode où la différence de potentiel est appliquée entre la cible et le porte substrat, dans la pulvérisation cathodique magnétron la différence de potentiel est appliquée entre la cible et l'enceinte du réacteur. Le porte substrat est quant à lui isolé électriquement du reste du réacteur et peut être polarisé indépendamment de la cible. Dans les faits il est, le plus souvent, polarisé négativement afin que la couche en cours de croissance soit bombardée par les ions du plasma. Ce bombardement augmente l'énergie des particules déposées et permet d'améliorer la qualité du film.

#### Configurations du magnétron

Il existe deux types de magnétrons. Les magnétrons équilibrés et les magnétrons déséquilibrés. Nous allons dans ce qui suit décrire ces deux configurations.

##### ✓ Magnétrons équilibrés :

Considérons le cas de cibles circulaires. Un magnétron équilibré est constitué d'un aimant central de forme cylindrique et d'un aimant périphérique en forme d'anneau. Les polarités des aimants sont inversées. Les champs magnétiques produits par chacun des deux aimants sont

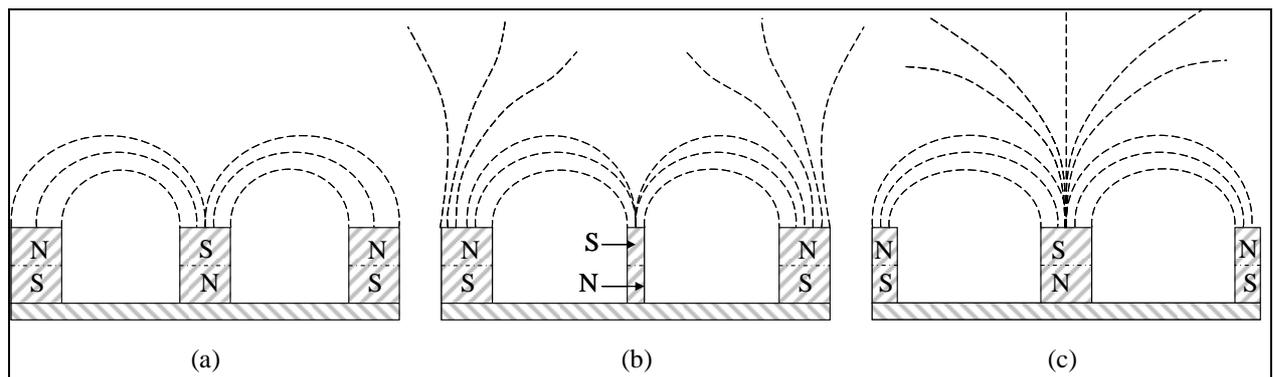
sensiblement d'égale intensité. Les lignes de champ se referment sur elles-mêmes et forment un anneau (*Figure I-19-(a)*).

Cette configuration permet un piégeage optimum des électrons et une localisation du plasma près de la cathode.

✓ Magnétrons déséquilibrés :

Dans cette configuration l'aimant central produit un champ magnétique d'intensité différente de celui produit par l'aimant périphérique. Les lignes de champ de l'aimant le plus puissant se dirigent vers le substrat (*Figure I-19-(b)* et *Figure I-19-(c)*). Les électrons ne sont plus confinés uniquement dans l'espace cathodique, mais ionisent des atomes du gaz près du substrat.

Cette configuration permet de délocaliser une partie des ions du plasma dans la région du substrat, et ainsi de fournir de l'énergie cinétique aux atomes de la couche durant la croissance du revêtement.



*Figure I-19. Configurations possibles des magnétrons. (a) Équilibré, (b) et (c) Déséquilibrés.*

La localisation du plasma dans l'entrefer des deux aimants mène à une usure inhomogène de la cible. Dans le cas de cibles circulaires une zone d'érosion en forme d'anneau apparaît

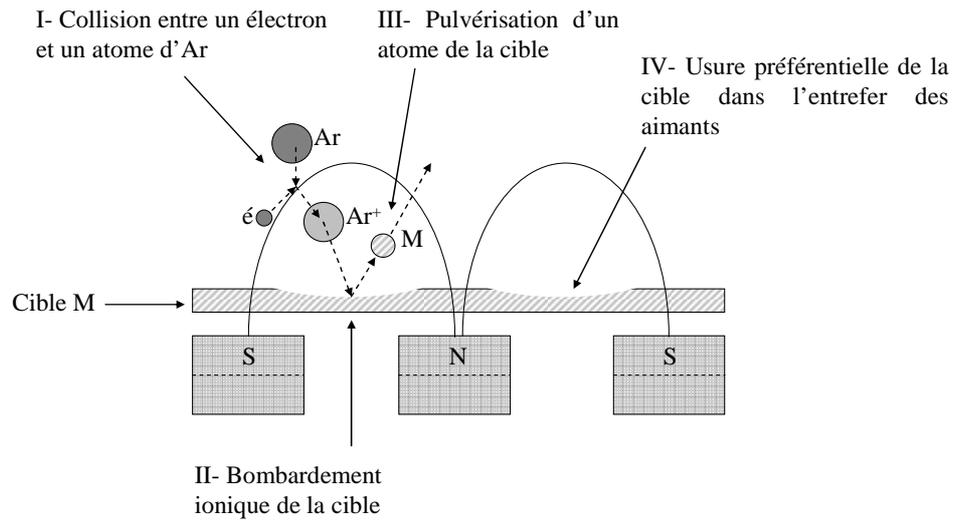


Figure I-20. Usure inhomogène de la cible dans le procédé magnétron.

La cible doit être changée dès que son épaisseur minimum atteint un seuil fixé par l'opérateur. Afin de limiter le gaspillage lié à l'usure inhomogène de la cible, de nouvelles configurations de magnétrons ont été conçues afin de réduire le taux de matière inusitée lors de la pulvérisation.

Parmi les différentes solutions envisagées, Iseki et al [33] ont développé un magnétron à aimant central pivotant excentré (voir Figure I-21). Dans ces conditions le taux d'usure de la cible avant son changement est de 40%, alors qu'il est d'environ 6% dans notre cas avec une cible en Fe.

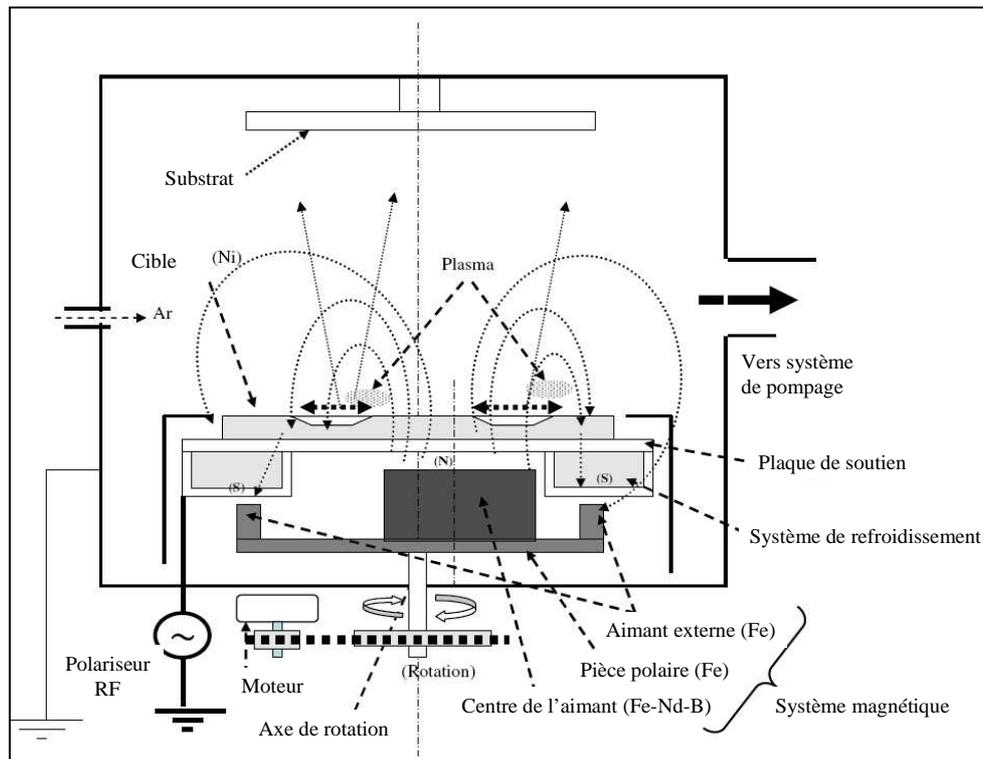


Figure I-21. Schéma d'un dispositif de pulvérisation cathodique magnétron avec aimant central pivotant [33].

Il est également possible de procéder au "rechargement" de la cible, c'est-à-dire de remettre de la matière dans la zone d'érosion par un procédé de projection thermique par exemple.

Une autre conséquence de l'usure inhomogène des cibles en pulvérisation cathodique magnétron est l'inhomogénéité en épaisseur des films déposés.

En effet, dans certains cas, de fortes inhomogénéités d'épaisseur et de composition des revêtements peuvent être observées en fonction de leur position sur le substrat.

Il est possible d'ajuster la distance entre le porte substrat et la cible afin d'optimiser l'homogénéité des couches en épaisseur et en composition, cependant cela se fait souvent au détriment de la vitesse de dépôt [32].

### I.2.3. Pulvérisation des cibles ferromagnétiques:

La pulvérisation de cibles ferromagnétiques par procédé magnétron pose un certain nombre de difficultés techniques. D'abord, une difficulté à amorcer la décharge et à la maintenir. En effet, les lignes de champs issues des aimants sont majoritairement absorbées

par la cible, et le piégeage électronique ne suffit plus à entretenir la décharge (rappelons qu'une induction magnétique d'une valeur minimum de 20 mT est nécessaire pour entretenir la décharge plasma à 0.1 Pa). Il en résulte des vitesses de dépôt plus faibles que pour la plupart des autres matériaux. Ensuite, une difficulté à contrôler les paramètres de dépôt. Ceci est particulièrement le cas pour les paramètres électriques de la décharge.

Supposons qu'une cible ferromagnétique soit polarisée en RF avec une régulation en puissance. L'usure graduelle de la cible permet à de plus en plus de lignes de jouer leur rôle de piège magnétique pour électrons. Ainsi, le taux d'ionisation du gaz plasmagène augmente. Ceci implique une augmentation de la densité de courant ionique sur la cible. Cette augmentation sera compensée par une baisse de la tension afin de maintenir une puissance injectée constante.

Wei Dong et al. [34] ont étudié d'une part l'influence d'aimants supplémentaires disposés au dessus d'un magnétron classique et d'une cible de fer, et d'autre part l'effet de la forme de la cible en fer sur l'homogénéité et la structure des films déposés. Ils ont montré qu'il était possible, par l'ajout d'aimants au dessus de la cible, de produire un champ magnétique suffisamment intense pour obtenir des vitesses de croissance de 38 nm/min, avec une géométrie de cible optimale, une tension de polarisation égale à 700V et un courant de cible de 0.9 mA à une distance égale à 25 mm de la cible. Cependant, le magnétron amélioré décrit par les auteurs, présente l'inconvénient de faire baigner le substrat dans un fort champ magnétique non contrôlé. Il est probable que la couche obtenue présente une forte dispersion de l'orientation magnétique due aux fortes variations du champ magnétique des aimants au niveau du substrat.

Moiseev et al. [35], ont étudié les caractéristiques électriques de décharges DC et DC pulsé dans un magnétron modifié composé de deux cibles disposées en vis-à-vis (voir la géométrie du dispositif sur la Figure I-22. Des analyses de spectroscopie optique d'émission (OES) résolue dans le temps ont permis de montrer que la configuration du magnétron permet d'obtenir un confinement du plasma au niveau des cibles comparable dans le cas de cibles ferromagnétiques en fer et de cibles en cuivre. Les auteurs concluent à la nécessité d'améliorer la conception des aimants afin d'améliorer encore plus le confinement du plasma dans le cas de l'utilisation de cibles ferromagnétiques. Cependant, ce dispositif expérimental présente un inconvénient majeur. Les substrats sont disposés loin du flux métallique pulvérisé (au niveau de la sonde d'énergie) et le reçoivent sous incidence oblique. La vitesse de croissance, ainsi que la structure des couches minces seront fortement altérées par ces deux paramètres.

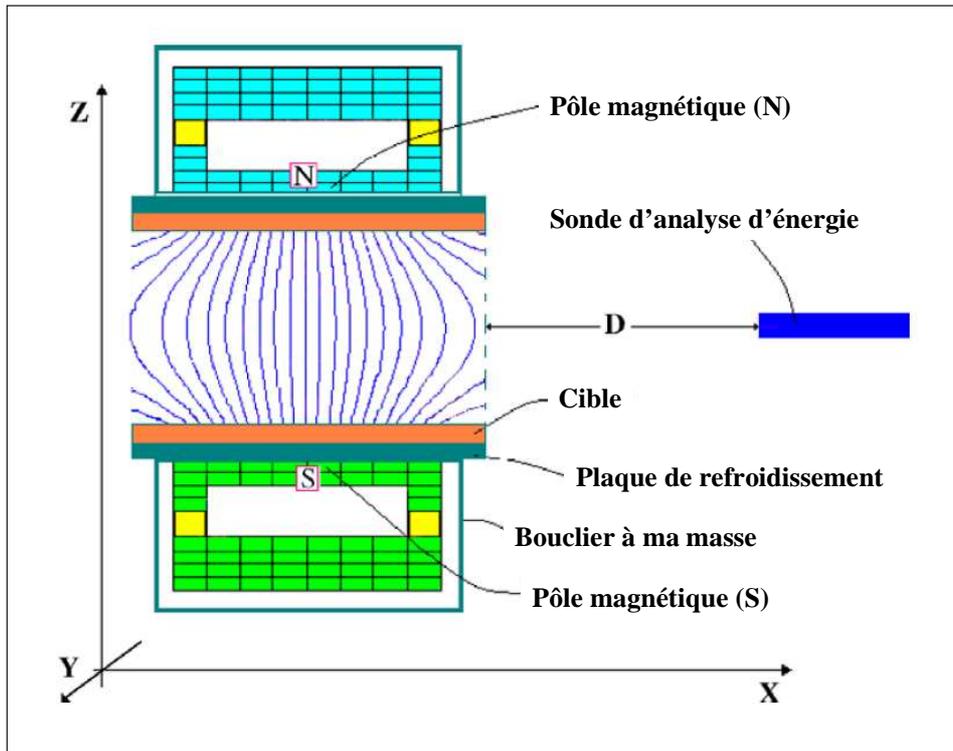


Figure I-22. Dispositif comprenant deux magnétons classiques placés en vis-à-vis [35].

Mizutani et al. [36] ont proposé un dispositif de pulvérisation cathodique magnétron à fort champ magnétique. Le champ magnétique est produit par un supraconducteur appelé Sm123 au lieu des aimants Nd-Fe-B classiques - *Figure I-23*. Le champ magnétique produit par le supraconducteur est environ 10 fois supérieur à celui produit par un aimant classique. Les résultats obtenus montrent qu'il est possible par ce procédé de pulvériser des cibles de fer de 3 mm d'épaisseur alors qu'elle est limitée à 1 mm dans le procédé de pulvérisation cathodique magnétron classique. De plus, le procédé proposé par les auteurs permet de maintenir une décharge plasma à une pression de l'ordre de  $10^{-3}$  Pa. La mise en place d'un tel procédé nécessite d'équiper le magnétron d'un système de refroidissement à très basse température (40 K) afin de maintenir la propriété supraconductrice du Sm123. Il est moins facile à mettre en œuvre qu'un procédé pulvérisation cathodique magnétron classique.

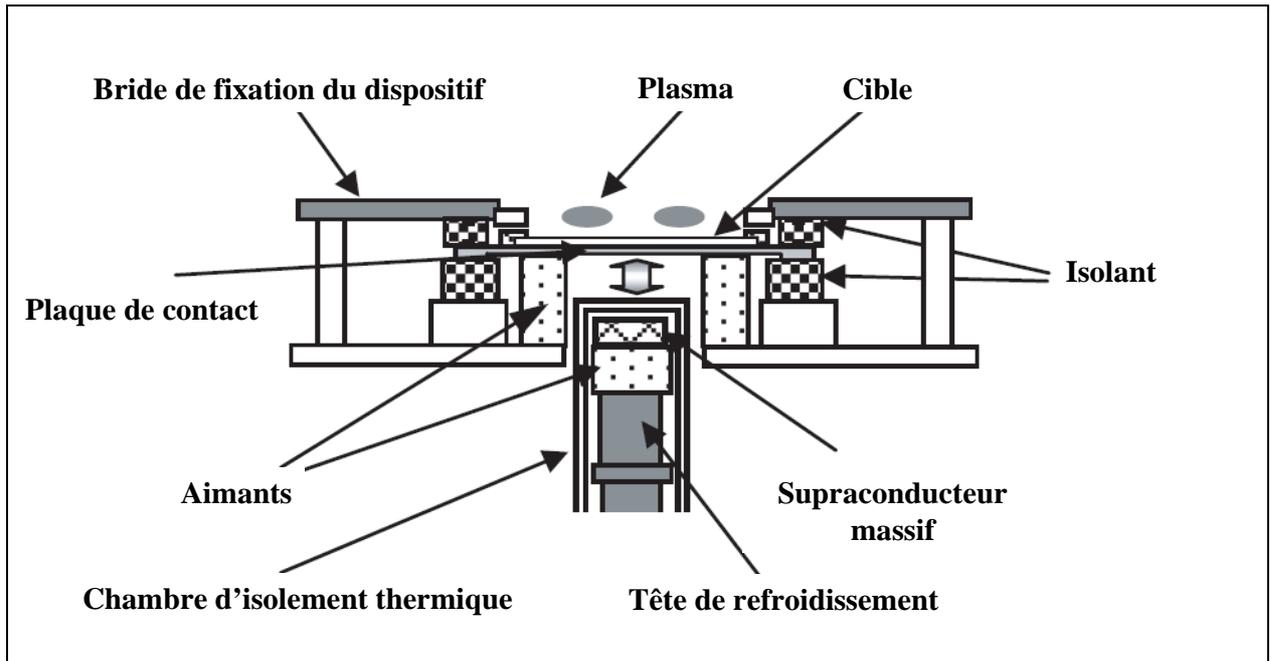


Figure I-23. Schéma du magnétron modifié. Champ magnétique produit par supraconducteur [36].

D'autres auteurs ont montré la possibilité d'augmenter la densité de lignes de champs qui traversent une cible en fer par l'utilisation d'une cathode modifiée. [37,38]. La Figure I-24 montre la modification apportée à une cible circulaire classique et son influence sur les lignes de champs.

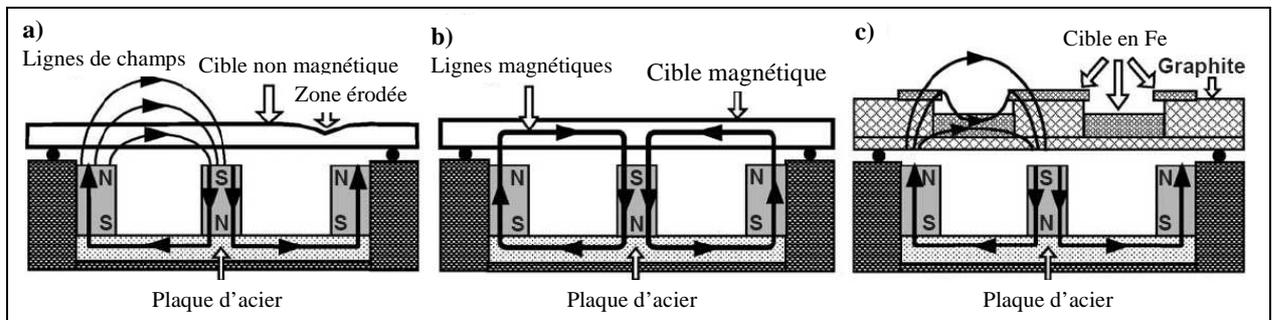


Figure I-24. Schéma représentatif d'un magnétron (vue en coupe) : (a) équipé d'une cible non magnétique; (b) équipé d'une cible magnétique; (c) équipé d'une cible magnétique modifiée [37].

De nombreuses équipes de recherche s'intéressent au développement de magnétron qui permet de pulvériser des cibles ferromagnétiques de manière plus efficace. Néanmoins, dans la plupart des cas, il est possible d'utiliser un magnétron classique pour pulvériser des cibles ferromagnétiques. L'épaisseur des cibles doit être en générale inférieure à 1 mm, et il est

parfois nécessaire (notamment dans le cas de la pulvérisation du fer) d'utiliser un régime de décharge RF ou DC pulsé. Ainsi, comme nous le verrons plus tard, nous avons opté pour une solution relativement simple à mettre en œuvre qui consiste à pulvériser les cibles de Fe en régime de décharge RF. Cependant de nombreux ajustements techniques ont été nécessaires afin d'obtenir un protocole de pulvérisation satisfaisant. Cette partie de notre travail sera exposé plus en détail dans les chapitres deux et trois.

Après avoir rappelé le principe du procédé magnétron et décrit les interactions entre les ions du plasma et la cible, intéressons-nous à la dernière étape menant à la formation d'un revêtement à savoir la germination et la croissance du revêtement.

### I.2.4. Germination et croissance des couches :

Dans cette partie nous décrirons les phénomènes de germination et de croissance d'un revêtement obtenu par pulvérisation magnétron.

La construction d'un film mince commence par la condensation des espèces pulvérisées sur le substrat. Par la suite les espèces adsorbées migrent vers des sites de nucléation et forment des clusters. Les clusters ainsi créés croissent jusqu'à se transformer en îlots et les îlots voisins entrent en contact et coalescent jusqu'à recouvrir la surface du substrat. Les particules nouvellement pulvérisées peuvent à présent trouver leur place sur la couche mince déjà formée et s'arrangent dans une structure cristalline qui minimise l'énergie de l'édifice.

Dans l'optique de contrôler la morphologie du revêtement in situ, il est possible de fournir aux particules pulvérisées plus ou moins d'énergie lors de leur condensation sur le substrat. L'apport d'énergie permet un arrangement optimal des atomes dans la structure en formation et donc une densification du revêtement. Tandis qu'une diminution de cette énergie mène à moins de mobilité des atomes en surface et donc à une structure colonnaire plus poreuse (voir la Figure I-25).

Le contrôle de l'énergie des espèces incidentes au substrat peut se faire par divers moyens: bombardement ionique (par canon à ions ou polarisation du substrat), chauffage du substrat et traitement laser pour ce qui est de l'augmentation de cette énergie et refroidissement du porte substrat pour sa diminution.

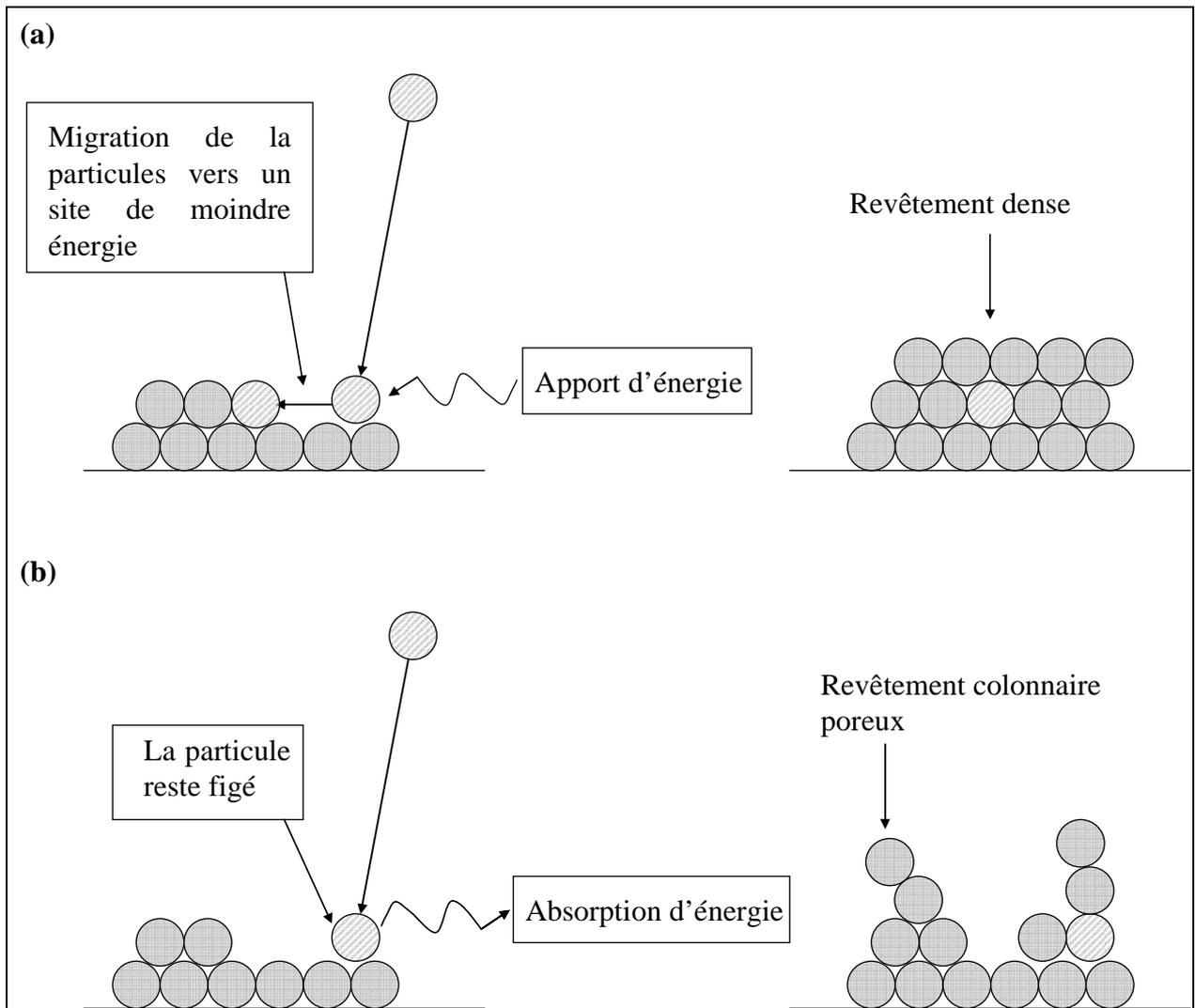


Figure I-25. Influence de l'énergie des atomes lors de la croissance du revêtement sur sa morphologie. (a) revêtement dense, (b) revêtement poreux.

L'autre moyen de contrôler la morphologie des revêtements in situ est d'agir sur la pression du gaz lors de la pulvérisation. En effet, plus la pression du gaz sera basse, moins il y aura de collisions entre les espèces pulvérisées et les atomes du gaz. En conséquence, l'énergie cinétique des atomes à leur arrivée au substrat sera plus importante et le revêtement formé sera plus dense.

Les techniques permettant de contrôler l'énergie des particules par un apport d'énergie durant la croissance du revêtement doivent cependant être bien maîtrisées. En effet, un apport d'énergie excessif peut nuire à la qualité du film ou à sa vitesse de croissance en re-pulvérisant les atomes déposés ou en créant des défauts à la surface du substrat (particulièrement dans le

cas du bombardement ionique). Dans le cas de la polarisation du substrat durant le dépôt par exemple, il convient de ne pas appliquer une tension supérieure à 100 V pour éviter la détérioration de la couche mais aussi pour ne pas induire des contraintes excessives lors de sa croissance.

De même, toute modification de la pression de gaz plasmagène dans le but de contrôler la morphologie du revêtement entraînera une modification des paramètres électriques de la décharge ainsi que de la vitesse de croissance du film. Il est donc nécessaire de bien tenir compte de ces effets pour, éventuellement recalculer le temps de dépôt pour atteindre une épaisseur donnée.

Un moyen simple de se représenter l'effet de la pression de pulvérisation et de la température du substrat sur la morphologie d'un revêtement est de se référer au diagramme de Thornton [39]. Ce diagramme est divisé en quatre zones Figure I-26.

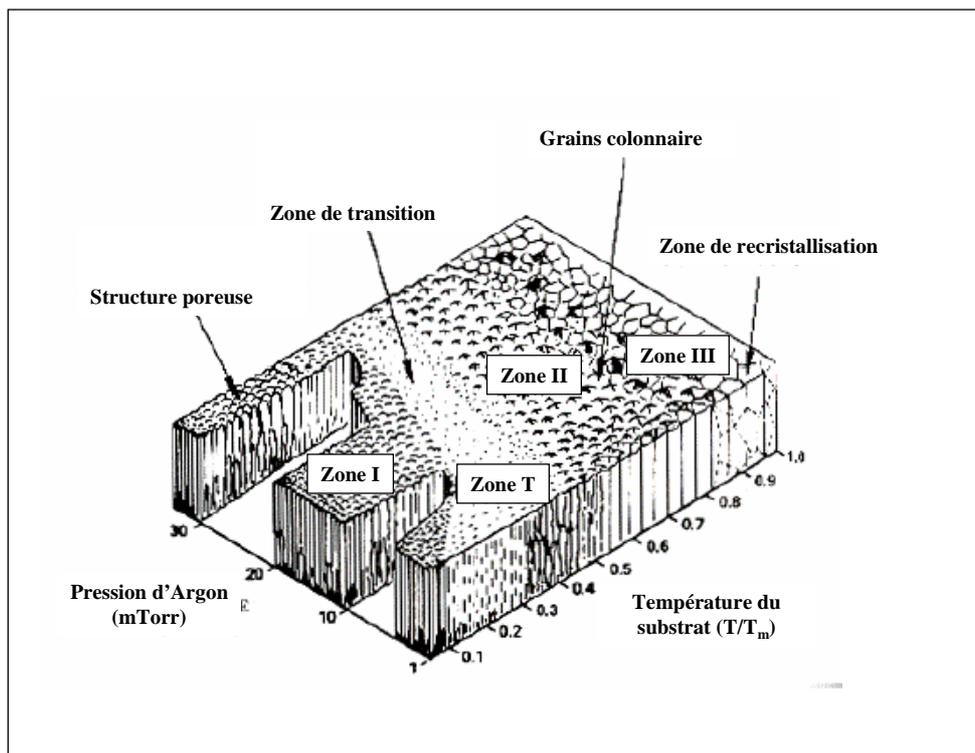


Figure I-26. Diagramme de zones de Thornton [39].

### Zone 1:

Les grains sont de forme colonnaire séparés par des espaces vides. La faible mobilité de surface des adatoms lors de la formation de la couche ainsi que le phénomène d'ombrage

expliquent la forme colonnaire et la porosité élevée des structures obtenues dans ces conditions.

**Zone T :**

Cette zone est caractérisée par des grains colonnaires plus fins et la réduction de l'espace séparant deux colonnes voisines. L'énergie croissante des adatoms permet cet arrangement.

**Zone2:**

L'énergie des adatoms est plus élevée que dans la zone de transition et leur diffusion latérale est suffisante pour que les colonnes soient accolées entre elles. Les surfaces des dépôts présentent un profil anguleux. Cela est dû à l'existence de plans cristallographiques bien déterminés.

**Zone3:**

La température élevée permet aux atomes de diffuser dans toutes les directions et ainsi de former des grains équi-axiaux caractéristiques des matériaux massifs. De plus, les grains peuvent recristalliser dans cette zone jusqu' à former un monocristal.

Maintenant que les bases de la pulvérisation cathodique magnétron ont été rappelés, nous allons nous intéresser à la présentation de l'alliage constituant les revêtements que nous allons étudier par la suite. Il s'agit de l'alliage Fe-Si.

### I.3. L'alliage FeSi [13,15,40]

L'alliage FeSi est utilisé dans de nombreuses applications en raison de ces qualités magnétiques élevées ainsi que du faible coût des matériaux le constituant. Plusieurs techniques d'élaboration peuvent être utilisées pour produire cet alliage. Le choix de l'une ou l'autre de ces techniques dépend essentiellement de:

- ✓ La quantité à produire
- ✓ Le dimensionnement du produit fini (rubans, tôles, couches minces, revêtements épais...)
- ✓ Des propriétés que l'on désire contrôler (champ coercitif, anisotropie magnéto-cristalline, résistivité...)

La plus grande partie de la production mondiale du FeSi est destinée à la fabrication de transformateurs électriques. Pour cette application, l'alliage est produit sous forme de tôles. Dans ce contexte, les propriétés de cet alliage ont été intensivement étudiées. Ces études ont fait apparaître le rôle joué par le Si sur les propriétés de l'alliage. Dans le cas d'une application dans les transformateurs électriques, le but est d'augmenter la résistivité de l'alliage par rapport à celle du fer pur. En effet, si le fer pur présente des propriétés magnétiques très intéressantes, telle qu'une forte aimantation à saturation, sa résistivité très faible implique des pertes importantes en fonctionnement dynamique. Cependant, la ductilité de l'alliage augmente avec la teneur en Si, ce qui rend impossible l'élaboration de tôles avec les techniques métallurgiques conventionnelles pour des teneurs en Si supérieures à 6.8 at.% (3.5 pds.%). Ainsi, d'autres techniques ont été envisagées pour élaborer des alliages avec des teneurs en Si plus importantes, notamment l'élaboration de rubans par coulée continue, et de films minces par les différentes techniques existantes. C'est ce dernier aspect que nous allons particulièrement explorer dans cette partie.

En effet, les techniques de fabrication de couches minces permettent d'élaborer et d'étudier l'alliage FeSi quelle que soit sa teneur en Si. Dans le cadre de notre travail, les alliages FeSi avec des teneurs en Si allant de 0 à 50 at.% ont été étudiés. De plus, la pulvérisation cathodique magnétron ouvre la voie à la miniaturisation et l'intégration des systèmes applicatifs pouvant découler de ces travaux.

Le Tableau 2 regroupe les principales formes sous lesquelles l'alliage FeSi est utilisé dans les applications courantes, ou de niches. Pour chacune des formes, les applications ainsi que les techniques d'élaboration et les principales caractéristiques sont rapportées.

Tableau 2. Récapitulatif de la forme et des propriétés des alliages FeSi en fonction des applications visées.

Forme finale de l'alliage	Applications	Techniques d'élaboration	Caractéristiques principales et propriétés recherchés
Couches minces	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Blindage magnétique</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Projection thermique</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Gamme d'épaisseur [10<math>\mu</math>m-200<math>\mu</math>m]</li> <li>• <math>H_c</math> faible</li> <li>• <math>M_S</math> élevé</li> <li>• <math>\mu</math> élevé</li> </ul>
	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Eléments de MEMS (micro-actionneurs, micro-moteurs, micro-transformateurs)</li> <li>• Capteurs de champs ou capteurs de contraintes</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• PVD Magnétron</li> <li>• MBE</li> <li>• PLD</li> <li>• Evaporation</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Gamme d'épaisseur [1nm-10<math>\mu</math>m]</li> <li>• Cristallisation : microcristallin, nanocristallin, amorphe</li> <li>• <math>H_c</math> faible</li> <li>• <math>M_S</math> élevé</li> <li>• Anisotropie magnétique contrôlée</li> <li>• Résistivité élevé</li> </ul>
Poudres	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Précurseur pour projection thermique</li> <li>• Précurseur pour compactage à chaud</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Atomisation</li> <li>• Broyage mécanique</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Cristallisation : microcristallin, mélange de phases nanocristallines-amorphe</li> <li>• <math>H_c</math> faible</li> </ul>

			<ul style="list-style-type: none"> <li>• Résistivité élevé</li> </ul>
Rubans	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Transformateurs</li> <li>• Blindages</li> <li>• Capteurs</li> <li>• Actionneurs</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Trempe rapide</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Gamme d'épaisseur: [10<math>\mu</math>m-200<math>\mu</math>m]</li> <li>• Cristallisation : microcristallin, nanocristallin, amorphe</li> <li>• H<sub>c</sub> faible</li> <li>• M<sub>S</sub> élevé</li> <li>• Anisotropie magnétique contrôlée</li> <li>• Résistivité élevée</li> </ul>
Tôles à grains orientés et non orientés	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Cœurs magnétiques pour moteurs de machines tournantes</li> <li>• Transformateurs électriques</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Coulée continue + laminage</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>• Gamme d'épaisseur [10<math>\mu</math>m-1mm]</li> <li>• Cristallisation : Microcristallin</li> <li>• H<sub>c</sub> faible</li> <li>• M<sub>S</sub> élevé</li> <li>• Anisotropie magnétique contrôlée</li> <li>• Résistivité élevée</li> </ul>

### I.3.1. Diagramme de phases de l'alliage FeSi

Le diagramme de phases de l'alliage Fe-Si côté riche en Fe est présenté sur la Figure I-27 [41]. La température de transition magnétique varie de 530°C à 769°C. En pulvérisation cathodique magnétron, la température atteinte par le revêtement durant sa formation n'excède pas 200°C (sauf dans le cas où le substrat est volontairement porté à des températures supérieures). Dans ce qui suit, nous discuterons le diagramme de phases à des températures proches de celles atteintes durant la formation du film. De plus la description du diagramme se limitera au côté riche en Fe, c'est-à-dire de 0 à 50 at.% de Si.

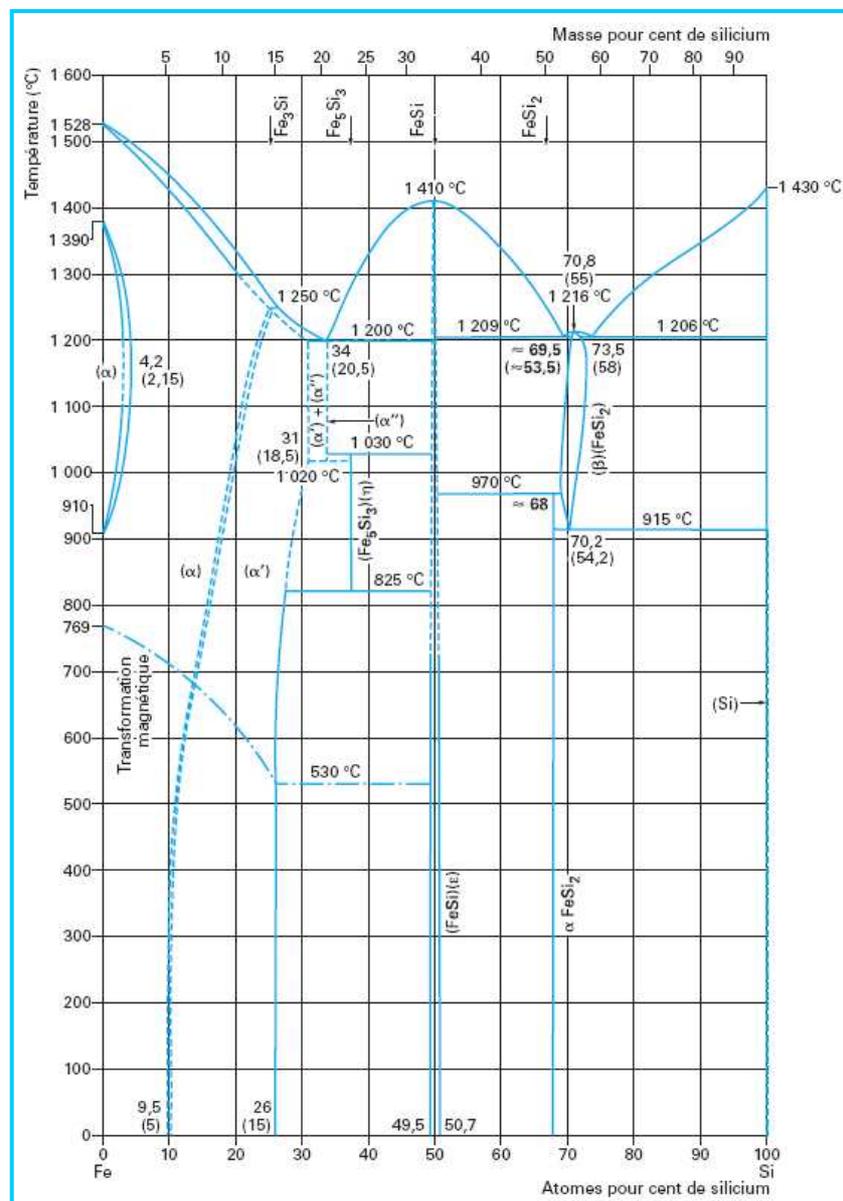


Figure I-27. Diagramme de phase de l'alliage FeSi d'après [41].

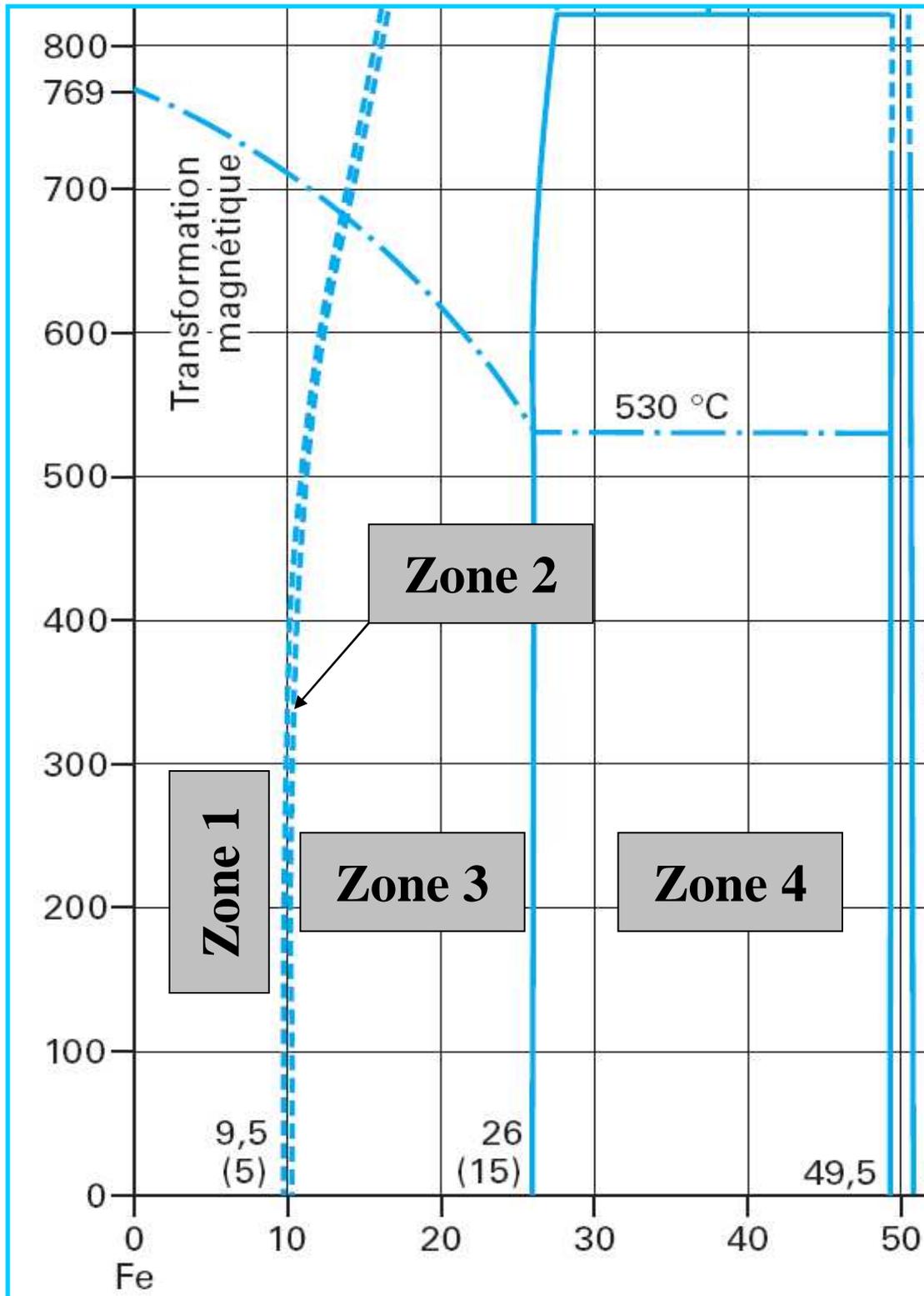


Figure I-28. Agrandissement du diagramme de phase entre 0 et 50 at.% de Si.

**Zone 1 : teneur en Si < 9,5 at. %**

La phase qui se forme est la phase  $\alpha$  du fer de structure cubique centrée notée A2. Le Si est en solution solide dans le fer. Cette phase est désordonnée (voir Figure I-29-(a)), c'est-à-dire que le Si peut se placer sur tous les sites du fer avec une probabilité équivalente.

**Zone 2 : Teneur en Si entre 9,5 et 10,5 at. %**

Dans ce domaine très étroit se forme, en plus de la phase  $\alpha$ , la phase  $\alpha''$  du fer de structure cubique centrée notée B2. Cette phase résulte d'une transition désordre-ordre. Ainsi, le Si se placera préférentiellement au centre du cube. Il n'existe pas d'ordre à longue portée (entre des cubes voisins) Figure I-29-(b).

**Zone 3 : Teneur en Si entre 10.5 et 26 at. %**

Une transition ordre-ordre de la phase  $\alpha''$  du fer vers la phase  $\alpha'$  de structure  $DO_3$  du composé  $Fe_3Si$  s'effectue dans ce domaine jusqu'à atteindre un composé stœchiométrique  $Fe_3Si$  pour 25 at. % de Si. La structure  $DO_3$  résulte donc d'une mise en ordre des seconds voisins. La Figure I-29-(c) montre l'arrangement des atomes de Fe et de Si dans la structure  $DO_3$ .

Les sites A B sont occupés par des atomes de fer, tandis que les sites D sont occupés par les atomes de Si. L'atome de fer central (symbolisé par un cercle hachuré sur la Figure I-29-(c)) sera entouré par un nombre d'atomes de Si inférieur à 4 dans le cas d'une phase  $\alpha'$  sous-stœchiométrique (teneur en Si < 26 at. %) et supérieur à 4 dans le cas d'une phase  $\alpha'$  sur-stœchiométrique (teneur en Si > 26 at. %).

**Zone 4 : Teneur en Si entre 26 et 49,5 at. %**

Dans cette zone une transition progressive entre la structure  $DO_3$  et la structure du  $FeSi-\epsilon$  (CsCl) s'effectue. La structure  $FeSi-\epsilon$  est atteinte pour 50 at% de Si.

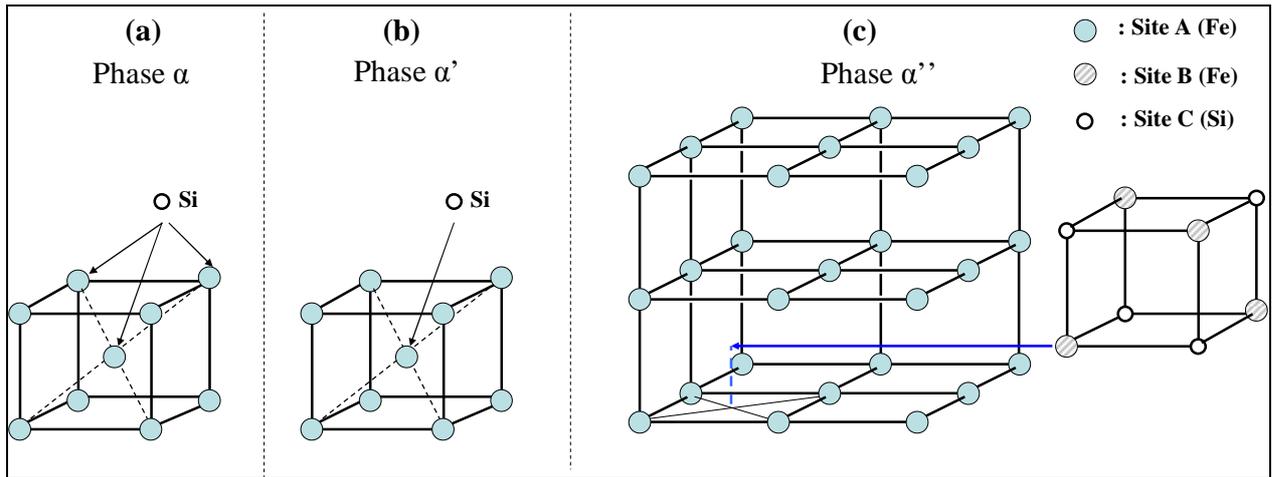


Figure I-29. Les positions occupées par l'atome de Si dans les alliages Fe-Si. (a) Le Si se substitue à n'importe quel atome de Fer; (b) Le Si se substitue préférentiellement à l'atome de Fer au centre du cube; (c) Le Si se substitue aux atomes de Fer des sites B dans un site sur deux.

Selon les techniques d'élaboration de l'alliage Fe-Si, des disparités dans la délimitation des phases  $\alpha$ ,  $\alpha''$  et  $\alpha'$  sont observées dans la littérature.

Ainsi, en pulvérisation cathodique magnétron, l'apparition de la phase sous stœchiométrique DO<sub>3</sub> du composé Fe<sub>3</sub>Si est repoussée à des teneurs en Si bien supérieures à celle observées dans le diagramme de phase représenté sur la Figure I-27. En effet, seule la phase  $\alpha$  du fer a été détectée par diffraction des rayons X jusqu'à des teneurs en Si variant selon les travaux entre 20 et 26 at.% [42-45]. Pour des teneurs en Si supérieures, les films synthétisés deviennent amorphes [42-45]. La phase  $\alpha'$  de structure DO<sub>3</sub> a été cependant observée dans ces films après recuit à une température minimum de 275°C [43,44].

Dans les rubans obtenus par trempe rapide, la formation de la phase  $\alpha'$  est notée dès que la teneur en Si atteint 10 à 12 at.% [46-49].

Dans des poudres FeSi synthétisées par mécanosynthèse, un mélange de la phase  $\alpha$  et d'une phase amorphe est constaté pour des teneurs en Si allant jusqu'à 37,5 at.% [50]. La phase  $\alpha'$  n'est observée qu'après recuit pour des teneurs en Si de l'ordre de 33 at.%.

Enfin, dans des revêtements élaborés par projection thermique, la phase  $\alpha'$  est observée à des teneurs en Si de 6,5 at.% [51].

Il apparaît donc clairement qu'une corrélation forte existe entre les techniques d'élaboration et les propriétés structurales de l'alliage.

Lorsque le choix de l'opérateur s'arrête sur une technique d'élaboration en particulier, il reste à déterminer l'influence de la teneur en Si sur les propriétés électriques, structurales et magnétiques des couches. Nous proposons ci-dessous une étude bibliographique de cette influence.

### I.3.1.1. Influence de la teneur en Si sur la résistivité

La résistivité de l'alliage FeSi joue un rôle important dans la réduction des pertes dynamiques. En effet, une résistivité élevée permet de réduire les pertes par effet Joule qui résultent des courants de Foucault à l'intérieur du matériau. Les courants de Foucault apparaissent à chaque fois que les moments magnétiques du matériau sont amenés à changer de direction, ce qui a lieu dès que le matériau est soumis à un champ magnétique externe variable [40].

Dans les alliages Fe-Si (côté riche en Fer), l'augmentation de la teneur en Si dans la phase  $\alpha$  ou  $\alpha'$  induit une augmentation de la valeur de la résistivité [40]. En revanche, une diminution de la résistivité est observée lors de la transition de la phase  $\alpha$  vers la phase  $\alpha'$  car il s'agit d'une transition désordre-ordre.

En pulvérisation cathodique magnétron, Masahiro et al. [44] ont étudié le système Fe-Si jusqu'à 41 at.% de Si et ont montré que seule la phase  $\alpha$  se forme jusqu'à 22,7 at.% de Si et qu'au-delà les revêtements sont amorphes (voir Figure I-30-(a)). Dans ces conditions, la transition désordre-ordre n'a pas lieu. Au contraire, la phase amorphe étant par définition une phase désordonnée, la résistivité augmente de manière quasi linéaire en fonction de la teneur en Si. Après recuit à 500°C pendant 1h, les auteurs ont montré que la cristallisation des revêtements dont la teneur en Si est supérieure ou égale à 22,7 at.% entraîne la formation de la phase  $\alpha'$  (voir Figure I-30-(b)). Les mesures de résistivité après recuit montrent qu'il y a bien un épaulement dans la courbe d'évolution de la résistivité pour les teneurs en Si correspondants à la transition de phase (voir Figure I-30-(c)).

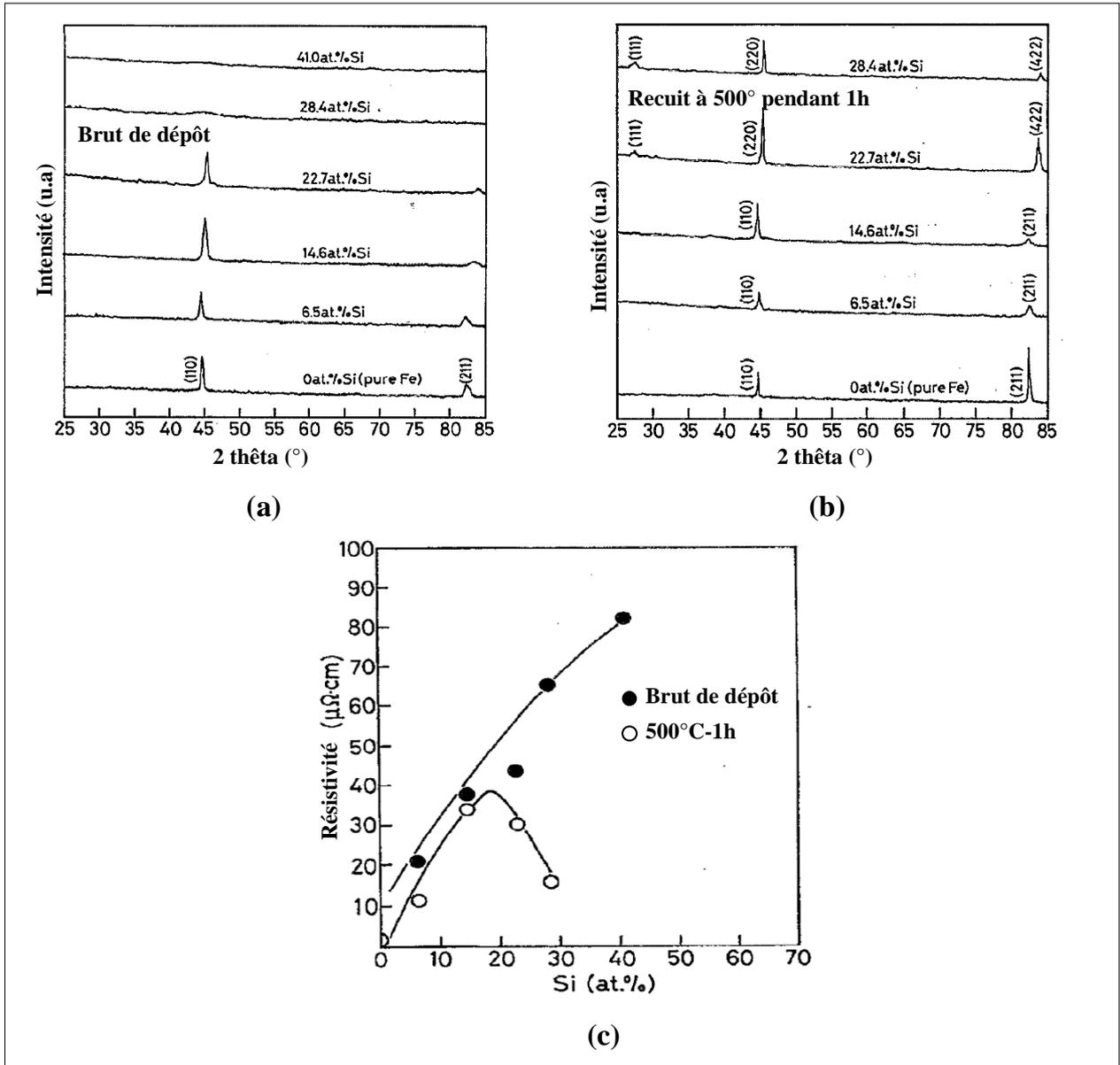


Figure I-30. Diagrammes de diffraction de rayons X d'alliages Fe-Si élaborés par pulvérisation cathodique magnétron avant (a) et après (b) recuit et courbe d'évolution de la résistivité de ces revêtements (c) d'après [52].

Aboaf et al. [43] ont montré dans une étude en 1979 sur des revêtements Fe-Si élaborés également par pulvérisation cathodique magnétron, des résultats différents de ceux exposés par Masahiro et al. en 1991 [44]. En effet, si la transition vers l'amorphe s'effectue pour des teneurs en Si de 26 at.% (ce qui se rapproche des résultats de Masahiro et al [44]), la phase  $\eta$ -Fe<sub>5</sub>Si<sub>3</sub> apparaît dès que la teneur en Si atteint 21at.% et s'ajoute à la phase  $\alpha'$ -Fe ce qui n'est pas observé par Masahiro et al. [44]. L'existence de cette phase explique, d'après les

auteurs, la première discontinuité dans l'évolution de la résistivité telle que nous l'observons sur la Figure I-31. Cependant, les auteurs ne fournissent aucune explication concernant la seconde discontinuité dans l'évolution de la résistivité à 34at.% de Si.

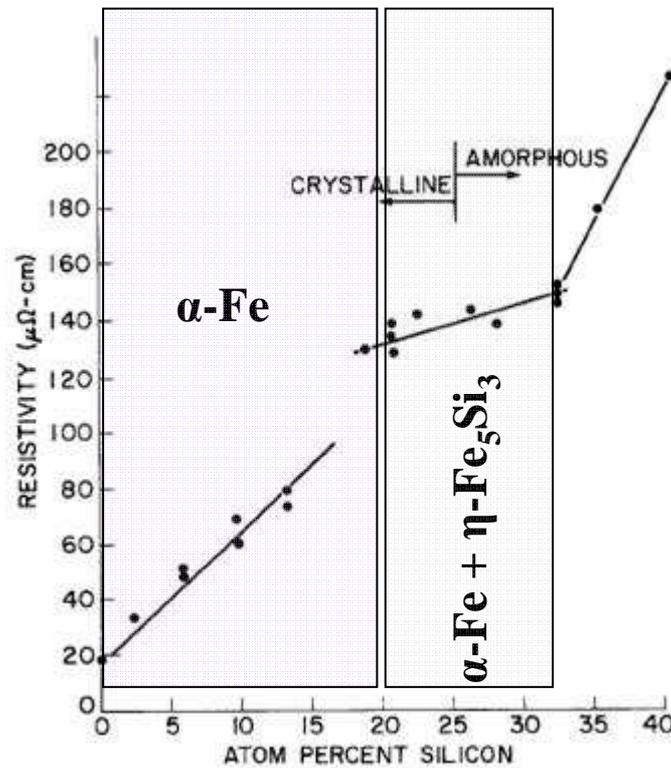


Figure I-31. Evolution de la résistivité des films Fe-Si à température ambiante en fonction de la teneur en Si d'après [43].

Notons enfin que peu de travaux sont, à notre connaissance, venus approfondir les études concernant la relation entre la résistivité et la structure cristalline dans les revêtements élaborés par pulvérisation cathodique magnétron.

### I.3.1.2. Influence de la teneur en Si sur les propriétés magnétiques

Deux principales propriétés magnétiques sont modifiées par la présence de Si dans les alliages Fe-Si. Il s'agit du champ coercitif et de l'aimantation à saturation.

L'influence de Si sur le champ coercitif se fait sentir principalement à travers les anisotropies magnétiques qu'elles soient magnéto-cristalline, magnéto-strictive ou magnéto-élastique. Ces anisotropies sont elles-mêmes liées à la structure cristalline et à la morphologie du matériau, ainsi qu'aux éventuels traitements thermiques subis.

Dans les alliages Fe-Si, les anisotropies magnéto-cristalline et magnéto-élastique sont reconnues comme étant particulièrement influentes sur la valeur du champ coercitif [45,53]. L'influence de Si sur le champ coercitif dans l'alliage FeSi élaboré par pulvérisation cathodique magnétron a été très peu étudiée à notre connaissance. L'étude de Shimada et al. [45] propose une interprétation de l'évolution de  $H_c$  dans ce type d'alliages pour des teneurs en Si allant de 5 à 40 at.% (voir la Figure I-32) en se basant sur l'évolution des anisotropies magnétiques dans les films minces.

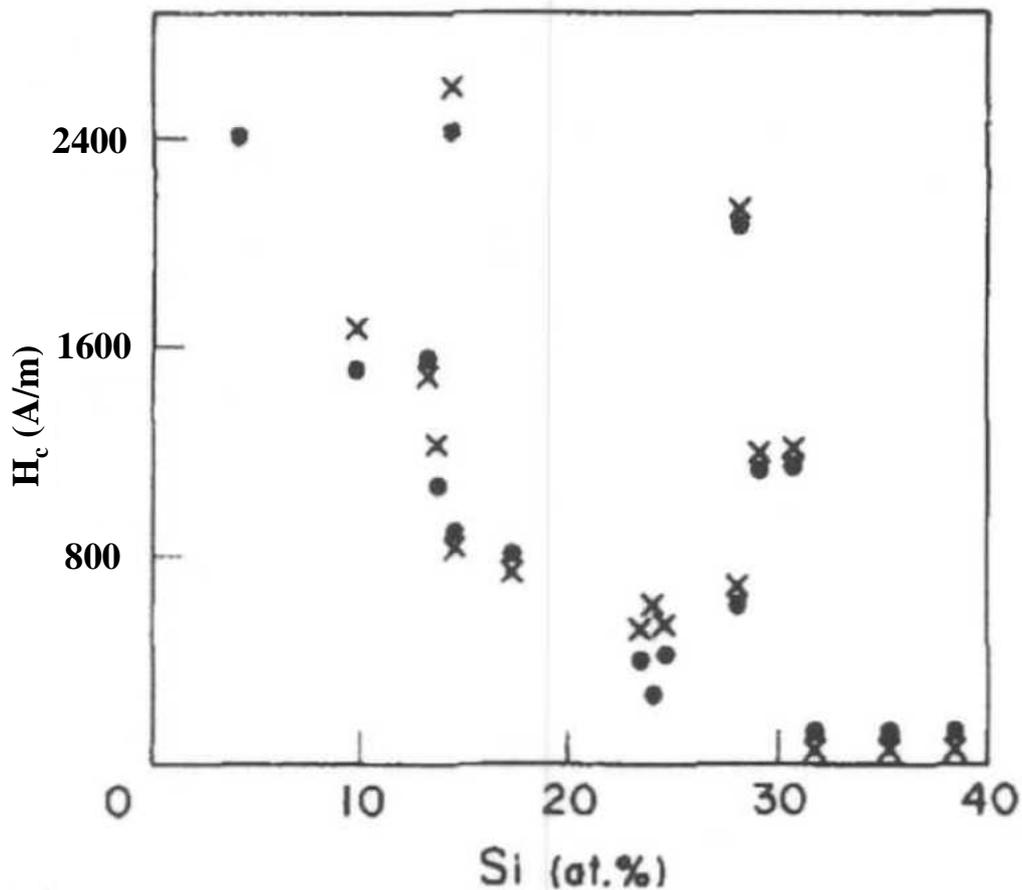


Figure I-32. Evolution du champ coercitif en fonction de la teneur en Si pour des alliages Fe-Si élaborés par PVD magnétron. Les symboles "•" et "x" indiquent le sens d'application du champ durant la mesure dans le VSM: "•" le champ est appliqué dans le sens radial de la cible et "x" le champ est appliqué dans le sens azimuthal de la cible. D'après [45].

L'aimantation à saturation détermine le flux maximum qu'un matériau magnétique peut conduire avant d'être saturé. C'est donc une propriété essentielle des matériaux magnétiques. Dans la grande majorité des applications, le but recherché est d'augmenter la valeur de

l'aimantation à saturation. Contrairement à la résistivité, l'aimantation diminue lorsque la teneur en Si augmente. Cela limite les applications possibles des alliages Fe-Si amorphes aux cas où une faible anisotropie est recherchée plutôt qu'une aimantation à saturation élevée.

Aboaf et al. [43], Masahiro et al. [44], et Shimada et al. [45] ont montré qu'une augmentation de la teneur en Si dans des films minces obtenus par pulvérisation cathodique magnétron conduit à une diminution de l'aimantation à saturation. La gamme de composition étudiée est de 0 à 40at.% de Si.

Masahiro et al. [44] notent une évolution quasi linéaire en fonction de la teneur en Si dans la gamme 0-40 at.%. De plus, un recuit à 500°C pendant une heure ne modifie pas les valeurs de l'aimantation à saturation de manière remarquable. Les auteurs concluent que l'aimantation à saturation dépend principalement de la teneur en Si dans l'alliage et non pas de son état de cristallisation. Aboaf et al. [43] notent dans leur étude un plateau dans l'évolution de l'aimantation à saturation entre 20 et 35 at.% de Si. Cet épaulement disparaît après recuit à 500°C pendant 1h et une évolution linéaire est alors observée pour des teneurs en Si allant de 0 à 40 at%. Les auteurs ne fournissent pas d'explication quant à cette évolution particulière.

Nous arrivons à présent, à la dernière partie de ce chapitre qui va être consacré au rappel du phénomène de la magnéto-impédance, ainsi qu'au fonctionnement des capteurs de champ basés sur cet effet.

## I.4. La Magnéto-impédance

Le phénomène de la *magnéto-impédance* **MI** consiste en une variation sensible de l'impédance  $Z$  d'un matériau magnétique conducteur ferromagnétique, parcouru par un courant alternatif de fréquence donnée, lorsqu'il est soumis à un champ magnétique extérieur.

Quand le rapport de la variation d'impédance à l'impédance initiale à champ extérieur nul,  $\Delta Z/Z$ , atteint des valeurs supérieures ou égales à 100, le phénomène est appelé *magnéto-impédance géante* **GMI**.

Harrison et al. furent les premiers à observer le phénomène de MI en 1937, mais ce n'est qu'en 1992 que Mohri et al. [54] ont entamé une étude plus poussée de ce phénomène. Dans cette étude, les auteurs observent la variation de tension inductive aux bornes de microfils amorphes de diverses compositions soumis à un champ magnétique externe. Ils nomment cet effet "*effet magnéto-inductif*". En 1994 Panina et al. [55] proposent une première explication de la MI.

Très vite, le grand potentiel applicatif de cette découverte, notamment dans la réalisation de capteurs de champs magnétiques, a été perçu par les scientifiques et de nombreux chercheurs se sont intéressés à cette thématique.

Le travail accompli depuis 1994 a permis de mieux comprendre l'origine de la MI. Il a également permis de déterminer l'influence des propriétés des matériaux magnétiques sur l'effet GMI. De plus, des matériaux magnétiques de différentes compositions et configurations (micro-fil, rubans, couches minces) ont été testés afin d'améliorer la sensibilité et la résolution des capteurs GMI.

Un premier capteur de champ basé sur l'effet GMI est actuellement commercialisé par la société Aichi Steel. De nombreuses perspectives de perfectionnement, notamment la miniaturisation des capteurs, laissent à penser que le marché des capteurs GMI est amené à s'étendre dans un futur proche.

### I.4.1. Pourquoi un capteur GMI

L'atout des capteurs GMI par rapport aux capteurs communément utilisés tels que les capteurs à effet Hall, les capteurs inductifs et les capteurs GMR, est qu'ils permettent de

mesurer des champs magnétiques très faibles (de l'ordre de  $0,1\mu\text{T}$ ), avec une résolution sans commune mesure avec celle des autres capteurs. La Figure I-33 représente une comparaison entre la sensibilité des capteurs de champs magnétiques usuels (Capteurs à effet Hall, GMR, TMR...) et celle des capteurs GMI [56]. De plus, la miniaturisation constante des capteurs GMI (utilisation des techniques d'élaboration de la micro électronique) permet d'envisager des applications nouvelles, notamment dans le domaine biomédical, celui de l'espace et le militaire.

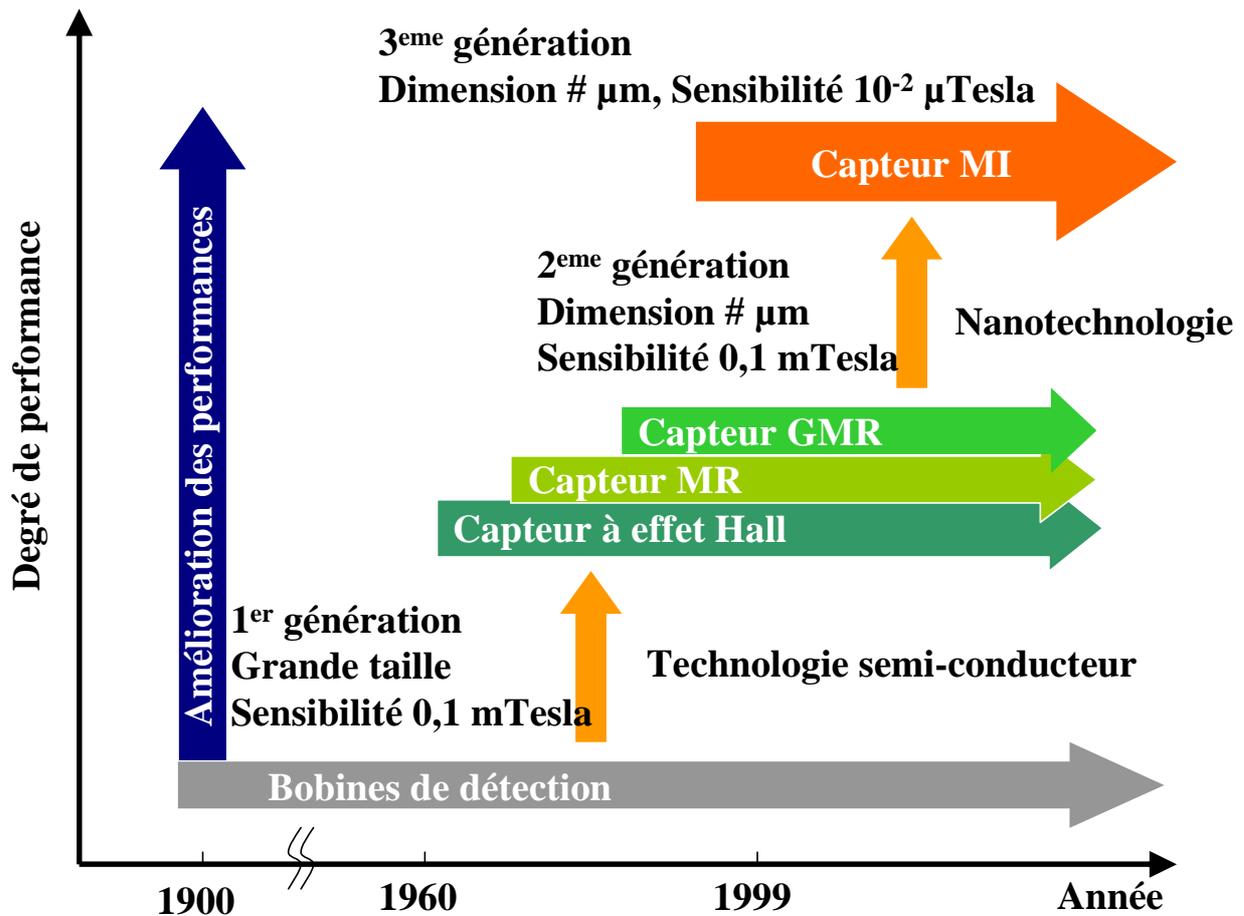


Figure I-33. Positionnement des capteurs MI par rapport aux autres capteurs de champs magnétiques. D'après [56].

#### I.4.2. Comment utiliser un capteur GMI pour mesurer un champ magnétique [57,58]

Considérons un matériau ferromagnétique  $F$  parcouru par un courant  $I(\omega)$ . Supposons que l'impédance relative  $\Delta Z/Z_{\text{int}}$ , ou  $Z_{\text{int}}$  est l'impédance à champ nul, de ce matériau varie au maximum de 100% et ce pour une induction magnétique externe appliqué de 0,1 mTesla. Une

forme typique de l'évolution de l'impédance relative en fonction du champ est présentée dans la Figure I-34.

Dans la gamme d'induction allant de 0 à  $10^{-1}$  mTesla l'évolution de  $Z$  est quasi-linéaire. Il est donc possible de mesurer dans cette gamme la variation de l'induction avec une bonne précision et une résolution élevée puisqu'à une variation du champ de  $10^{-2}$  mTesla correspondra à une variation de 10% de l'impédance.

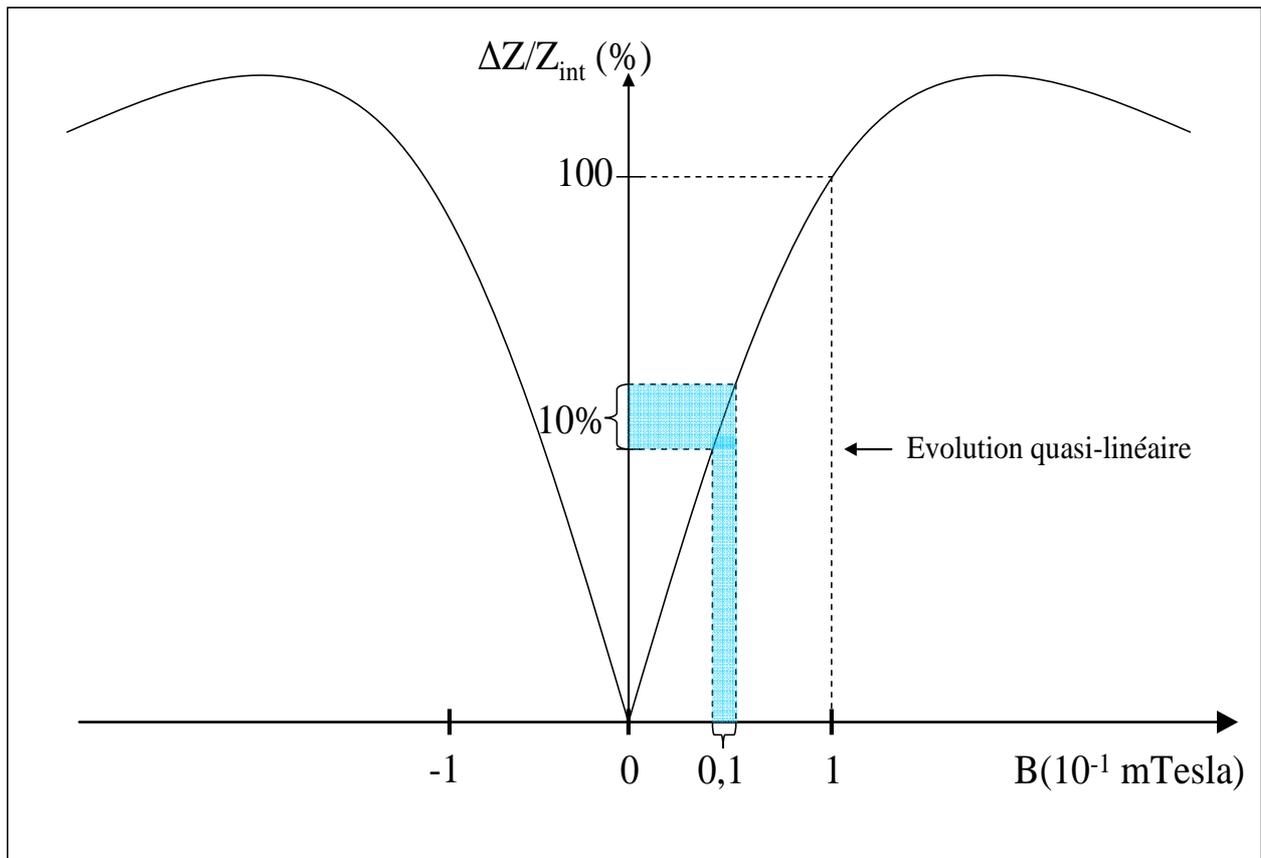


Figure I-34. Evolution typique de l'impédance relative d'un capteur à magnéto-impédance géante.

#### I.4.3. Quelques applications [59]

Il existe de nombreuses applications possibles de l'effet GMI. Certaines sont déjà développées de manière industrielle, tandis que d'autres sont étudiées en laboratoire. Parmi ces applications on trouve:

- Les détecteurs de mouvement et le contrôle de procédés

Les capteurs GMI peuvent être utilisés pour détecter le mouvement ou le passage de masses magnétiques. De tels systèmes sont utilisés avec succès dans l'industrie notamment dans le contrôle de procédés ou dans des travaux sur les véhicules intelligents [56,59].

- Le contrôle non destructif

Il s'agit ici de détecter des défauts structuraux dans des pièces mécaniques, telles que les turbines à gaz, les ailes d'avions ou les structures de centrales nucléaires. Le principe consiste à faire circuler un courant électrique dans le matériau à analyser, et de mesurer avec un capteur GMI les perturbations dans le champ magnétique produit. Ces perturbations étant causées par les défauts présents dans l'objet analysé, il est possible de les repérer [59].

- Les applications biomédicales

Les capteurs GMI peuvent être utilisés de différentes manières dans le domaine biomédical. Le traçage moléculaire peut être envisagé en fixant une substance ferromagnétique aux cellules cibles. L'imagerie cérébrale et celle du cœur peuvent également espérer de grands progrès avec l'utilisation de capteurs GMI de plus en plus sensibles. Enfin, l'utilisation des capteurs GMI dans les appareils de chirurgie non invasive est également en voie de développement [59,60].

- Les mesures de contraintes

L'application d'une contrainte à un matériau ferromagnétique en modifie la structure des domaines. Ceci a pour conséquence une variation de la réponse du capteur GMI. Des études ont été menées afin de concevoir des appareils de mesures de contraintes basés sur l'effet GMI [61-63].

### I.4.4. Origine de la Magnéto-impédance

Les mécanismes responsables de la MI diffèrent selon la gamme de fréquences du courant électrique  $I(\omega)$  parcourant le matériau ferromagnétique. Cependant, dans tous les cas, c'est la variation de la perméabilité  $\mu_t$  transverse du matériau magnétique qui est à l'origine de ces mécanismes [57,64,65].

A basses fréquences [1-10KHz], la partie inductive de l'impédance du matériau varie en fonction de  $\mu_t$ . L'application d'un champ magnétique externe modifie la valeur de  $\mu_t$  ce qui à pour conséquence la variation de l'impédance total  $Z_t$  du matériau.

A moyennes fréquences (de l'ordre du MHz) l'impédance totale du matériau est fonction de l'épaisseur de peau du courant I le parcourant. L'épaisseur de peau est elle-même fonction de la perméabilité transverse  $\mu_t$ . Comme aux basses fréquences, l'application d'un champ magnétique externe modifie  $\mu_t$  et par conséquent  $Z_t$ .

L'équation qui régit la variation de l'impédance en fonction de la perméabilité  $\mu$  est la suivante [70] :

$$Z = R_{dc} i \left( \frac{1+i}{\delta_\mu} \right) a \coth \left[ \frac{i(1+i)a}{\delta_\mu} \right]$$

Où

$R_{dc}$ : résistance électrique du film

$a$ : épaisseur du film

$i$  : nombre complexe

$\delta_\mu$ : épaisseur de peau dépendante, entre autres de la perméabilité totale du matériau  $\mu_T$

$$\delta = \frac{c}{\sqrt{2\pi\omega\sigma\mu_T}}$$

Où

$C$ : vitesse de la lumière

$\omega$ : pulsation du courant I

$\sigma$ : conductivité électrique du matériaux ferromagnétique

La perméabilité totale du matériau peut être divisée en deux composantes, la perméabilité rotationnelle  $\mu_T^{rot}$  et la perméabilité de déplacement  $\mu_T^{dep}$ .

L'effet d'un champ magnétique externe sur ces composantes de la perméabilité total peut être différent selon que le champ soit appliqué dans l'une ou l'autre des directions du capteur. Nous verrons cela plus en détail sur un cas concret au quatrième chapitre.

A hautes fréquences (de l'ordre du GHz), le phénomène prépondérant est lié à la résonance ferromagnétique que nous n'aborderons pas ici. En effet, les systèmes utilisés durant notre étude ne permettent pas de générer des courants à de telles fréquences.

### I.4.5. Les différentes configurations de capteurs GMI

Les trois formes sous lesquelles un capteur GMI peut se présenter sont : les films minces, les micro-fils et les rubans (voir Figure I-35). Nous nous intéresserons ici aux capteurs sous forme de films minces.

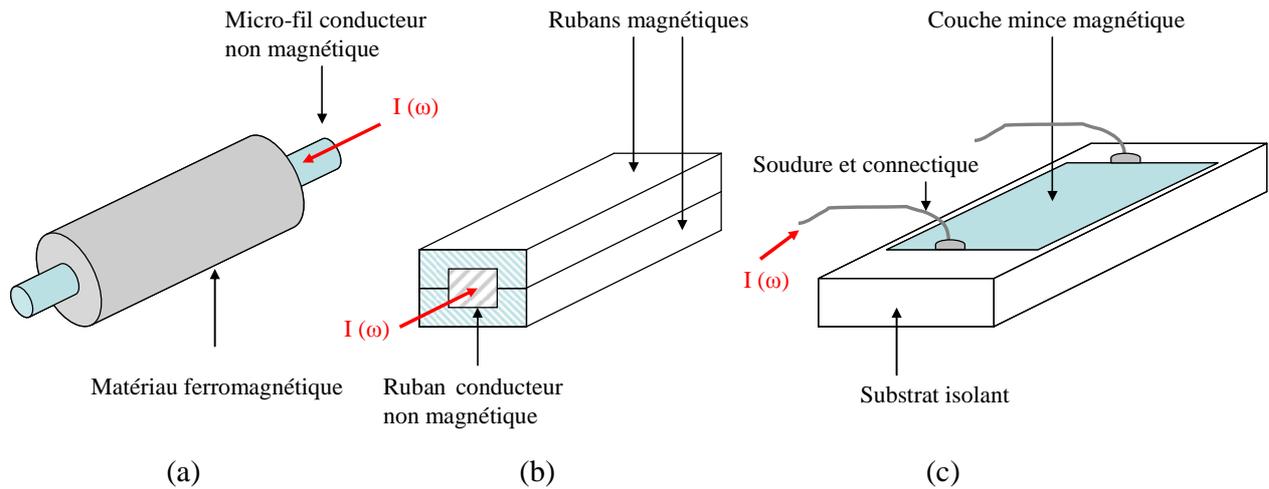


Figure I-35. Différentes configurations des capteurs GMI: a) micro-fils; b) rubans; c) couches minces.

De nombreuses études ont été menées afin de tester différents matériaux magnétiques et différentes configurations de capteurs en couches minces [61-63,66-74].

Ces études ont montré que le phénomène GMI peut être observé sur des films minces monocouches, multicouches et en structure sandwich (voir Figure I-36). La réponse des capteurs en terme de variation d'impédance est largement accrue dans les capteurs en structure sandwich. En effet, la circulation préférentielle du courant électrique dans le matériau conducteur amagnétique (généralement du cuivre) améliore le confinement des lignes de champ dans les films magnétiques. C'est aussi pour cette raison que dans le cas de l'utilisation de capteurs en structure sandwich une résistivité élevée du matériau ferromagnétique est préconisée.

Un champ coercitif faible permet d'améliorer la sensibilité des capteurs aux faibles champs magnétiques.

Une anisotropie magnétique contrôlée (faible mais non nulle), avec des parois de domaines magnétiques transverses au courant électrique  $I$  ( $\omega$ ) est recommandée afin d'interagir largement avec l'aimantation transverse produite par le courant électrique.

Une aimantation à saturation élevée permet de canaliser plus de lignes de champs magnétique ce qui permet d'amplifier l'effet magnéto-impédance.

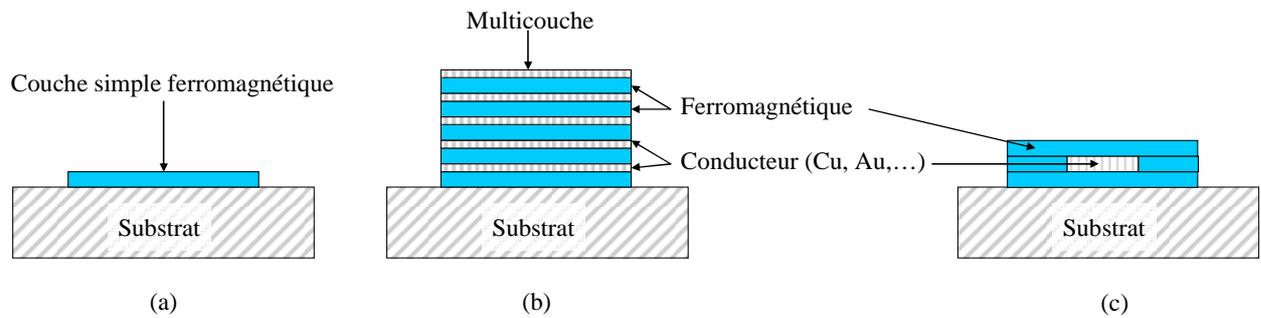


Figure I-36. Différentes configurations possibles des capteurs GMI en couches minces: a) couche simple; b) multicouches; c) structure sandwich.

## Conclusion du chapitre I

Dans ce premier chapitre, quelques rappels succincts de notions de ferromagnétisme ont été présentés. Le principe de l'élaboration de couches minces par pulvérisation cathodique magnétron a été décrit. Une attention particulière a été portée à la pulvérisation des cibles ferromagnétiques. Par la suite, nous avons exposé les propriétés structurales, magnétiques et électriques des alliages Fe-Si. Enfin, la magnéto-impédance a été abordée au travers de rappels sur le principe physique qui régit ce phénomène et d'une synthèse bibliographique présentant les différents types de capteurs GMI existants.

Nous pouvons retenir de ce chapitre que notre étude porte sur la pulvérisation cathodique magnétron de l'alliage Fe-Si (coté riche en fer). L'étude des propriétés de cet alliage en fonction de la teneur en Si sera ensuite proposé en vue d'une application dans les capteurs de champ magnétique.

## Chapitre II. Protocole expérimental et techniques de caractérisation



## Introduction

Le second chapitre s'articule en deux parties. Dans la première partie, le dispositif expérimental d'élaboration des revêtements et les modifications qui y ont été apportées sont décrits. La seconde partie traite des divers dispositifs de caractérisation utilisés durant ce travail. Nous avons distingué trois types de caractérisations : les caractérisations structurales et morphologiques, les caractérisations magnétiques et électriques permettant, entre autres, d'avoir accès aux valeurs du champ coercitif, à la direction de l'aimantation et la valeur de la résistivité des revêtements et, enfin, la caractérisation des capteurs à magnéto-impédance qui ont été élaborés à partir des revêtements étudiés.

## II.1. Matériel utilisé pour l'élaboration des couches minces

### II.1.1. Réacteur de pulvérisation

Le dispositif utilisé pour l'élaboration des films minces est constitué d'un réacteur de dépôt PVD Alcatel SCM 450 (voir Figure II-1). Ce dispositif appartient à la plate forme PVD du laboratoire LERMPS. Le corps principal du réacteur est formé d'une chambre en acier inoxydable de forme cylindrique. Le diamètre intérieur de cette chambre est de 44 cm pour une hauteur de 30 cm, soit un volume de l'enceinte d'environ 45 litres.

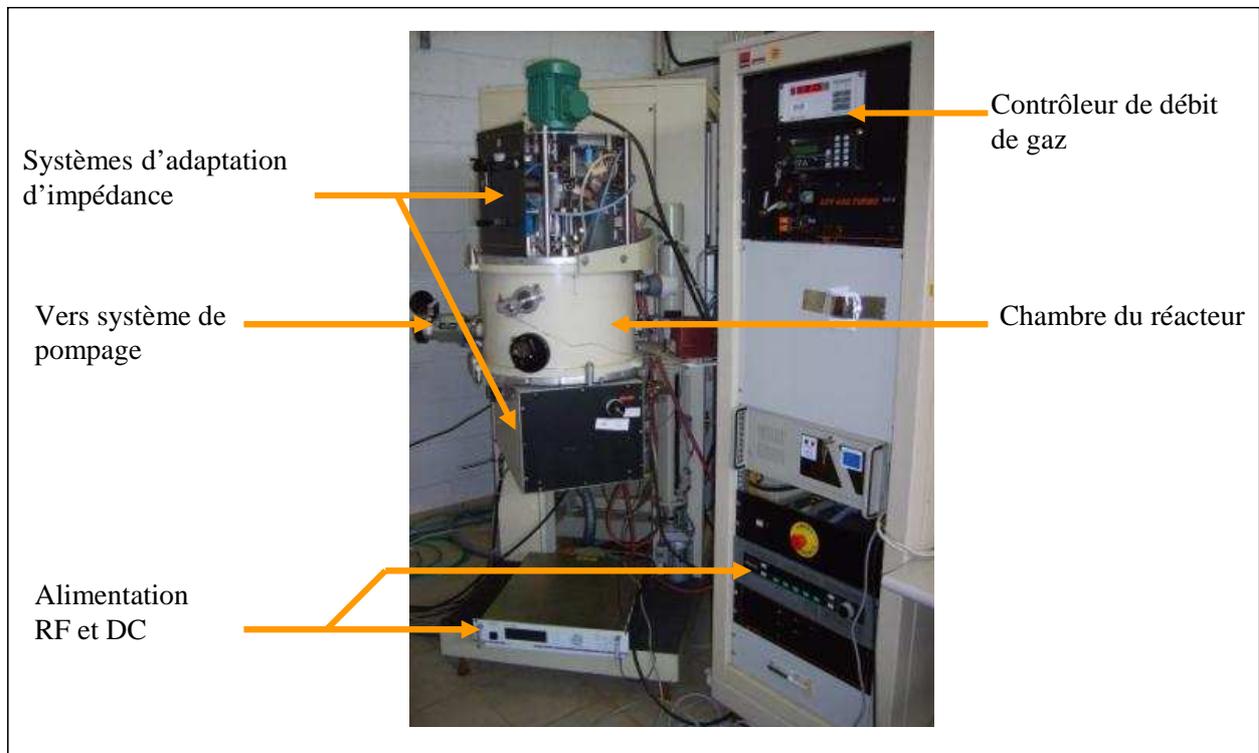


Figure II-1. Vue externe du dispositif de pulvérisation

Le système de pompage, composé d'une pompe à palette Alcatel (vide primaire) et d'une pompe turbo-moléculaire Alcatel (vide secondaire), permet d'abaisser la pression dans l'enceinte de dépôt à des valeurs de l'ordre  $9 \cdot 10^{-5}$  Pa. La pression absolue dans l'enceinte est mesurée à l'aide d'une jauge Edwards WRG à large gamme pouvant mesurer des pressions allant de l'atmosphère à  $10^{-7}$  Pa.

Différents types de gaz précurseurs purs à 99.995% peuvent être injectés dans la chambre de réaction (Ar, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub>). Au maximum trois gaz purs peuvent être injectés simultanément. Les débits de ces gaz sont contrôlés par des débitmètres massiques Brooks 5850<sup>E</sup> et la pression par une jauge MKS Baratron.

Dans la configuration de notre réacteur, les magnétrons et les cibles de pulvérisation (refroidis par circulation d'eau) sont disposés sur le plateau inférieur de la chambre de réaction. Le porte substrat (non refroidi), sur le plateau supérieur, est situé à une distance de 7 cm des cibles.

Deux types de cibles ont été utilisés durant cette étude : une cible en Fe pur à 99.5%, d'un diamètre de 15 cm et de 1 mm d'épaisseur et une cible en Si faiblement dopé d'un diamètre de 15 cm et de 6 mm d'épaisseur.

Chaque magnétron peut être polarisé séparément et différents générateurs peuvent être utilisés pour cette polarisation.

Deux générateurs DC (Advanced Energie Pinnacle Series et Advanced Energie MDX Series 500W) ont été utilisés pour pulvériser la cible en Si. Le signal délivré par ces générateurs peut être réglé aussi bien en puissance qu'en tension ou en courant. La régulation en courant est le mode utilisé dans notre étude.

Deux générateur RF (Advanced Energie Cesar et Alcatel ARF 1201) ont été utilisés pour pulvériser les cibles en fer. Le mode de régulation choisi pour ces générateurs est une régulation en puissance.

Une polarisation du substrat en DC ou en RF est possible durant le processus de pulvérisation.

Un cache amovible est disposé entre les cibles et le substrat afin de pré-pulvériser les cibles ou les substrats. Cette opération permet de pulvériser les premières monocouches d'oxyde présentes sur le substrat et les cibles.

Un chemisage en aluminium protège les parois intérieures de la chambre de réaction. Ce chemisage doit être changé à chaque fois que la matière qui s'y est déposée durant les dépôts menace de s'écailler et de contaminer les cibles.

L'ensemble des éléments du bâti de pulvérisation est schématisé sur la Figure II-2.

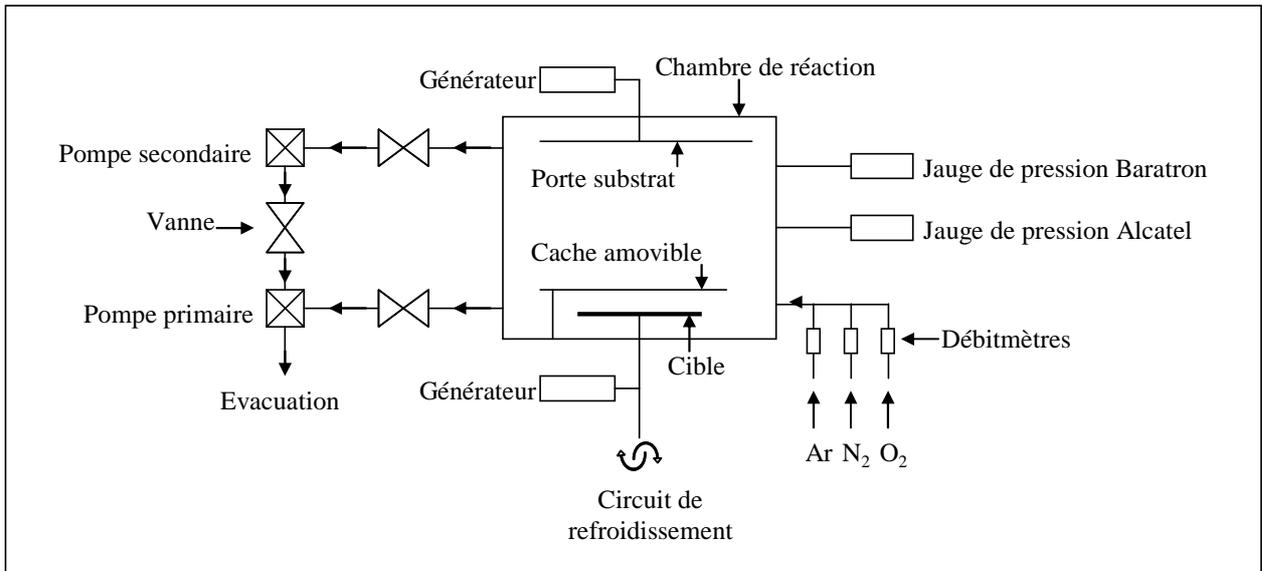


Figure II-2. Schéma du bâti de pulvérisation.

### II.1.2. Modifications et améliorations apportées au réacteur pour l'élaboration d'alliages à forte teneur en Si

Le réacteur dans sa forme initiale possédait deux cibles et un porte substrat fixe. L'éloignement des deux cibles ne permettait l'utilisation des deux magnétons simultanément puisque les flux métalliques qui en sont issus ne se recouvrent pas de manière optimale (Figure II-3).

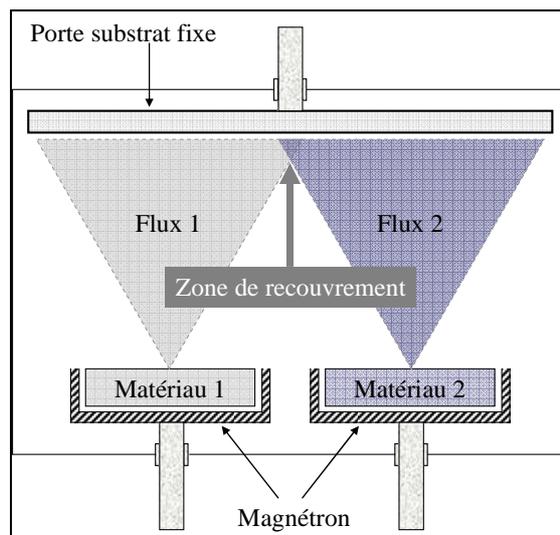


Figure II-3. Schéma représentatif des flux pulvérisés à partir de deux cibles.

Dans ces conditions, l'élaboration d'un alliage passe donc obligatoirement par la pulvérisation d'une cible composite. Ainsi, nos premiers films de Fe-Si ont été réalisés par la pulvérisation d'une cible composite constituée de pastilles de Si découpées dans un wafer et disposées sur la zone d'érosion d'une cible en Fer (Figure II-4).

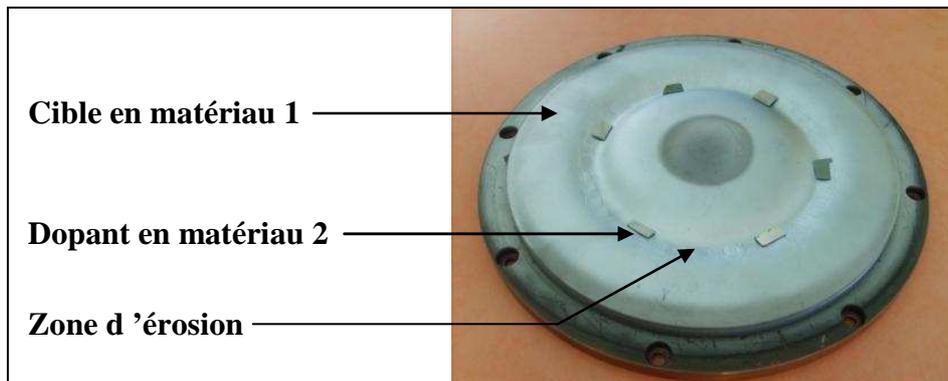


Figure II-4. Cible composite composée de deux matériaux.

Il est possible par cette technique de contrôler la teneur en Si de l'alliage déposé par la modification du nombre de pastilles en Si disposées à la surface de la cible en fer. Cette technique présente, cependant, quelques inconvénients. D'abord, un échauffement important des pastilles en Si qui ne sont pas en contact direct avec le circuit de refroidissement et un manque de reproductibilité des expériences lié au mauvais remplacement des pastilles d'un dépôt à l'autre, une homogénéité du dépôt en composition et en épaisseur limitée et, enfin, la limitation de la teneur en Si dans les revêtements à environ 15 at%. Au-delà, toute la zone d'érosion est recouverte par le Si et l'ajout de pastilles sur une autre zone affecte encore plus l'homogénéité en composition du revêtement.

La solution apportée a été de modifier le réacteur de pulvérisation. Pour cela, nous avons réalisé un porte substrat rotatif pouvant être polarisé indépendamment du reste de l'enceinte. Une troisième cible a également été ajoutée aux deux déjà existantes afin de permettre l'élaboration d'alliages Fe-Si avec une teneur en Si pouvant aller de 0 à 100 at%. Ce système possède en plus l'avantage d'augmenter la surface exploitable sur le porte substrat en améliorant l'homogénéité en composition et en épaisseur des revêtements élaborés. Ces résultats seront présentés au chapitre suivant (voir §III.1.1.3 et §III.2.1.1). La Figure II-5 présente un schéma du réacteur après modification.

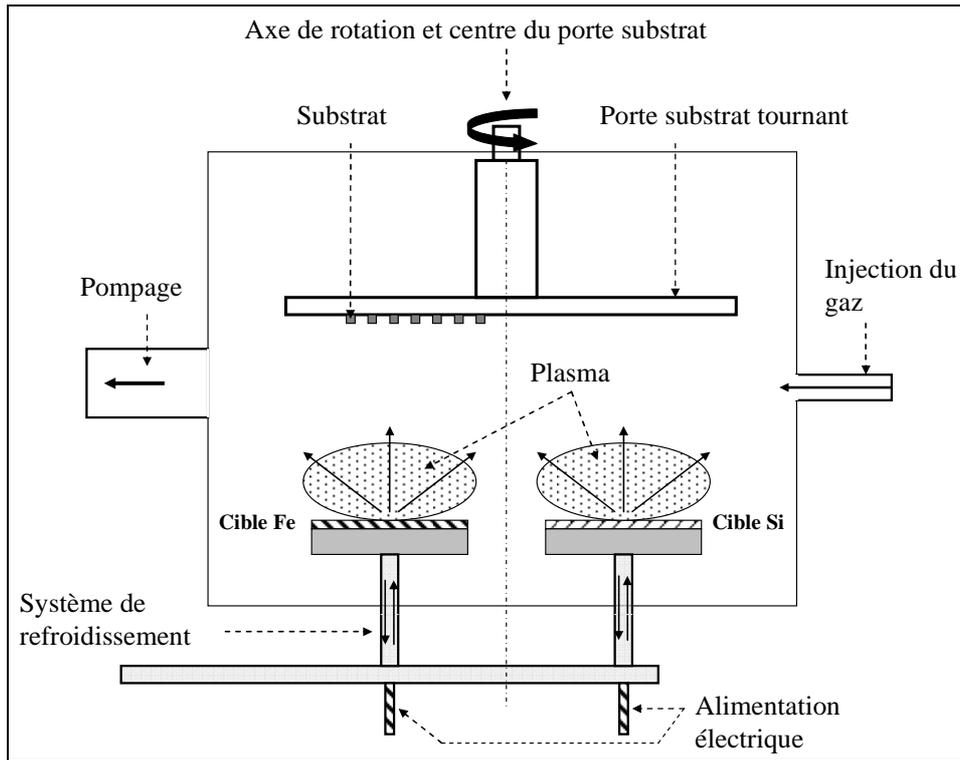


Figure II-5. Chambre de réaction en configuration co-pulvérisation.

### II.1.3. Protocole expérimental pour la pulvérisation des cibles en Fer

La pulvérisation de cibles en fer pose de nombreux problèmes. La première difficulté est de maintenir la décharge en DC. Le fer étant un matériau ferromagnétique il canalise le flux magnétique circulant entre les aimants extérieur et intérieur du magnétron. Ainsi, seule une faible partie des lignes de champ traverse l'espace situé au dessus de la cible, diminuant de ce fait les avantages du système magnétron. Si l'induction magnétique dans l'espace situé au dessus des cibles est inférieure à 20 mT, il devient impossible de maintenir une décharge DC à des pressions d'argon de l'ordre du pascal et des tensions inférieures à 1000V. Les tests, réalisés dans le réacteur SCM450 à une pression maximum de 1.5 Pa d'argon et avec des cibles en fer de 1 mm d'épaisseur ont montré l'impossibilité de maintenir une décharge en DC ou DC pulsé avec les magnétrons existants dans ces conditions. Seule la polarisation en RF a permis de maintenir une décharge. Comme nous l'avons vu au chapitre précédent, la polarisation RF permet de maintenir une décharge à une pression seuil inférieure à celle de la décharge DC.

- **La polarisation retenue pour la pulvérisation des cibles en fer est la RF.**

Une seconde difficulté se pose en termes de modification des paramètres électriques au cours de la pulvérisation. En effet, la vitesse d'érosion d'une cible ferromagnétique varie

fortement au cours du temps. Plus la cible s'érode, plus l'intensité des lignes de champ qui traversent la cible augmente. Ceci aura pour effet d'augmenter la densité de plasma et donc la vitesse d'érosion de la cible. Cette augmentation nuit au contrôle du procédé d'élaboration. La vitesse de croissance des films élaborés et leur composition sont directement liées aux variations de la vitesse d'érosion de la cible en fer. D'un point de vue électrique, l'augmentation de la vitesse d'érosion des cibles en fer se traduit par une diminution de la tension de polarisation lorsque les cibles sont alimentées en RF (Figure II-6). Afin de limiter les inconvénients liés à ce phénomène, nous avons établi une condition d'utilisation des cibles en fer:

- Une cible neuve de 1 mm d'épaisseur peut être utilisée tant que la chute de la tension de polarisation pour une puissance injectée de 300 W n'excède pas 150 V.

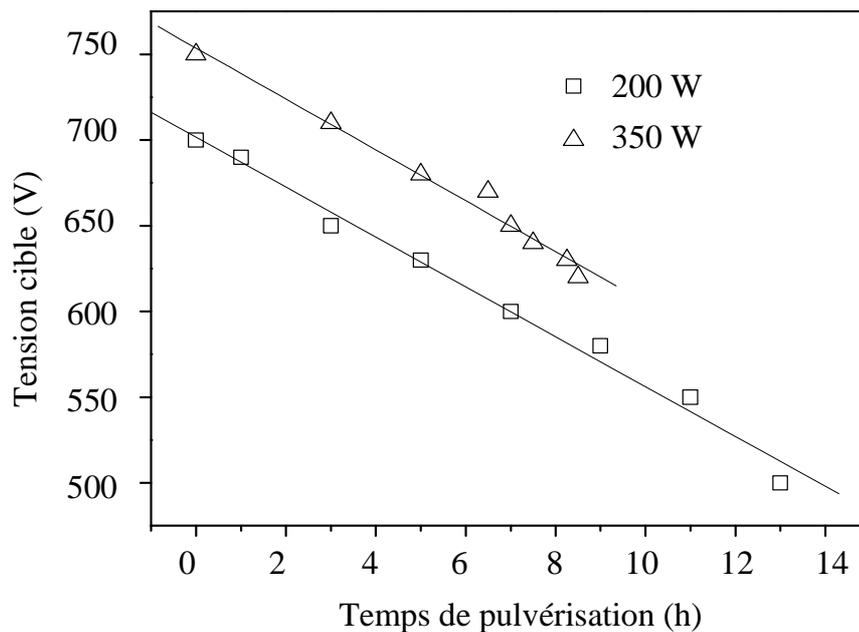


Figure II-6. Evolution de la tension de polarisation de la cible en fer en fonction du temps de pulvérisation pour différentes puissances injectées.

Cette précaution a permis de maintenir des vitesses d'érosion comparables pour tous les dépôts et, ainsi, de mieux contrôler l'épaisseur et la composition des revêtements élaborés.

## II.2. Moyens de caractérisation

Différents moyens de caractérisation ont été employés durant cette étude. Nous proposons dans ce qui suit de rappeler brièvement le principe de fonctionnement des principaux d'entre eux. Trois catégories d'analyses ont été réalisées sur nos revêtements: il s'agit de caractérisations structurale et morphologique, de caractérisations magnétique et électrique et enfin de caractérisation des capteurs.

### II.2.1. Caractérisations structurale et morphologique

#### II.2.1.1. Diffractomètre de rayons X (DRX)

La Diffraction des rayons X est une technique d'analyse qui permet de déterminer la structure des différentes phases d'un matériau massif, d'une poudre ou d'un film mince. Cette analyse est basée sur la diffraction des rayons X par le réseau cristallin de la matière (Figure II-7(a)).

Un cliché de diffraction se présente sous la forme d'un diagramme représentant l'intensité des rayons X diffractés en fonction de l'angle de diffraction. Un exemple est présenté sur la Figure II-7(b)

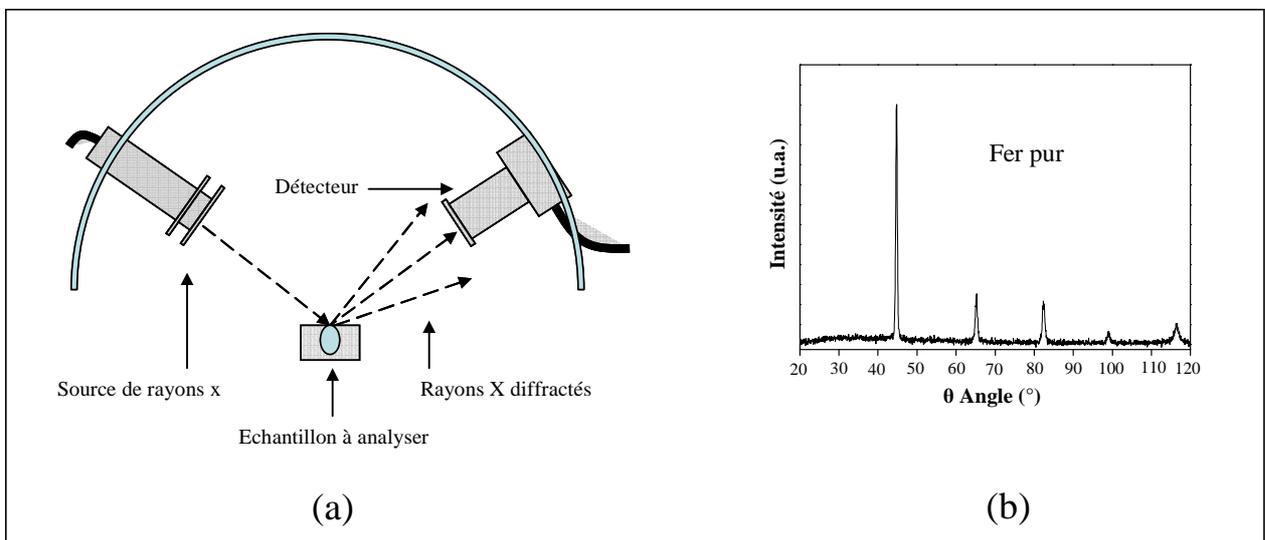


Figure II-7. a) Schéma descriptif du diffractomètre de rayons X - b) Diagramme de diffraction d'un revêtement de Fer pur en incidence rasante.

Le diffractomètre de rayons X utilisé pour caractériser nos échantillons est de marque Bruker D8 focus. Il est équipé d'une source de Cobalt ( $1,78897 \text{ \AA}$ ) et peut être utilisé dans les deux modes de diffraction rasant et source tournante  $\theta$ - $2\theta$ . Le mode  $\theta$ - $2\theta$  permettant d'évaluer la taille de grains diffractant dans les films minces analysés.

#### II.2.1.2. Microscopie électronique à balayage (MEB)

La microscopie électronique à balayage est une technique d'imagerie non destructive.

Le MEB utilisé lors de nos travaux est un microscope **JEOL JSM-5800LV**. Le grandissement maximum de ce dispositif est de 50000 et sa résolution latérale de 100 nm. La tension d'accélération des électrons varie entre 10 et 30 kV en fonction du grandissement désiré.

La microscopie électronique à balayage peut également être utilisée pour mesurer des épaisseurs de revêtements sur des profils de rupture. La Figure II-8 représente une image en MEB du faciès de rupture de l'un de nos revêtements de Fe-Si déposé sur wafer en Si.

Pour les revêtements suffisamment épais, le grossissement du microscope permet d'observer la morphologie du dépôt (colonnaire ou dense).

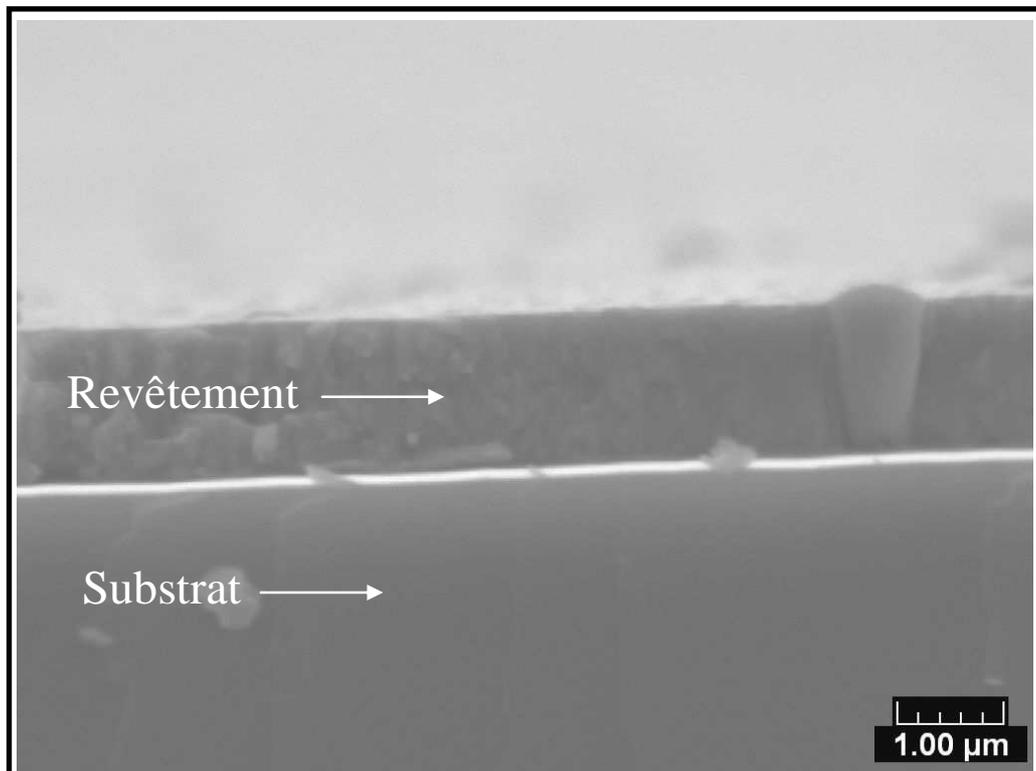


Figure II-8. Photographie MEB du faciès de rupture d'un revêtement de Fe-Si déposé sur substrat en Si monocristallin.

II.2.1.3. Spectroscopie à décharge lumineuse (SDL) ou (GDOES) pour Glow Discharge Optical Emission Spectroscopy

La SDL permet de mesurer le profil de composition d'un échantillon en profondeur. Le seuil de détection de l'appareillage utilisé (LECO GDS-750A) est de 10 ppm pour les métaux et métalloïdes lourds. La SDL est une technique destructive et qui ne s'applique (dans le cas de l'appareillage utilisé) que sur films et substrats conducteurs. Une autre limitation de l'appareillage utilisé est sa faible résolution en profondeur, ce qui limite l'épaisseur minimum des revêtements analysés à 0,5  $\mu\text{m}$ . Par ailleurs, l'étude de concentration locale d'un composé dans la matrice analysée est impossible.

- Une calibration sur témoins de composition certifiée est nécessaire avant d'effectuer une mesure SDL. Les témoins ayant servi à la calibration lors de notre étude sont les suivants: **Fe, O, Si, Cu**, Cr, W, Nb, Ti, Zr, N, Al, Ni, C.

Un exemple de profil SDL d'un échantillon Fe-Si déposé sur substrat Cu est présenté sur la Figure II-9. Il met en évidence l'évolution de la composition en fonction du temps d'analyse. Il est possible de convertir le temps d'analyse en profondeur si l'on connaît l'épaisseur du revêtement. La précision de l'appareillage utilisé est de 5 at.%.

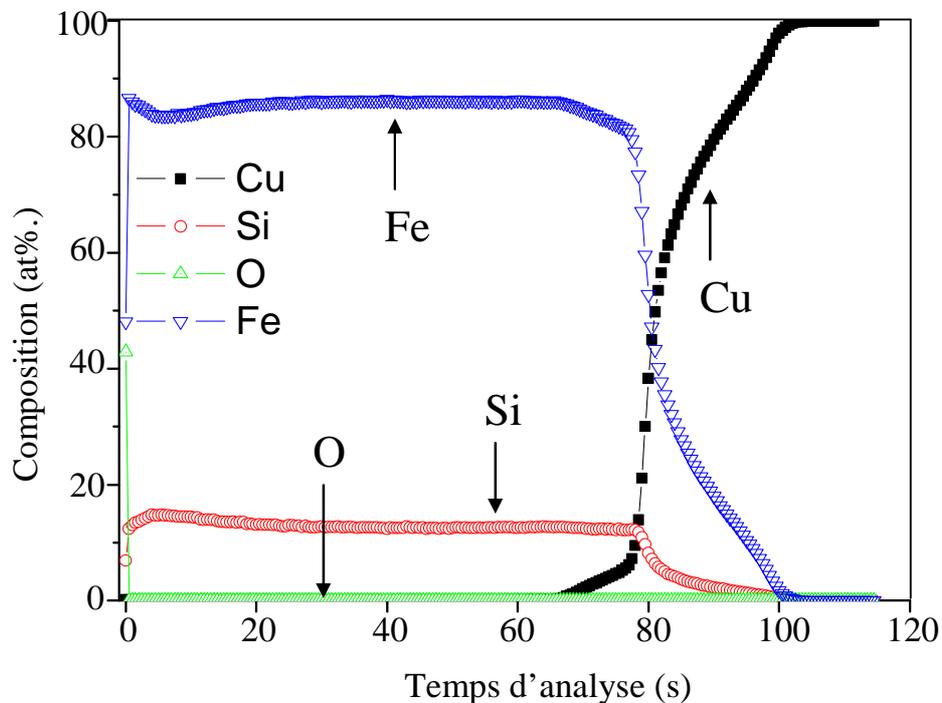


Figure II-9. Mesure par SDL de la composition d'un revêtement FeSi sur substrat en Cu (notre étude).

II.2.1.4. Spectroscopie par dispersion d'énergie des photons X

L'EDS est une technique d'analyse, non destructive, qui permet une mesure qualitative et quantitative des éléments présents dans un échantillon. L'analyse quantitative est limitée aux éléments du tableau périodique dont le numéro atomique est supérieur à celui du sodium. Il est par exemple impossible de mesurer la teneur en oxygène dans un revêtement par cette technique. La sonde EDS employée (Princeton Gamma Tech) est couplée à l'appareil d'imagerie par microscopie électronique à balayage MEB décrit plus haut.

Le résultat d'une analyse EDS sur un échantillon de Fe-Si est présenté sur la Figure II-10. Il met en évidence le comptage des rayons X en fonction de leur énergie. Ces données sont traitées par le logiciel SPIRIT qui permet d'identifier la nature et la quantité des éléments présents dans l'échantillon automatiquement.

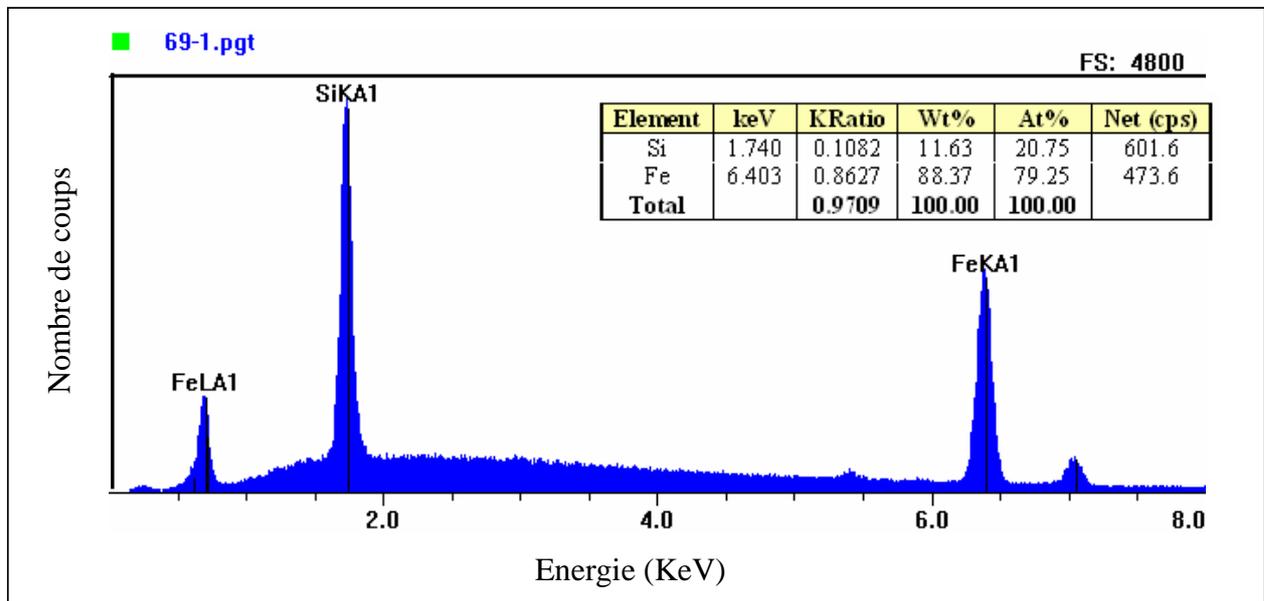


Figure II-10. Spectre d'analyse EDS d'un revêtement Fe-Si

II.2.1.5. Mesures d'épaisseur par profilométrie

La profilométrie est une méthode de mesure d'épaisseur simple et rapide à mettre en œuvre. L'appareillage utilisé lors de nos travaux est un profilomètre Altisurf 500, ainsi qu'un logiciel de traitement des résultats Altimap. La gamme de mesure de ce dispositif est de 1,7 nm à 109 µm. Une calibration sur étalon MAHR de 8,5 µm est effectuée avant toute série de mesure. La précision sur les mesures est de 100 nm sur la gamme utilisée. Cependant, afin d'augmenter la fiabilité de la mesure qui peut être altérée par une hétérogénéité locale de

l'épaisseur (arrachement du revêtement), plusieurs mesures sont effectuées autour d'un même point. Un exemple de mesure est présenté sur la Figure II-11.

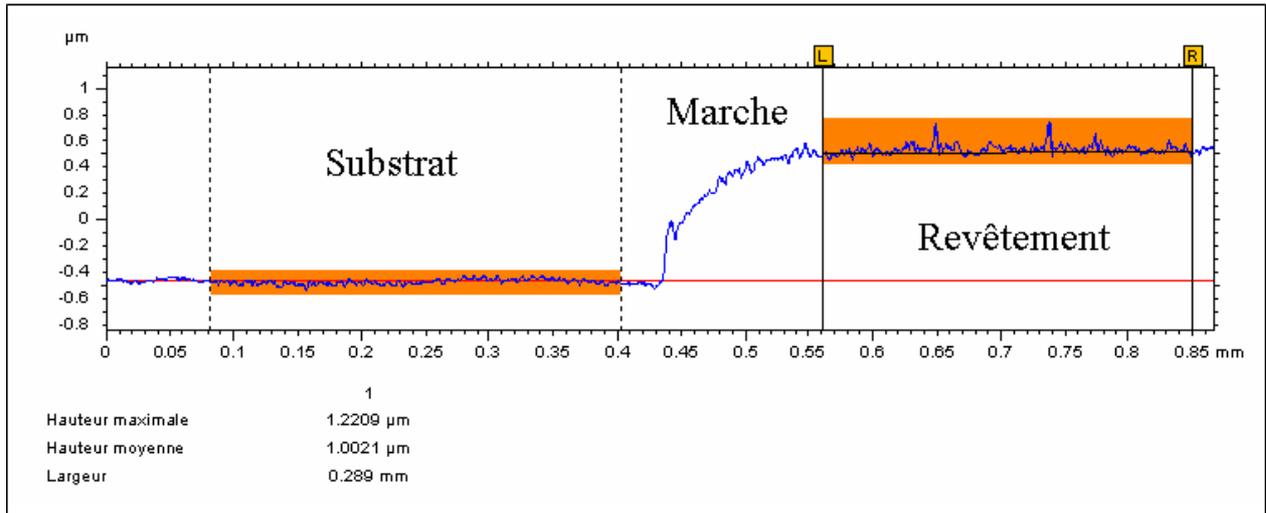


Figure II-11. Capture d'écran d'une mesure d'épaisseur effectuée par profilométrie.

## II.2.2. Mesures Magnétiques et électriques

### II.2.2.1. Magnétomètre à échantillon vibrant (VSM)

Le VSM est un appareil de mesures magnétiques qui permet de tracer le cycle d'hystérésis d'un matériau. Rappelons que le cycle d'hystérésis représente l'aimantation du matériau magnétique en fonction du champ magnétique extérieur appliqué Figure II-12.

Dans le cas de matériaux ferromagnétiques, les grandeurs accessibles via le cycle d'hystérésis sont : le champ coercitif  $H_c$ , l'aimantation à saturation  $B_s$ , l'aimantation rémanente  $B_r$ , le champ saturant  $H_s$  et, si la courbe de première aimantation peut être tracée il est en plus possible d'avoir accès à la perméabilité initiale  $\mu_i$  et maximum  $\mu_m$  du matériau.

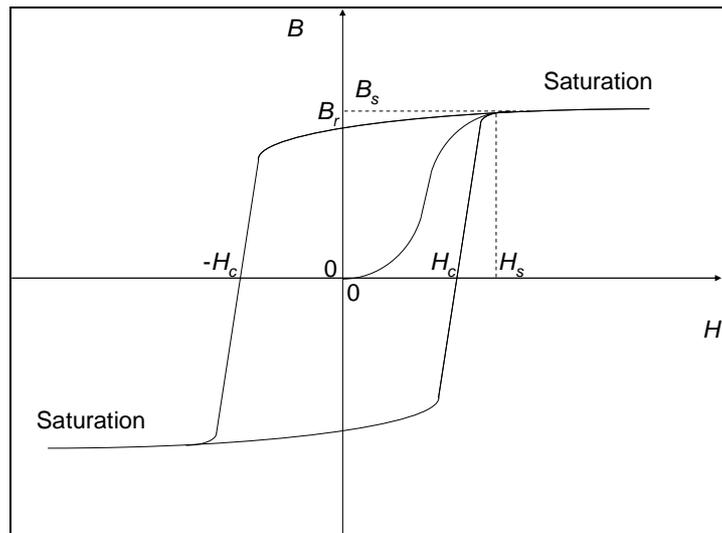


Figure II-12. Cycle d'hystérésis d'un matériau ferromagnétique.

Le dispositif expérimental est composé d'un électro-aimant et d'un système mécanique permettant de faire vibrer l'échantillon dans l'entrefer de l'électro-aimant (Figure II-13). Des bobines de mesure, disposées de manière appropriée dans l'entrefer, permettent de mesurer la variation de flux induite par le mouvement de l'échantillon magnétique. Les valeurs de fréquence et d'amplitude de vibration de l'échantillon sont fixes.

En faisant varier l'intensité du champ magnétique produit par l'électro-aimant, il est possible de tracer la réponse du matériau magnétique au champ appliqué et, ainsi, d'obtenir le tracé du cycle d'hystérésis dans le cas d'un matériau ferromagnétique.

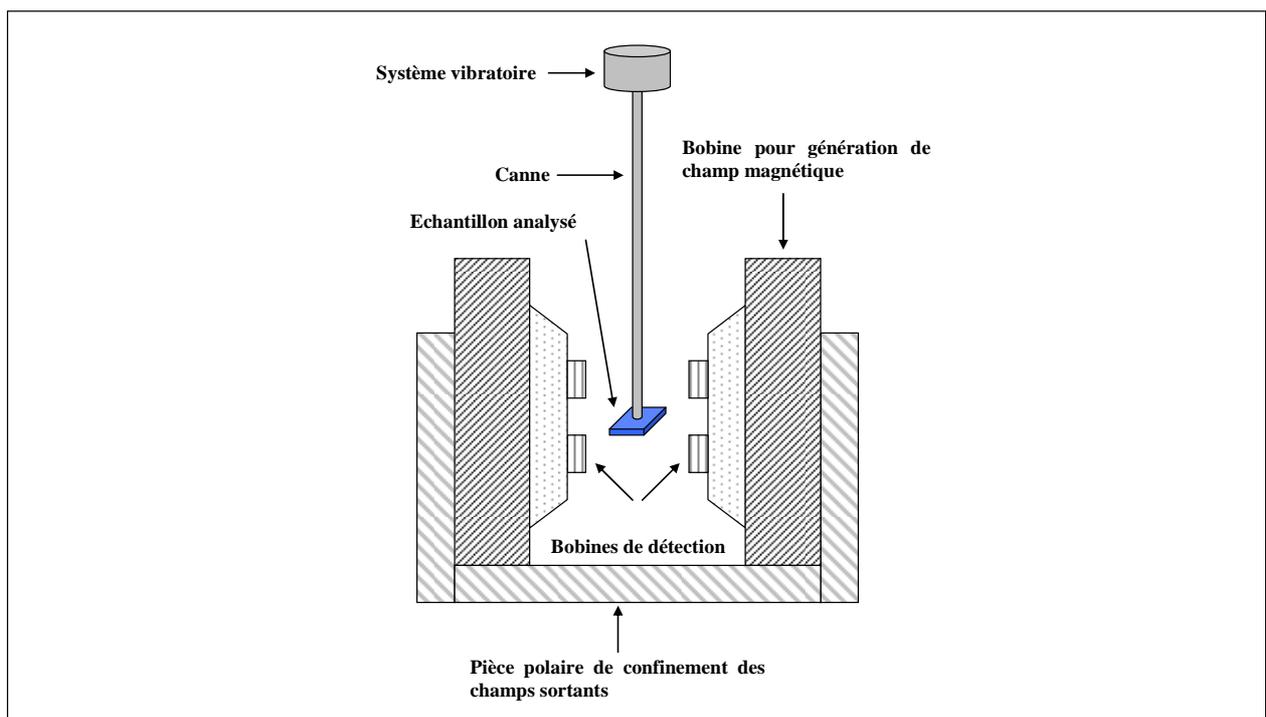


Figure II-13. Schéma représentatif du magnétomètre à échantillon vibrant.

Différentes configurations de mesure sont autorisées dans un VSM Figure II-14.

- Mesure avec un champ magnétique parallèle au substrat, utilisée dans le cas où l'axe de facile aimantation se situe dans le plan. Dans cette configuration, il est possible de mettre en évidence une anisotropie magnétique dans le plan, si elle existe, par l'application d'un champ magnétique externe dans différentes directions (Figure II-14-(a)).
- Mesure avec un champ magnétique perpendiculaire au substrat, utilisée lorsque l'aimantation est perpendiculaire au substrat ou dans un plan perpendiculaire au substrat (Figure II-14-(b))

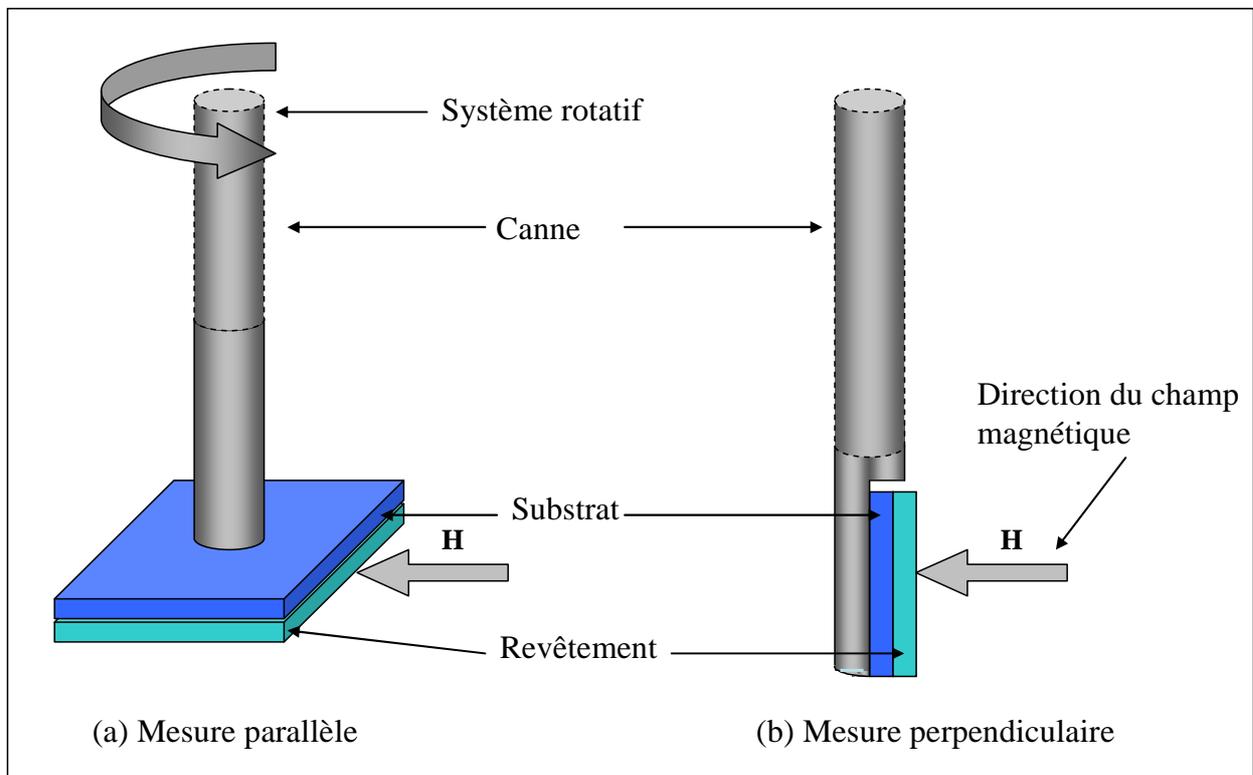


Figure II-14. Configurations de mesures magnétiques dans le VSM.

Dans le cadre de notre étude, deux VSM ont été utilisés. Le premier VSM fait partie du service commun de magnétisme de l'université Henry Poincaré Nancy 1. Ce VSM est composé d'un électroaimant pouvant produire un champ magnétique maximum de 20000 G Figure II-15. Le système d'acquisition (marque Lake Shore) permet d'effectuer un balayage en champ avec un pas de 0.5 G. Un logiciel, permet de visualiser sur un écran d'ordinateur le cycle d'hystérésis pendant la mesure puis de récupérer les données sous forme numérique.

Le second VSM utilisé appartient au laboratoire Systèmes et Applications des Technologies de l'Information et de l'Energie (SATIE) UMR-8029. Il s'agit d'un VSM conçu dans le laboratoire. Son électroaimant permet de délivrer un champ magnétique maximum de 9000G. Un logiciel réalisé avec Matlab, développé au sein du laboratoire SATIE, permet un traitement en temps réel des signaux et l'affichage du cycle d'hystérésis sur une interface graphique.

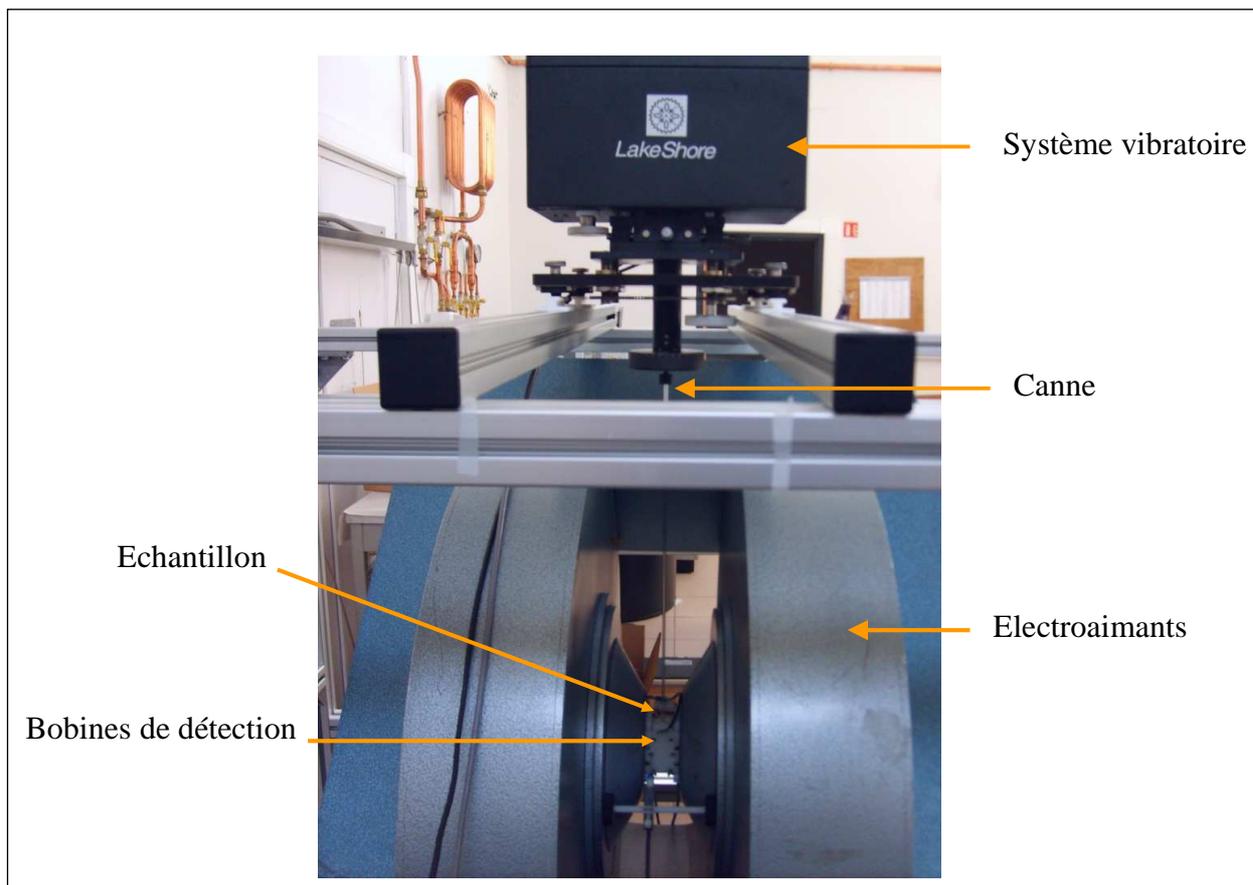


Figure II-15. Photographie du VSM utilisé (avec autorisation du Ipm).

#### II.2.2.2. Observation des domaines magnétiques par Effet Kerr Magnéto-Optique (MOKE)

L'effet Kerr magnéto-optique s'observe par la réflexion d'une lumière polarisée rectilignement sur un matériau magnétique. L'interaction magnéto-optique cause une différenciation des deux ondes circulaires composant l'onde incidente. Il est possible à travers un analyseur de reconstruire une image de la surface du matériau en terme de domaines magnétiques. En effet, chaque domaine magnétique possède une aimantation cohérente. La modification de la polarisation de l'onde incidente sera donc la même pour toutes les ondes

incidentes sur le même domaine et différente de celle d'un domaine orienté différemment [17,78]

Il est possible d'utiliser l'effet Kerr dans trois configurations différentes (Figure II-16). Chaque configuration traduit l'orientation relative entre l'onde incidente et l'aimantation dans le matériau. L'effet Kerr longitudinal est induit par l'interaction entre l'onde incidente et l'aimantation parallèle à la surface comprise dans le plan d'incidence  $M_y$  (Figure II-16(a)). Lorsque c'est l'aimantation parallèle à la surface et perpendiculaire au plan d'incidence  $M_x$  qui interagit avec l'onde incidente il s'agit de l'effet Kerr transverse (Figure II-16(b)). Enfin, lorsque l'aimantation est perpendiculaire à la surface  $M_z$  c'est l'effet Kerr polaire - Figure II-16(c).

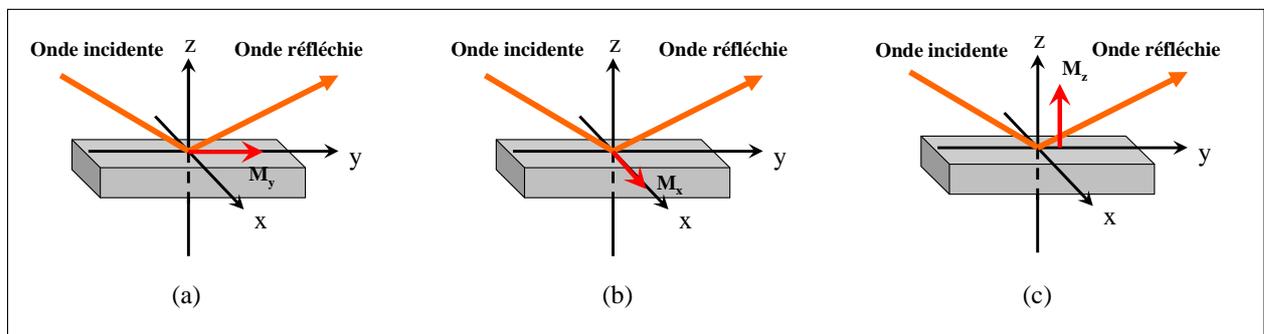


Figure II-16. Différentes configurations de l'effet Kerr magnéto-optique:  
(a) Longitudinale; (b) Transverse; (c) Polaire.

L'appareillage utilisé durant notre étude est un microscope à effet Kerr longitudinal appartenant à l'unité mixte de recherche UMR 8029 du laboratoire Systèmes et Applications de l'Information et de l'Energie (SATIE-ENS Cachan). Il est souvent difficile d'observer à l'œil nu les domaines magnétiques à la surface des échantillons analysés. Afin d'améliorer les observations, un traitement numérique de l'image permet de soustraire le bruit en temps réel et d'améliorer la qualité de l'image observée.

Dans la pratique un microscope à effet Kerr longitudinal est constitué d'une source lumineuse et d'un polariseur dont le rôle est de polariser la lumière rectilignement. Une bobine d'induction et un circuit en ferrite assurent l'aimantation à saturation de l'échantillon. Le signal enregistré à saturation est ensuite soustrait à l'image de l'échantillon désaimanté. Enfin, un système d'acquisition permet d'observer sur un écran une image en noir et blanc où chaque ton représente un domaine magnétique orienté en sens inverse ( Figure II-17).

Le principe même de fonctionnement du microscope interdit l'observation des domaines qui seraient orientés dans un autre sens que le sens longitudinal. Aussi, il est parfois

nécessaire de repositionner l'échantillon dans le sens du champ magnétique créé par la bobine pour effectuer les observations. De même, les domaines magnétiques inclinés par rapport au sens longitudinal (c'est le cas de l'image présentée dans la Figure II-17) seront moins contrastés que ceux qui s'alignent parfaitement dessus.

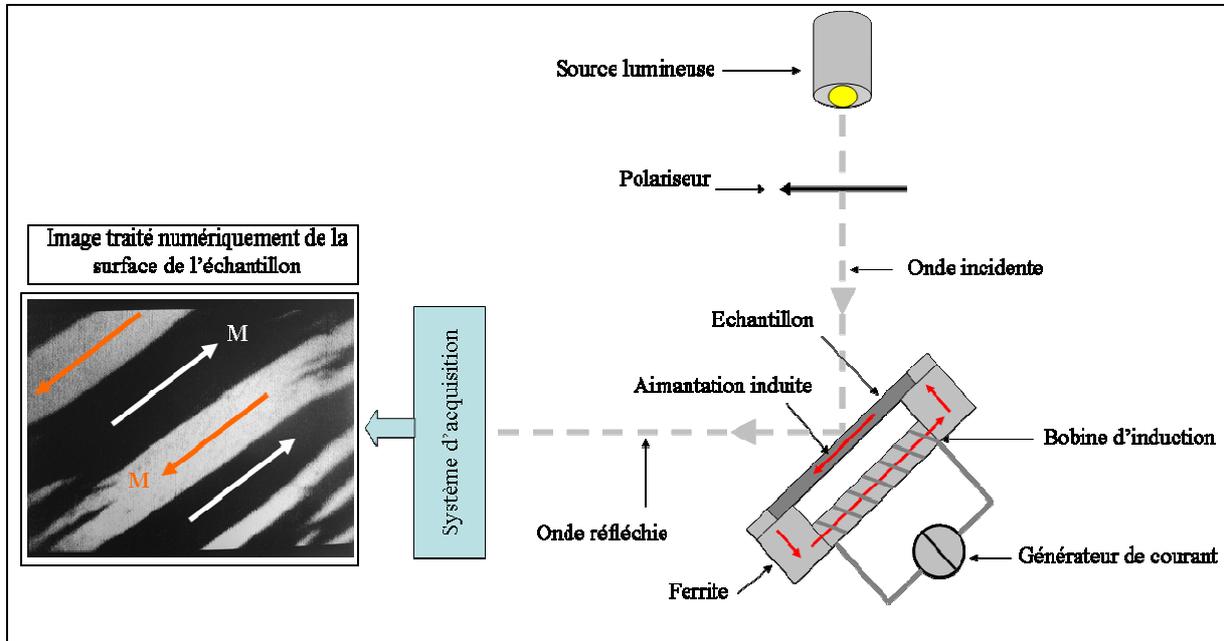


Figure II-17. Schéma représentatif du microscope à effet Kerr et image réelle obtenue (dimension 2x3 mm).

### II.2.2.3. Mesure de résistivité par méthode quatre points

Les mesures de résistivité sont réalisées par une technique appelée "*méthode des quatre pointes*" ou "*méthode de Van der Pauw*". C'est une technique simple, rapide et relativement fiable à condition de connaître précisément les épaisseurs des revêtements dont l'on désire mesurer la résistivité et que le substrat soit isolant. Cette technique est basée sur l'application de quatre pointes conductrices sur la surface à analyser. Deux des pointes serviront à injecter un courant (de l'ordre du mA pour nos revêtements), tandis que les deux autres serviront à la mesure de la tension.

Dans le cadre de notre étude, nous avons utilisé un appareil de résistivité quatre pointes appartenant au Laboratoire des Sciences et Génie des Surfaces, U.M.R. CNRS 7570 (Ecole des mines de Nancy).

La relation reliant la résistivité à la tension mesurée et à l'épaisseur du revêtement est la suivante :

$$\rho = \frac{U}{I} \times e \times 4.53$$

où:  $\rho$  est la résistivité en [ $\Omega.m$ ],  $U$  la tension mesurée en [V],  $I$  le courant injecté en [A] et  $e$  l'épaisseur du revêtement en [m].

Le facteur 4.53 est un coefficient qui se rapporte au facteur de forme lié à la configuration des pointes.

#### II.2.2.4. Test des capteurs

La structure des capteurs à magnéto-impédance que nous avons élaborés est la structure sandwich. Rappelons que dans cette structure (qui offre les meilleures performances), les capteurs sont constitués d'un matériau conducteur en couche mince intercalé entre deux couches ferromagnétiques. Le principe du capteur à magnéto-impédance est que pour un courant  $I$ , d'intensité et de fréquence données, qui traverse l'élément conducteur du capteur, l'impédance mesurée varie lorsque le champ magnétique externe  $H$  évolue (voir § I.4.2.

Dans le cadre de notre étude le conducteur est constitué de cuivre et les couches ferromagnétiques d'un alliage Fe-Si. Les dimensions des capteurs élaborés seront présentées en détail dans le chapitre suivant. Les principaux éléments du banc de test de capteur sont l'impédancemètre et la source de champ magnétique externe. Les capteurs élaborés durant notre étude ont été caractérisés au sein du Laboratoire de Génie Electrique de Paris (LGEP) à l'aide d'un banc de mesure doté du matériel suivant :

- ✓ Une alimentation électrique permettant de délivrer un courant électrique de fréquence  $f$  pouvant varier entre 0,1 et 20 MHz. Ce courant est injecté dans le conducteur en cuivre du capteur.
- ✓ Un impédancemètre servant à mesurer l'impédance aux bornes du capteur.
- ✓ Des bobines de Helmholtz reliées à un générateur de courant stabilisé permettant de générer un champ magnétique  $H$  pouvant varier de 0 à 6,5 kA/m. Le capteur peut être positionné parallèlement ou perpendiculairement au champ magnétique  $H$ .

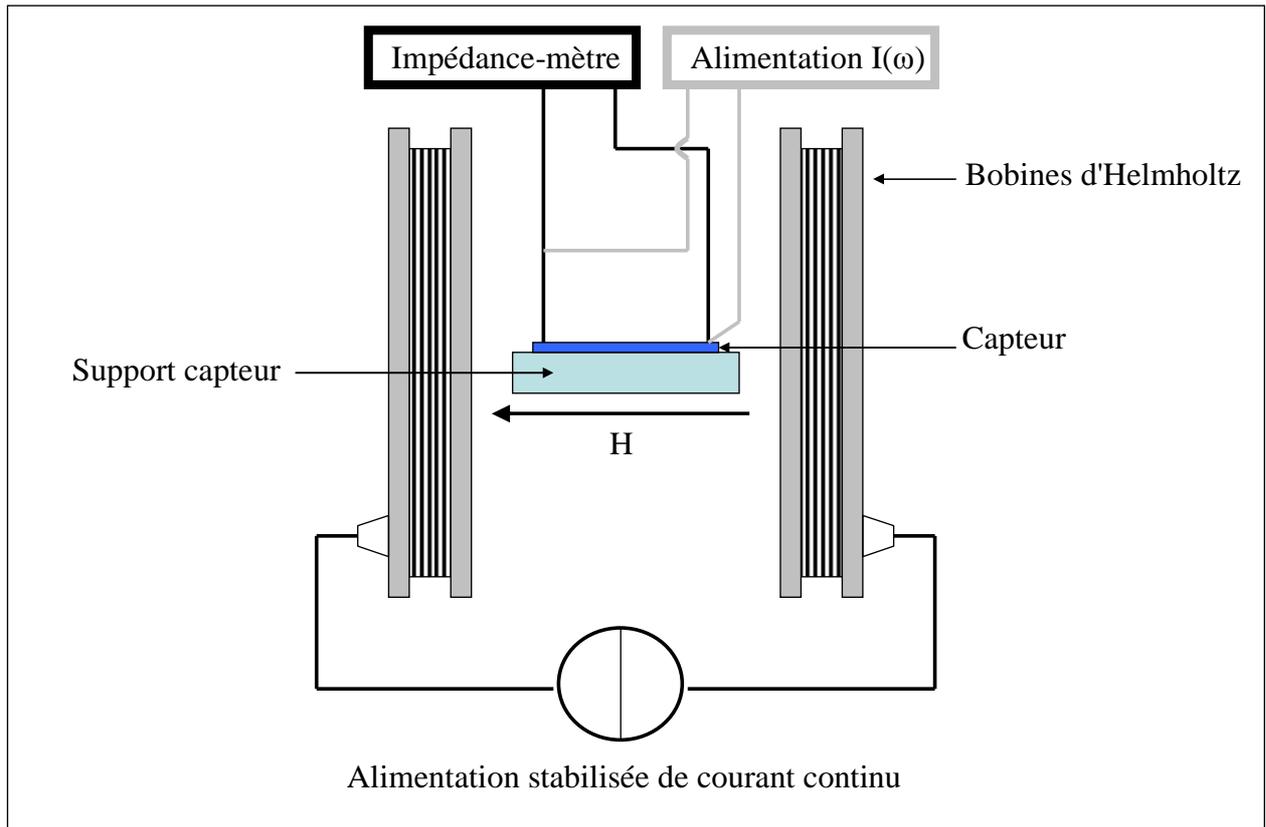


Figure II-18. Schéma du banc de caractérisation des capteurs à magnéto-impédance.

## Conclusion du chapitre II

Dans ce chapitre sont décrits le dispositif expérimental que nous avons utilisé dans l'élaboration des films minces ainsi que les diverses améliorations que nous y avons apporté. Le protocole expérimental que nous avons établi afin de pulvériser les cibles ferromagnétiques de fer est exposé. Nous avons également présenté les différentes techniques de caractérisation de couches minces auxquelles nous avons eu recours. Enfin, nous avons décrit le dispositif utilisé pour étudier la fonctionnalité des capteurs à magnéto-impédance élaborés durant notre étude.

## Chapitre III. Résultats expérimentaux et discussion



## Introduction

Le présent chapitre fait état des résultats expérimentaux concernant l'élaboration et la caractérisation des revêtements de Fe-Si.

Il est divisé en deux parties. La première concerne les revêtements élaborés par pulvérisation d'une cible composite. Les résultats d'analyses structurales, magnétiques et électriques sont présentés. Dans la seconde partie, les résultats concernant les revêtements élaborés par co-pulvérisation sont présentés et commentés.

De plus, les travaux visant à optimiser le procédé de pulvérisation de cible ferromagnétique sont exposés tout au long du chapitre.

En fin de chapitre, une première approche d'application est abordée avant d'être plus amplement discutée dans le chapitre suivant.

### III.1. Elaboration de l'alliage FeSi par pulvérisation de cible composite

Le bâti utilisé dans cette première partie comporte deux magnétons et un porte substrat fixe. Cette configuration n'autorise l'utilisation que d'un seul magnétron à la fois (voir § II.1.2).

Afin de réaliser les revêtements nécessaires à notre étude, nous avons eu recours à la technique de la pulvérisation de cibles composites. Pour cela, nous avons utilisé une cible en Fer de 1 mm d'épaisseur et de 15 cm de diamètre et des pastilles de Si de 1 cm<sup>2</sup> de surface et 500 µm d'épaisseur que nous avons disposées au dessus de la cible, à l'endroit de la zone de plus forte érosion.

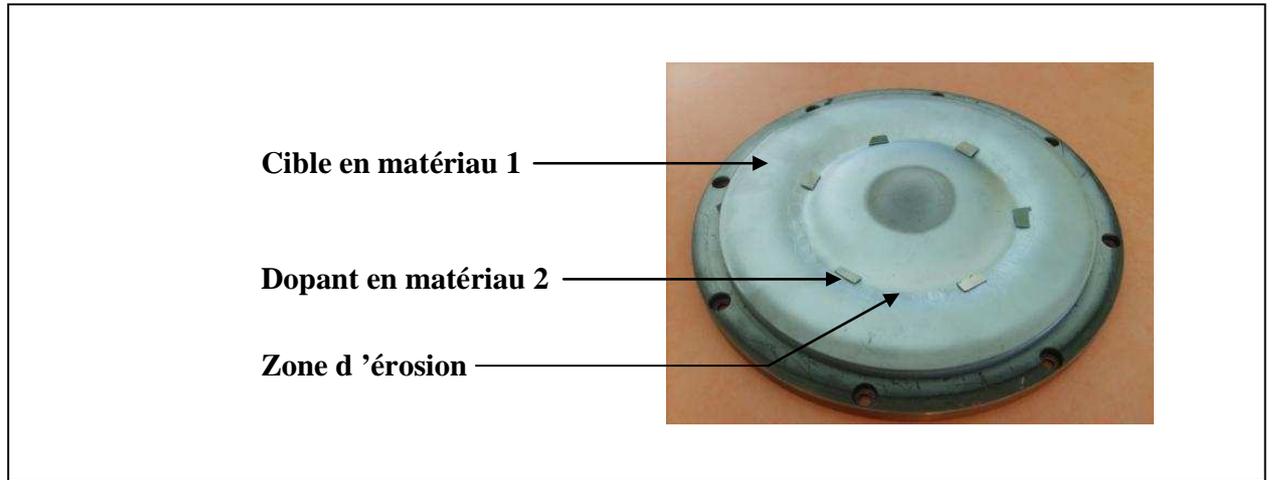


Figure III-1. Image d'une cible composite de pulvérisation.

Des revêtements de différents teneurs en Si ont ainsi été obtenus par modification de la surface totale des pastilles en Si.

### III.1.1. Optimisation des conditions expérimentales

Avant de passer aux résultats des analyses structurales électriques et magnétiques réalisées sur ces revêtements, un premier paragraphe est consacré à l'optimisation du procédé expérimental.

#### III.1.1.1. Détermination de la pression de travail

La pression de travail a une incidence directe sur les propriétés structurales d'un revêtement (voir § I.2.4). En effet, au fur et à mesure que la pression augmente, la morphologie du film évolue vers une structure colonnaire. Par ailleurs, la vitesse de pulvérisation est, elle aussi, influencée par la pression du gaz plasmagène. Enfin, il existe une pression seuil nécessaire à l'amorçage et au maintien de la décharge de pulvérisation.

Il est donc nécessaire de trouver un compromis entre une pression suffisamment basse pour avoir une structure dense et une pression suffisamment élevée pour amorcer et entretenir une décharge et permettant d'avoir des vitesses de dépôt acceptables ( $>250$  nm/h). Notons que des revêtements denses sont nécessaires à l'obtention de matériaux magnétiques très doux.

Les résultats des essais réalisés en vue de déterminer la pression optimale sont présentés ci-dessous.

Le Tableau 3 présente les tensions relevées sur la cathode équipée d'une cible neuve en Fer de 1 mm d'épaisseur en fonction de la pression du gaz dans le réacteur. La puissance

injectée est de 150 W. Cette valeur de la puissance est considérée comme une puissance seuil pour l'obtention d'une vitesse de pulvérisation suffisamment élevée.

Dans le Tableau 3, le terme *surcharge* est employé lorsque la décharge est amorcée mais que la tension est supérieure à 1000 V (cette dernière valeur étant la tension maximum supportée par le générateur RF utilisé).

Tableau 3. Valeur de la tension cathodique pour différentes pressions de gaz plasmagène.

Pression (Pa)	0,1	0,2	0,3	0,4	0,5	1	1,5
Tension (V)	Pas de décharge	Pas de décharge	Surcharge (>1000)	Surcharge (>1000)	900	750	680

Le Tableau 3 montre que la pression minimale nécessaire à l'amorçage et à l'entretien d'une décharge pour une cible en fer de 1 mm d'épaisseur est de 0,5 Pa. Cependant, durant la première partie de ce travail de thèse, les revêtements étaient élaborés à partir d'une cible en fer déjà fortement érodée. Aussi, avons-nous réalisé des revêtements à une pression de 0,3 Pa (inférieure à la pression de 0,5 Pa préconisée ci-dessus). Par la suite, après avoir constaté l'impossibilité d'amorcer une décharge à cette pression pour une cible neuve, nous avons travaillé avec des pressions supérieures ou égales à 0,5 Pa.

Le second paramètre que nous nous sommes attachés à étudier est l'effet de la position des substrats sur le porte échantillon.

#### III.1.1.2. Positionnement du substrat

Le flux des espèces pulvérisées à partir d'une cible présente une distribution spatiale inhomogène. Cette inhomogénéité se traduit par une variation des épaisseurs des films. D'une manière générale, on peut considérer qu'il y a plus de matière pulvérisée qui ira se déposer en face de la cible que sur les côtés du porte substrat. Cependant, le profil de l'épaisseur des revêtements dépend également de la pression de travail et de la distance cible-substrat (appelée distance de tir). Il convient donc de déterminer, pour chaque dispositif expérimental, la position des échantillons pour laquelle la vitesse de croissance des revêtements est optimale.

Dans le cas de notre étude, et en vue de déterminer la position sur le porte substrat pour laquelle la vitesse de croissance des revêtements est la plus élevée, une couche de fer est déposée et son épaisseur est mesurée en fonction de la distance à l'axe de la cible.

La Figure III-2 présente l'évolution de cette épaisseur (épaisseur normalisée) en fonction de la distance à l'axe de la cible. La distance cible-substrat, qui est fixe dans le dispositif utilisé, est de 7 cm et la pression est de 0,5 Pa. Afin de limiter la variation de l'épaisseur à 20% de la valeur maximale, nous disposerons les substrats dans un rayon maximum de 4,5 cm autour de l'axe de la cible.

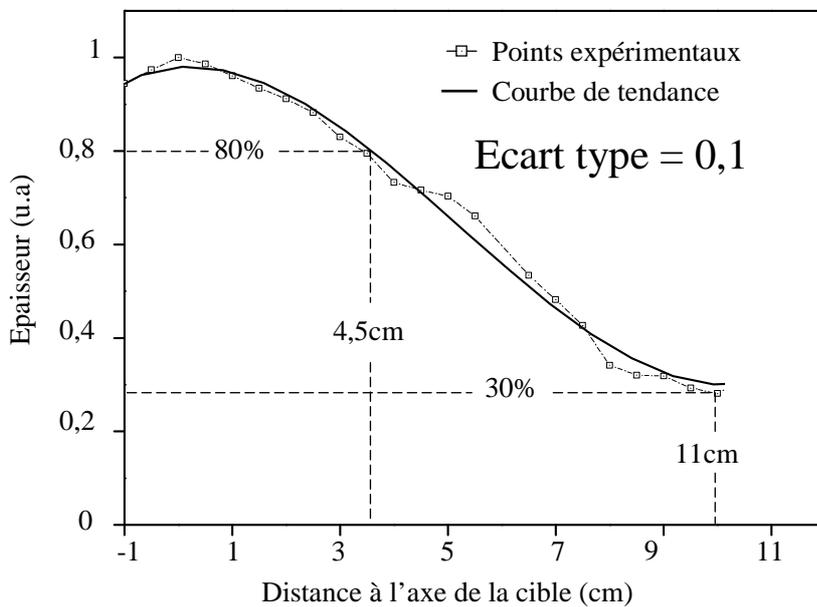


Figure III-2. Epaisseur normalisée en fonction de la distance à l'axe de la cible.

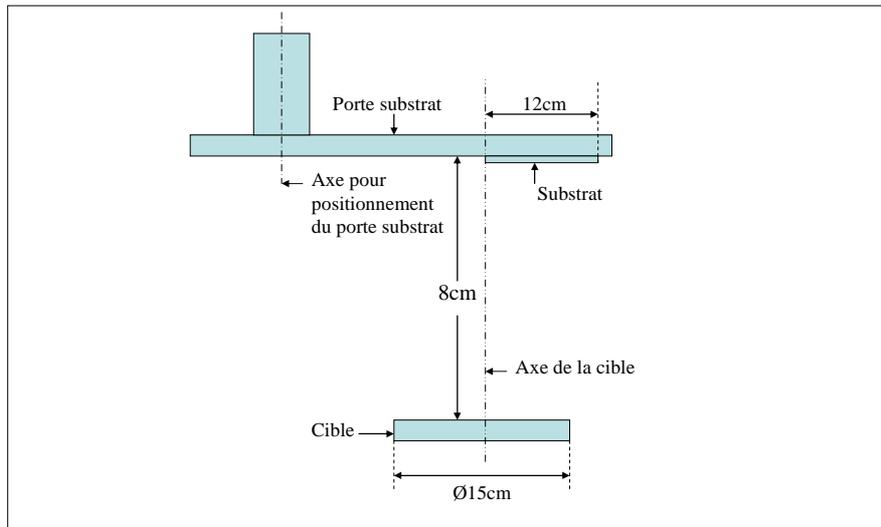


Figure III-3. Schéma représentatif du positionnement du substrat par rapport à la cible.

La position du substrat par rapport à la cible est représentée sur la Figure III-3 (vue de côté). Le dernier paramètre auquel nous nous sommes intéressés est celui de l'homogénéité de la composition chimique des revêtements.

### III.1.1.3. Homogénéité en composition

Dans un procédé de pulvérisation avec une cible composite, la distribution des espèces pulvérisées varie en fonction de leur nature. Il en résulte, en plus de l'inhomogénéité en épaisseur évoquée ci-dessus, une inhomogénéité en composition chimique du dépôt.

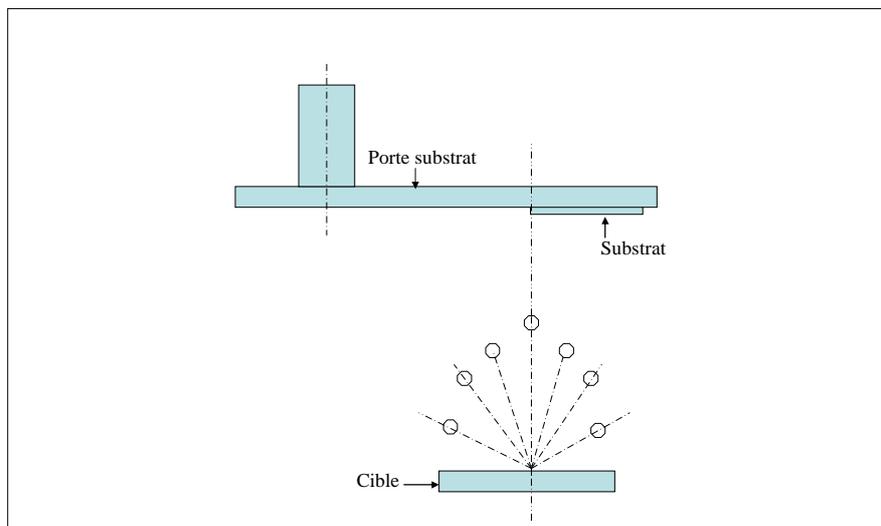


Figure III-4. Distribution inhomogène des atomes pulvérisés

Dans le cadre de notre étude (pulvérisation d'une cible composite Fe-Si), il était nécessaire de vérifier que la composition de l'alliage obtenu ne dérivait pas de façon trop importante en respectant les conditions expérimentales déterminées précédemment. Pour ce faire, nous avons mesuré la teneur en Fe et en Si dans un revêtement Fe-Si en fonction de la distance à l'axe de la cible. Les résultats obtenus sont présentés dans la Figure III-5.

Il apparaît, au travers de ces résultats, que dans un rayon de 3,5 cm autour de l'axe de la cible, la différence de teneur en Si n'excède pas 1,5 at%. Cette valeur est considérée comme acceptable, et nous permet de comparer les différents résultats d'analyses effectuées dans la suite de l'étude.

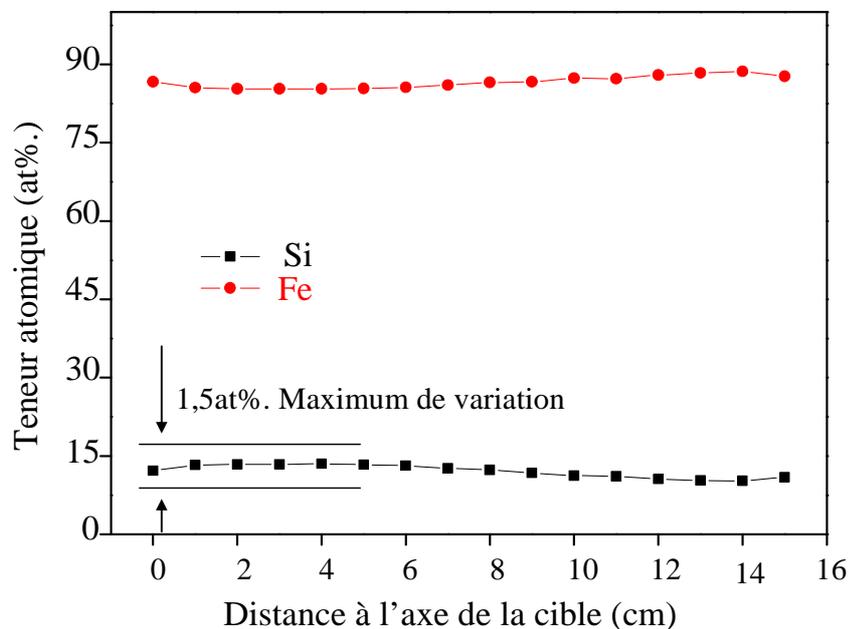


Figure III-5. Evolution de la composition dans un revêtement Fe-Si élaboré par pulvérisation d'une cible composite en fonction de la distance à l'axe de la cible.

#### III.1.1.4. Choix et préparation des substrats

Le choix des substrats obéit à deux impératifs principaux. D'une part un état de surface avec une faible rugosité (en général  $Ra < 0.1\mu\text{m}$ ) est nécessaire afin de ne pas détériorer le caractère magnétique doux des films par la création de points d'ancrage et de blocage des

parois de domaines magnétiques. D'autre part, ces substrats doivent être amagnétiques pour éviter toute interaction d'ordre magnétique entre le revêtement et le substrat.

Par ailleurs, les techniques d'analyse imposent également l'utilisation de substrats dotés de propriétés spécifiques. A titre d'exemples, l'analyse par la technique SDL nécessite l'emploi d'un substrat conducteur alors que les mesures de résistivité imposent un substrat isolant. Enfin, la réalisation d'une analyse Mössbauer requiert l'utilisation d'un substrat non ferreux le plus fin possible ( $<0,5 \mu\text{m}$  d'épaisseur).

Compte tenu de ces spécificités, les substrats choisis sont les suivants :

- substrats conducteurs non magnétiques comme le Cu ou Al poli miroir.
- substrats non conducteurs : des lames de verre ou wafer en Si.
- substrats fins: wafer en Si faible épaisseur (250  $\mu\text{m}$ ).

L'adhérence et la qualité des revêtements (absence de défauts de croissance), se trouvent nettement améliorés par l'emploi de substrats propres et soigneusement polis. C'est pourquoi un protocole de nettoyage a été appliqué à l'ensemble des substrats utilisés à l'exclusion de wafer en Si. Ce protocole consiste à passer les substrats au bac à ultrasons dans un bain d'acétone puis d'alcool (10 mn pour chaque bain). Les substrats sont ensuite séchés à l'air comprimé. Notons que les échantillons mentionnés ci-dessus n'ont pas tous été utilisés à chaque dépôt.

### Résumé:

Nous avons à présent établi les principales conditions opératoires qui nous permettent de réaliser des revêtements homogènes en composition et en épaisseur, avec des vitesses de croissance des films convenables. Ces paramètres sont résumés dans le Tableau 4.

Tableau 4. Principaux paramètres d'élaboration dans le cas de la pulvérisation d'une cible composite

Paramètres	Pression	Position des substrats	Variation max de la composition	Variation max de l'épaisseur	Puissance injectée minimale
Valeurs	0,5Pa	4,5 cm autour de l'axe de la cible	1,5 at. %	20%	150W

Nous allons, dans ce qui suit, présenter les résultats obtenus sur les revêtements élaborés avec différentes teneurs en Si.

### III.1.2. Résultats et discussions

Afin de limiter la contamination des revêtements, notamment par l'oxygène, la pression résiduelle dans l'enceinte avant l'opération de dépôt est toujours inférieure à 3 mPa. Deux séries d'échantillons de teneurs en Si allant de 0 à 15 at.% ont été réalisées. Les principales conditions expérimentales employées dans la réalisation de ces films sont reportées dans le Tableau 5.

La notation des échantillons est la suivante: **Fe-Si (pression d'élaboration-teneur en Si)**. (Les résultats de compositions seront présentés dans le détail par la suite).

Tableau 5. Récapitulatif des principales conditions opératoires

		Conditions d'élaborations communes				
Pression (Pa)		Temps de dépôt (h)	Durée de décapage (mn)	Puissance injectée (W)	Débit de gaz (sccm)	
0,5		2	15	250	26	
0,3		2	15	250	14,5	
		Conditions Spécifiques d'élaboration				
Surface des pastilles en Si (cm <sup>2</sup> )		0	5	8	10	13
Nom échantillon	Série I (0,5Pa)	Fe-Si (0,5-0)	Fe-Si (0,5-5)	Fe-Si (0,5-9)	Fe-Si (0,5-12)	Fe-Si (0,5-15)
	Série II (0,3Pa)	X	Fe-Si (0,3-3,5)	Fe-Si (0,3-5,8)	Fe-Si (0,3-7,7)	Fe-Si (0,3-10)

#### III.1.2.1. Composition et épaisseur

Les compositions des échantillons ont été déterminées par spectroscopie à décharge lumineuse à partir de couches déposées sur des substrats en Cu.

Les résultats de ces analyses sont présentés sur la Figure III-7 et la Figure III-7. L'observation de la composition des revêtements aux tous premiers instants des analyses SDL (ce qui correspond à l'extrême surface) révèle la présence d'oxygène. La comparaison des

teneurs en l'oxygène de la surface entre les différents revêtements (voir la *Figure III-8*) met en évidence une relation entre la teneur en Si et celle en oxygène. En effet, il apparaît clairement que l'oxydation est inversement proportionnelle à la teneur en Si.

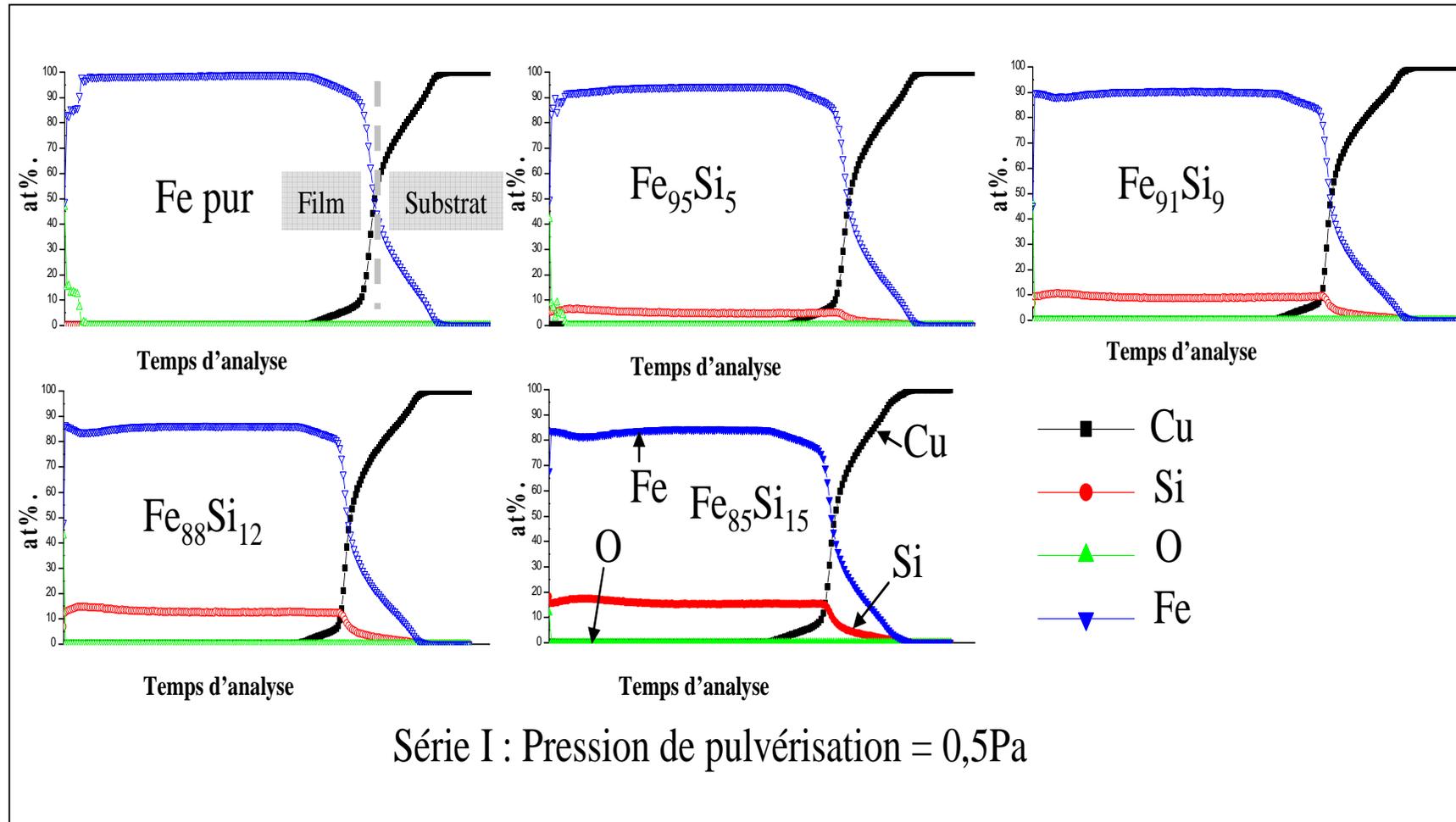


Figure III-6. Compositions chimiques déterminées par SDL des films synthétisés à 0,5Pa.

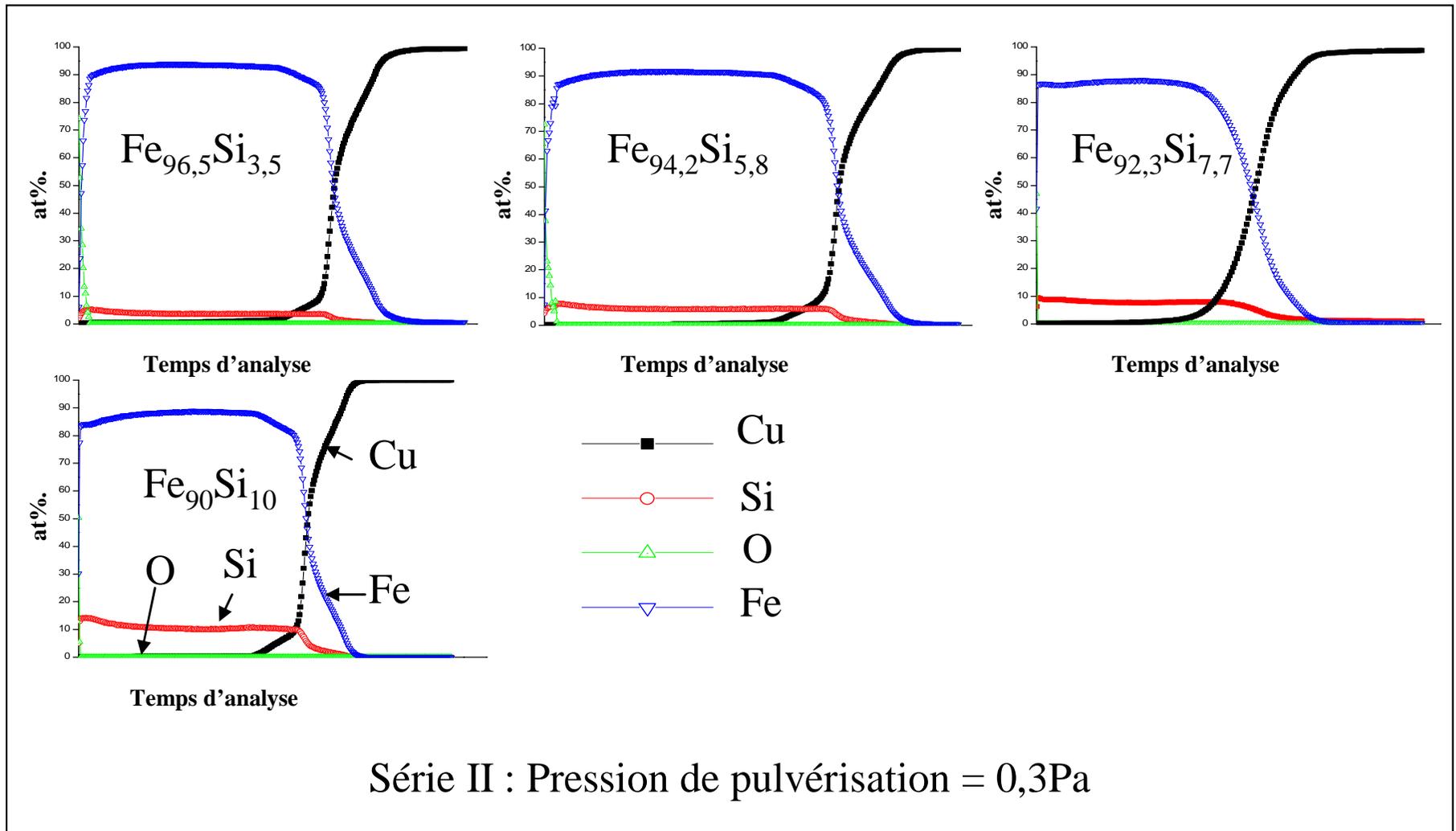


Figure III-7. Compositions chimiques déterminées par SDL des films synthétisés à 0,3Pa.

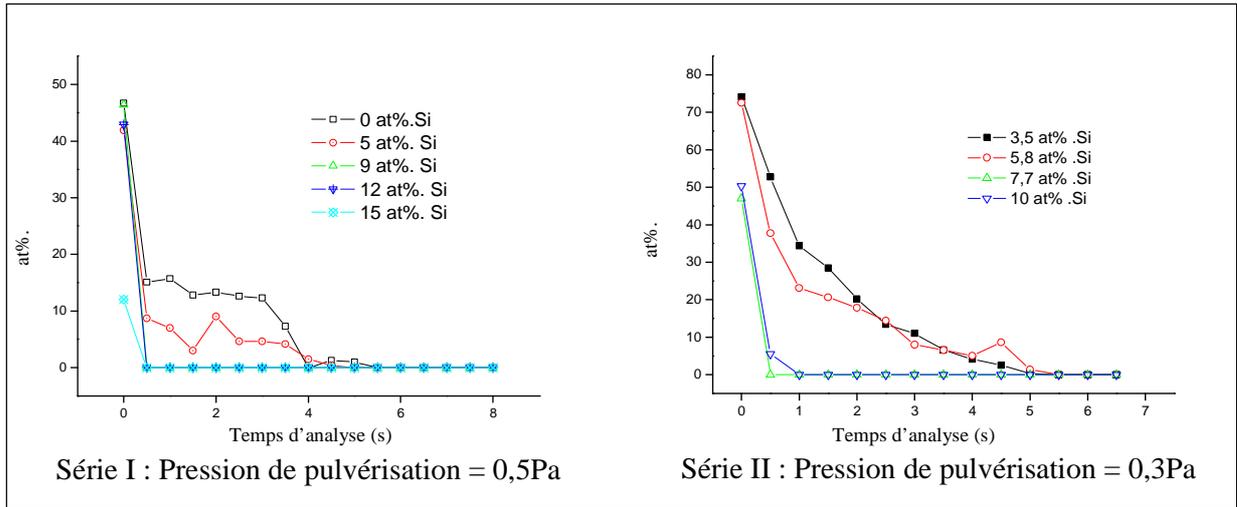


Figure III-8. Evolution de la teneur en oxygène à la surface des revêtements en fonction du temps d'analyse SDL.

La Figure III-9 et la Figure III-10 décrivent l'évolution de la teneur en Si ainsi que l'épaisseur des films (mesurée par profilométrie) en fonction de la surface des pastilles en Si utilisées comme élément d'addition. Ces résultats sont résumés dans le Tableau 3.

La Figure III-9-(a) et la Figure III-10-(a) montrent une évolution quasi linéaire de la teneur en Si dans les revêtements en fonction de la surface des pastilles en Si disposées sur la surface de la cible en fer. L'épaisseur maximum moyenne des revêtements varie de 1,6 à 2  $\mu\text{m}$ .

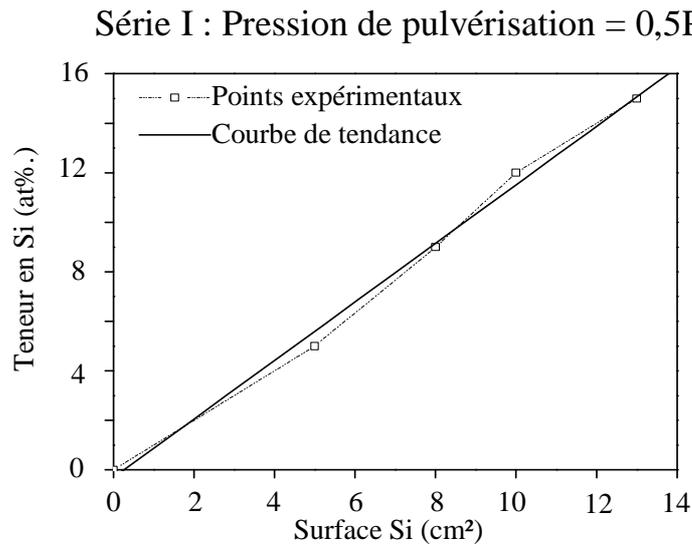


Figure III-9. Evolution de la composition en fonction de la surface des pastilles en Si des revêtements élaborés à 0,5 Pa.

## Série II : Pression de pulvérisation = 0,3Pa

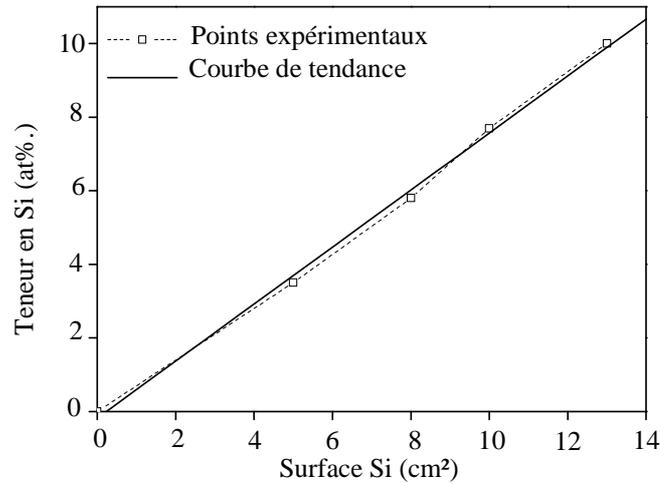


Figure III-10. Evolution de la composition en fonction de la surface des pastilles en Si des revêtements élaborés à 0,3 Pa.

### III.1.2.2. Etude structurale

#### ✓ Diffraction des rayons X :

Les résultats de la diffraction des rayons X sur des échantillons élaborés à 0,5 et 0,3 Pa sont présentés sur la *Figure III-11* et la *Figure III-12*. Ces diagrammes ont été obtenus en configuration  $\theta$ - $2\theta$  entre 20 et 110°. Les clichés obtenus mettent en évidence un état cristallisé des films pour les différentes teneurs en Si mesurées entre 0 et 15 at.%. La phase  $\alpha$  de structure cubique centrée (CC) du fer est identifiée dans tous les revêtements. Ces résultats sont cohérents avec ceux recueillis dans la littérature [43,44].

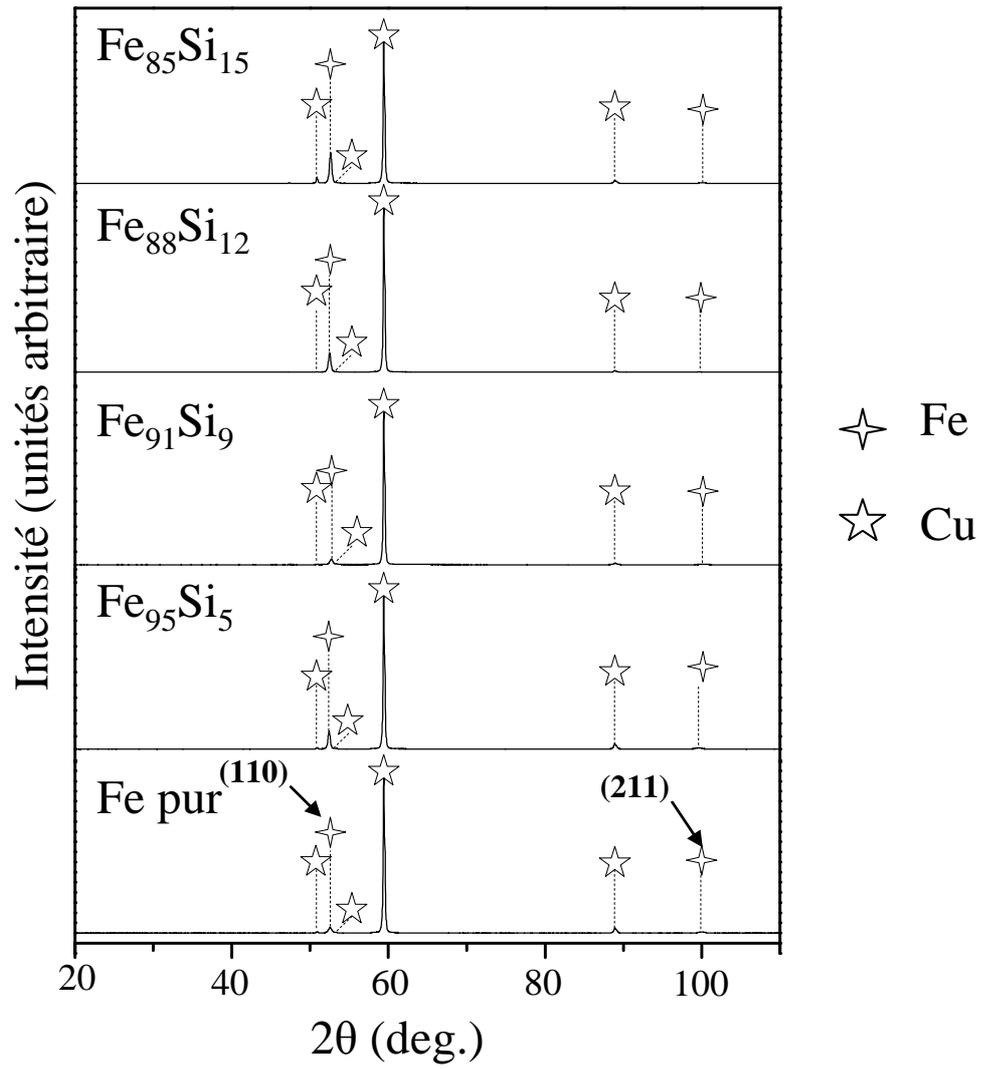


Figure III-11. Diagramme de diffraction de rayons X des revêtements élaborés à 0,5 Pa.

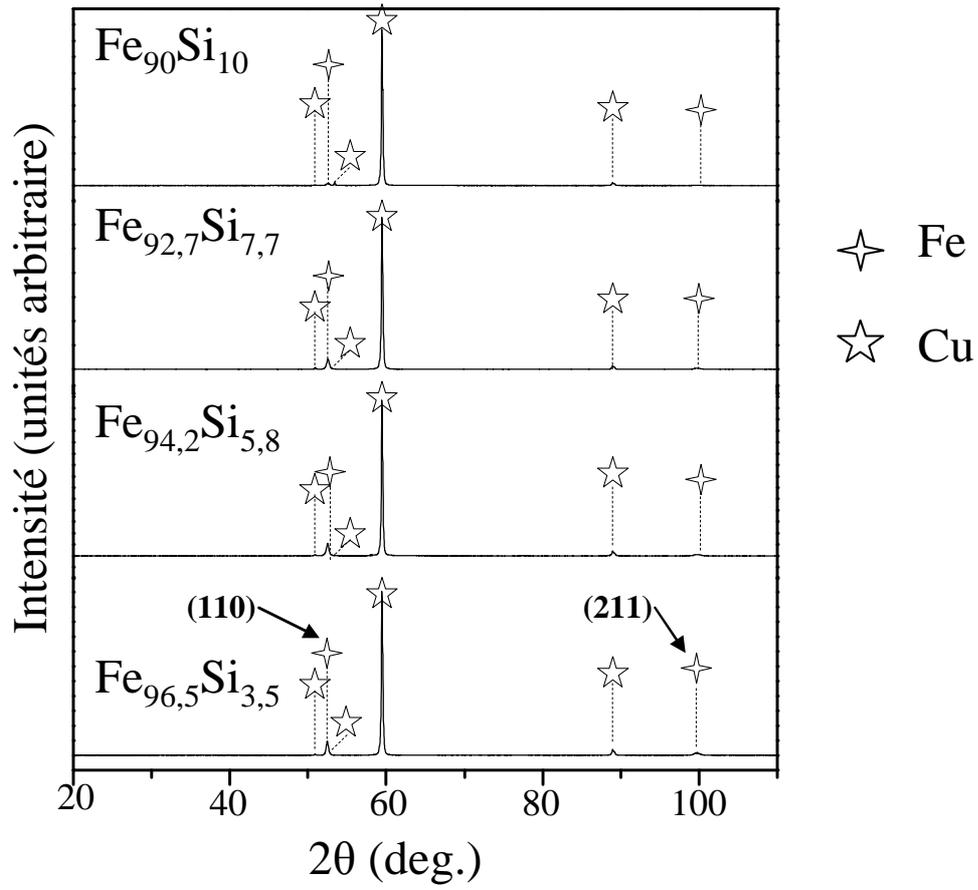


Figure III-12. Diagramme de diffraction des rayons X pour des revêtements élaborés à 0,3 Pa.

✓ **Observations MEB :**

Les faciès de rupture, obtenus par microscopie électronique à balayage, des revêtements élaborés à 0,5 Pa contenant respectivement 3,5, 5,8 et 7,7 at.% Si sont présentés sur la Figure III-13. Une croissance colonnaire peut être observée sur les trois micrographies. Par ailleurs, aucune influence de la teneur en Si dans les revêtements sur la morphologie des films dans cette gamme de composition n'a été détectée.

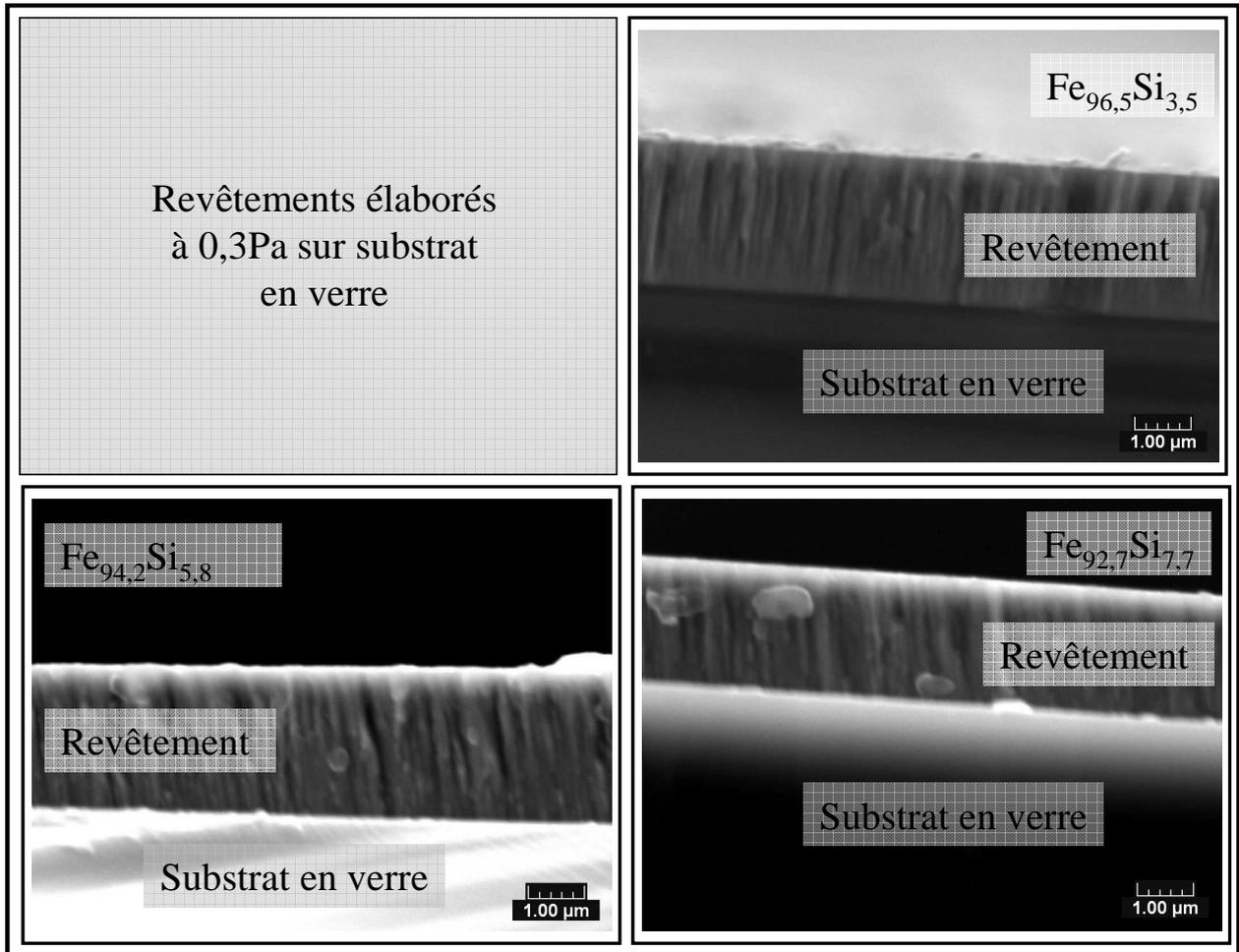


Figure III-13. Faciès de ruptures obtenues par MEB des revêtements de Fe-Si pour différentes teneurs en Si élaborés à 0,3 Pa.

### III.1.2.3. Etude magnétique

Les premières mesures magnétiques visent à déterminer la direction de l'aimantation dans les revêtements élaborés (aimantation dans le plan du substrat ou perpendiculaire à celui-ci). Pour cela, deux mesures sont effectuées sur chaque échantillon. L'une avec le champ magnétique externe appliqué parallèlement au substrat et l'autre perpendiculairement au substrat. Les résultats de ces mesures effectuées sur un revêtement de fer pur (Figure III-14) montrent que l'aimantation des échantillons est orientée dans le plan du substrat (direction de facile aimantation). En effet, l'application d'un champ magnétique parallèle au plan du substrat permet une saturation magnétique de l'échantillon pour des valeurs d'induction de 50 mTesla environ (500 G). Cependant, une induction magnétique de 20 KG ne suffit pas à saturer le même échantillon dans la direction perpendiculaire au plan du substrat. Des résultats similaires sont obtenus pour les autres échantillons élaborés à 0,5 Pa et 0,3 Pa.

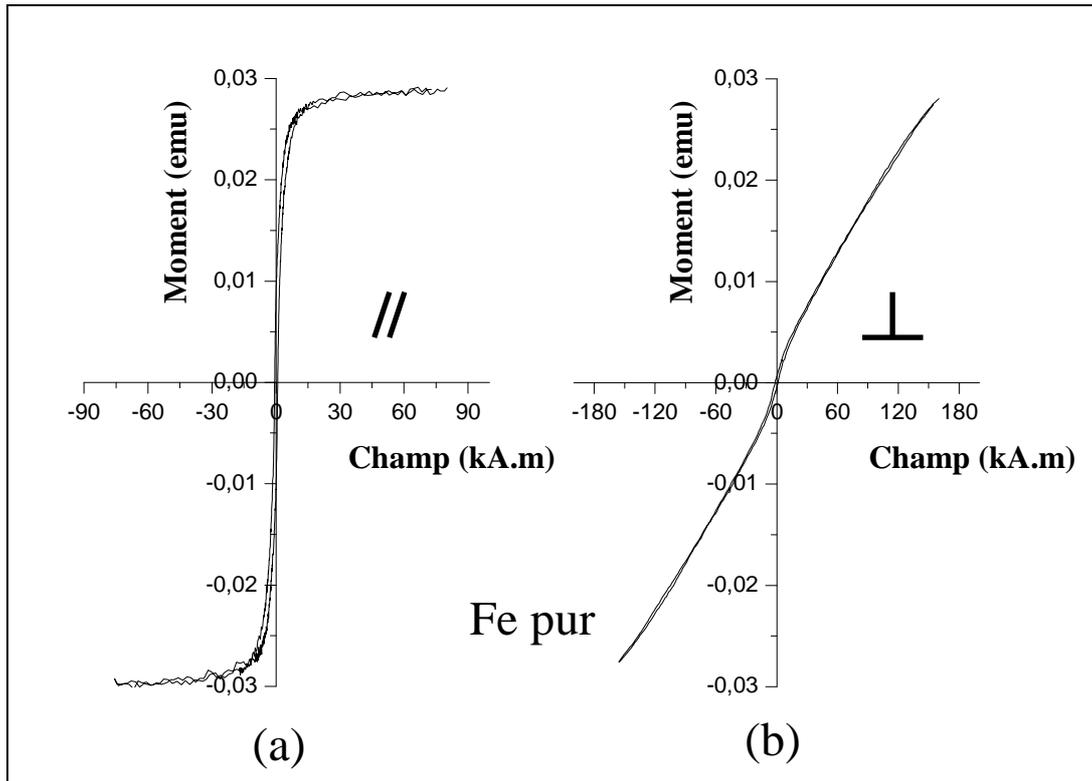


Figure III-14. Cycles d'hystérésis d'un revêtement en fer pur : (a) champ magnétique appliqué parallèlement au substrat et (b) perpendiculaire au substrat.

Les cycles d'hystérésis (avec un champ magnétique parallèle) des échantillons élaborés à différentes teneurs en Si sont présentés sur la Figure III-15 et la Figure III-16.

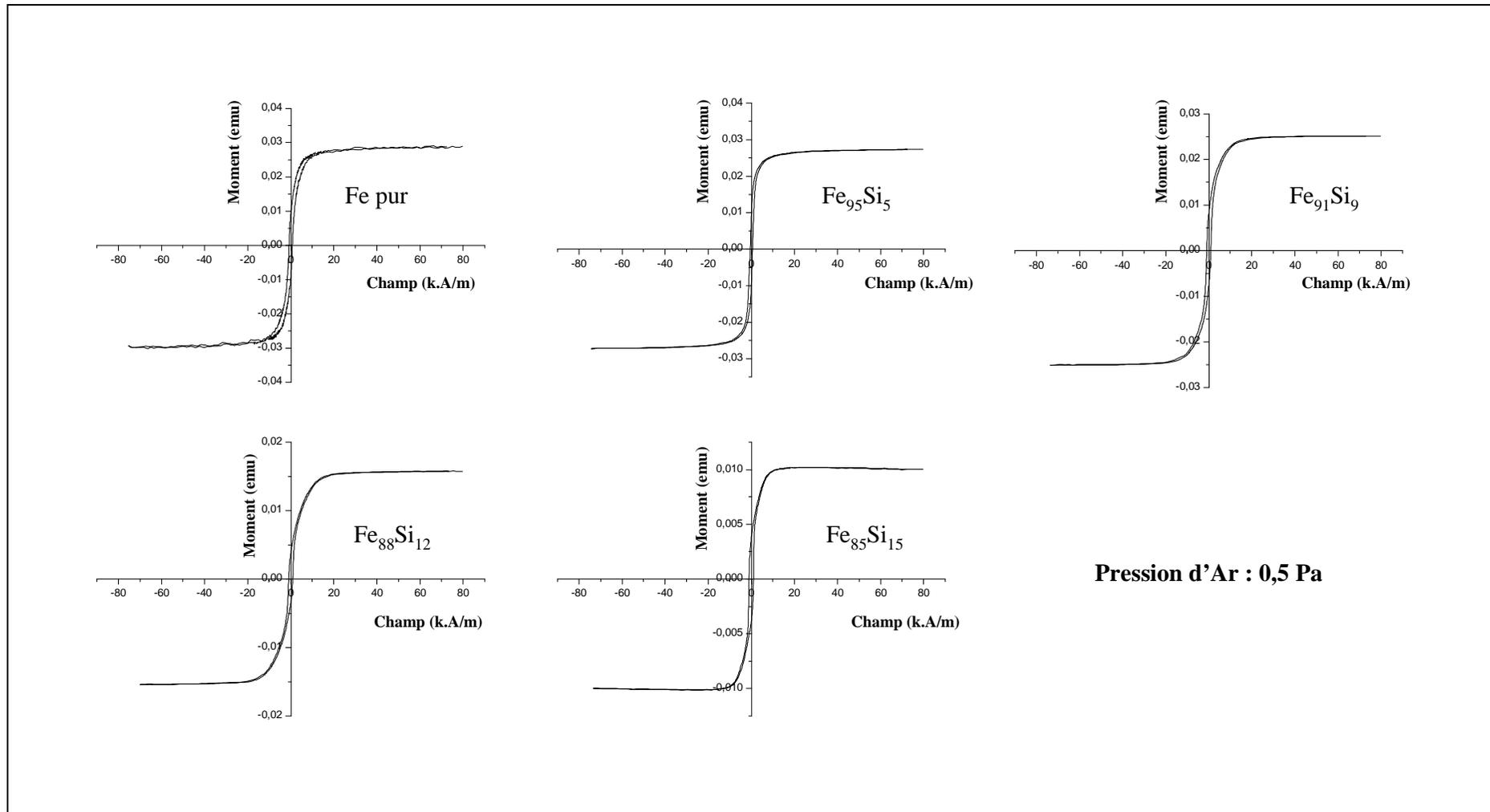


Figure III-15. Cycles d'hystérésis des films Fe-Si élaborés à 0,5 Pa. Mesures sous un champ magnétique parallèle au plan du substrat.

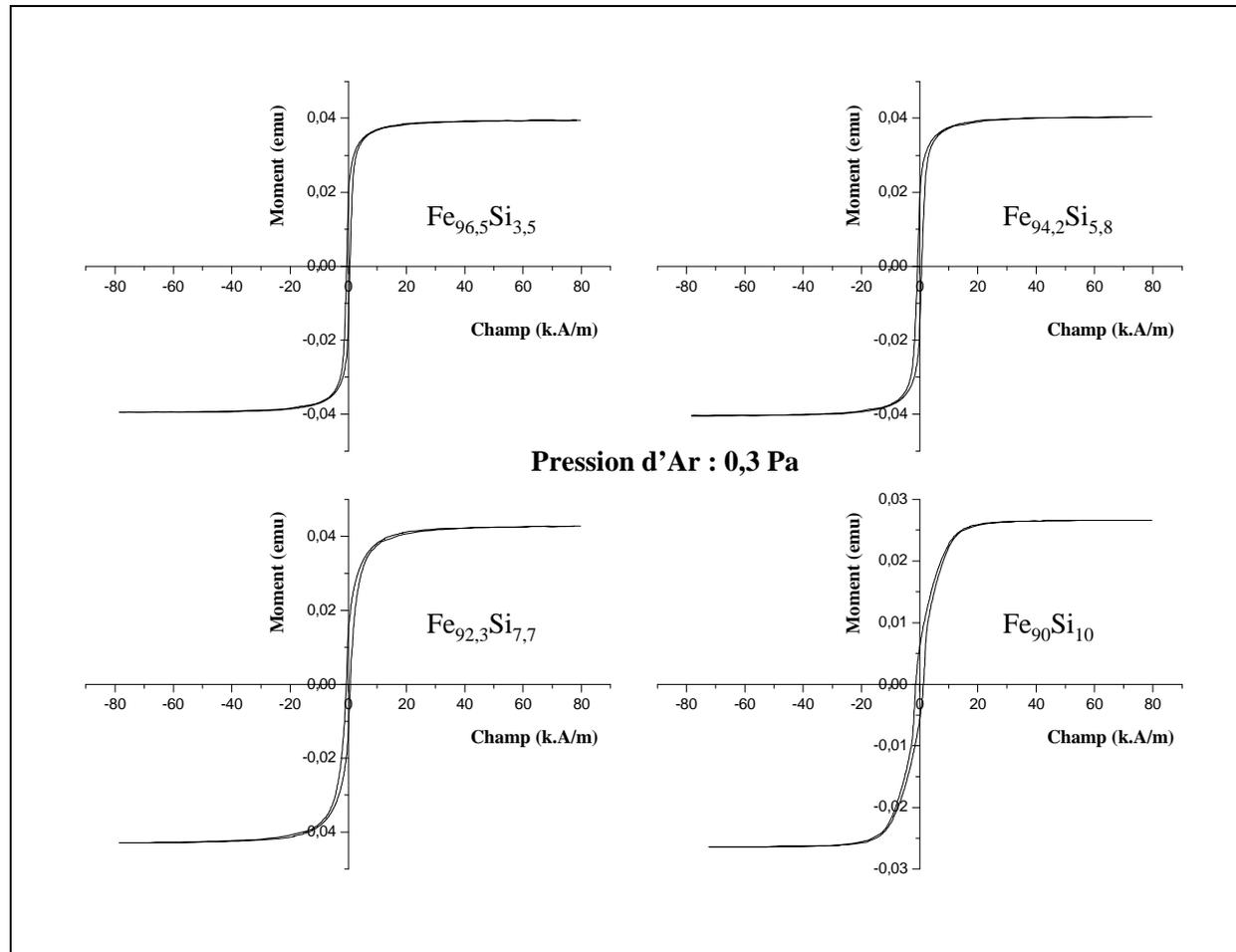
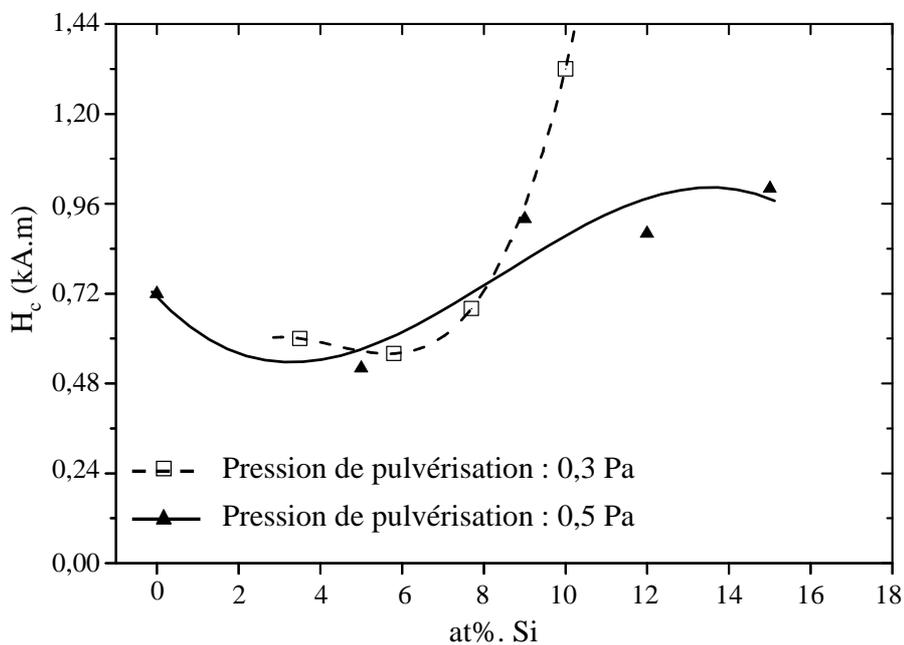


Figure III-16. Cycles d'hystérésis des films Fe-Si élaborés à 0,3 Pa. Mesures sous un champ magnétique parallèle au plan du substrat.

Quelle que soit la teneur en Si dans les films minces, un champ magnétique inférieur à 500 G est suffisant pour atteindre la saturation. Les champs coercitifs relevés sur les cycles d'hystérésis sont reportés sur la courbe *Figure III-17*. On peut noter une diminution du champ coercitif (environ 500A/m) pour des teneurs en Si de l'ordre de 6 at.% (environ 3 pds.%). Cette diminution peut être attribuée à la diminution de la constante de magnéto-striction qui est proche de zéro autour de 6 at.% de Si [14,45].

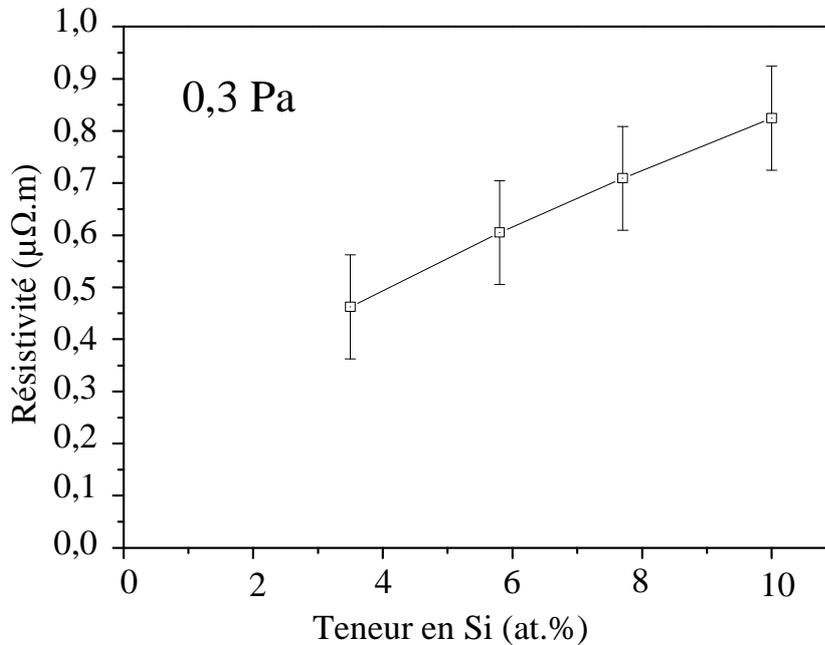


*Figure III-17. Evolution du champ coercitif en fonction de la teneur en Si dans les revêtements à base de Fer élaborés à 0,5 Pa et à 0,3 Pa.*

#### III.1.2.4. Etude électrique

Les mesures de résistivité ont été réalisées uniquement sur les échantillons élaborés à 0,3 Pa. Ceux élaborés à 0,5 Pa l'ont été sur un substrat conducteur, ce qui rend impossible de réaliser les mesures par la méthode des quatre pointes. Les mesures de résistivité en fonction de la teneur en Si dans les revêtements figurent sur la Figure III-18. Une augmentation linéaire de la résistivité est observée pour des teneurs en Si allant de 3,5 à 10 at.%. Cette augmentation est due à l'addition du Si qui est un élément plus résistif que le fer. L'évolution de la résistivité est identique, dans cette gamme, à celle observée dans les tôles et les rubans de Fe-Si [43,44,48,49]. Cette évolution linéaire de la résistivité indique également que la

transition désordre-ordre n'a pas eu lieu dans la gamme de composition étudiée. En effet, lorsqu'une mise en ordre importante du réseau cristallin a lieu, il a été constaté une faible augmentation de la résistivité et parfois même une diminution [48,49].



*Figure III-18 Evolution de la résistivité des revêtements FeSi élaborés à 0,3 Pa en fonction de la teneur en Si.*

#### **Conclusion intermédiaire:**

Dans cette première partie, les revêtements ont été élaborés à partir d'une cible composite et d'un substrat fixe. Nous avons distingué deux séries de revêtements, à savoir les revêtements élaborés à 0,5 Pa et ceux élaborés à 0,3 Pa. La teneur en Si, mesurée par SDL, dans les films élaborés à 0,5 Pa et à 0,3 Pa varie respectivement de 3,5 à 10 at.% et de 0 à 16 at.%. L'épaisseur des films mesurée varie entre 1,6 et 3  $\mu m$  selon les échantillons.

Une oxydation de la surface est observée par SDL sur tous les revêtements. Cependant, l'épaisseur de la couche oxydée diminue lorsque la teneur en Si augmente.

L'étude structurale par diffraction de rayons X a montré que tous les revêtements sont cristallisés. De plus, elle a permis d'identifier la phase  $\alpha$ -Fe comme étant la seule à se former pour les compositions étudiées. Nous supposons donc que le fer et le silicium forment une

solution solide au moins jusqu'à 15 at.% Si. Dans la gamme de composition étudiée, rien ne permet d'identifier une transition désordre-ordre dans la structure cristalline des dépôts. Les faciès de ruptures observés par MEB renseignent sur la morphologie colonnaire des couches minces obtenues.

L'étude magnétique a montré clairement que la direction de facile aimantation se situe dans le plan du substrat. Les films obtenus sont magnétiquement doux ( $H_c < 1000 \text{ A/m}$ ) à l'exception du film de composition nominale  $\text{Fe}_{90}\text{Si}_{10}$  élaboré à 0,3 Pa ( $H_c = 1400 \text{ A/m}$ ). Tous les films sont saturés avec un champ magnétique inférieur à 20 kA/m. une diminution du champ coercitif est observée autour de 6 at.% Si. Cette diminution est attribuée à une magnéto-striction faible pour cette composition.

Enfin, les mesures de résistivité par la méthode des quatre pointes ont permis d'une part de confirmer les résultats obtenus dans des études antérieures et, d'autre part, de vérifier l'absence d'une transition désordre-ordre de la structure cristalline dans la gamme de composition étudiée.

## III.2. Elaboration de l'alliage Fe-Si par co-pulvérisation avec substrat rotatif

### III.2.1. Optimisation des conditions expérimentales

L'utilisation de plusieurs cibles pour élaborer l'alliage Fe-Si entraîne des modifications importantes du profil d'épaisseur et de composition des revêtements par rapport à l'utilisation d'une cible composite. Ces informations doivent être connues avant la réalisation des films à étudier de manière à optimiser le positionnement des substrats sur le porte échantillon rotatif.

#### III.2.1.1. Homogénéité en épaisseur et en composition.

Afin de déterminer la zone du porte substrat pour laquelle l'épaisseur des revêtements diminue de moins de 20% par rapport à l'épaisseur totale, nous avons tracé le profil d'épaisseur d'un revêtement élaboré à partir de deux cibles en Fe et d'une cible en Si (voir *Figure III-19*). Ce revêtement est élaboré pour une distance cibles-substrat égale à 7 cm et une pression de 0,5 Pa. La *Figure III-19* montre que, dans un rayon de 14,5 cm autour de l'axe du porte substrat, la variation d'épaisseur est inférieure à 20%. Elle n'est plus que de 10% dans un

rayon de 12,5 cm autour de cet axe. Ces résultats montrent clairement que la co-pulvérisation avec substrat rotatif permet d'augmenter sensiblement la zone d'homogénéité des revêtements en épaisseur par rapport à l'utilisation d'une cible composite et d'un substrat fixe (voir § III.1.1.2).

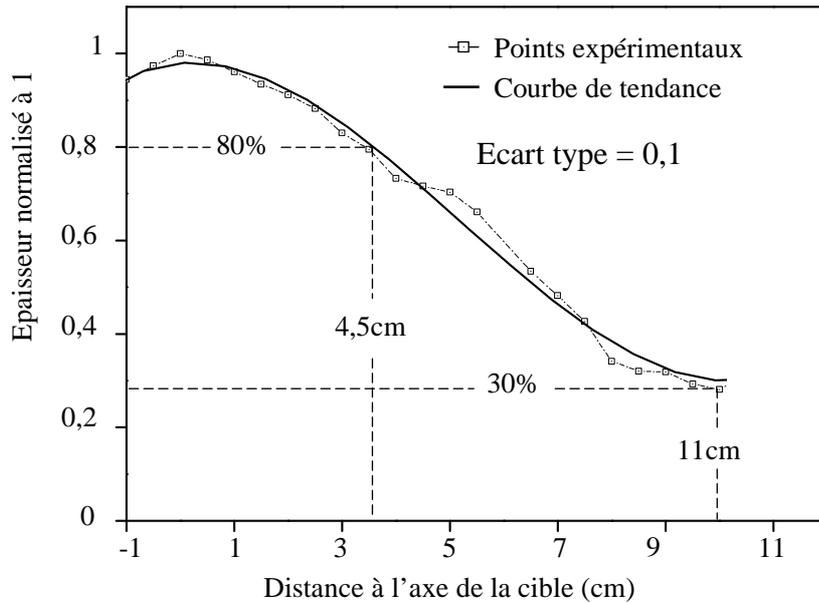


Figure III-19. Evolution de l'épaisseur en fonction de la distance à l'axe du porte substrat.

La Figure III-20 montre l'évolution de la teneur en Si du revêtement caractérisé en fonction de la distance à l'axe du substrat. Dans un rayon allant de 7 à 16 cm de cet axe, la teneur en Si ne varie pas de plus de 1%.

L'étude de l'homogénéité en épaisseur et en composition nous a permis de déterminer les positions sur le porte substrat pour lesquelles les vitesses de croissance sont les plus élevées mais aussi de limiter la variation de composition sur un même échantillon. Cette zone est délimitée par un anneau centré sur l'axe du porte-substrat, de rayon intérieur égal à 7 cm et extérieur égal à 14 cm. La surface ainsi disponible pour les substrats est bien supérieure à celle que nous avons déterminée pour la pulvérisation d'une cible composite.

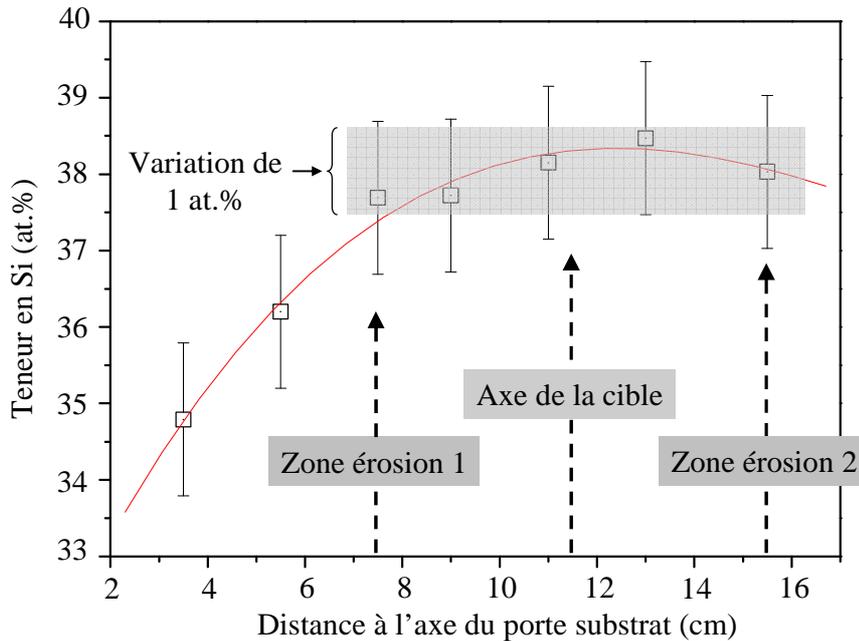


Figure III-20. Evolution de la composition en fonction de la distance à l'axe du substrat pour un échantillon de Fe-Si élaboré par co-pulvérisation.

### III.2.2. Résultats et discussion

Une pression inférieure à 3 mPa est systématiquement atteinte dans l'enceinte avant chaque opération de pulvérisation. La pression durant la pulvérisation est fixée à 0,5 Pa pour tous les échantillons présentés dans la suite de ce chapitre.

Le réacteur est équipé de deux cibles de fer polarisées en RF et d'une cible en Si polarisée en courant direct. La polarisation de la cible en Si est assurée par un générateur Advanced Energy modèle Pinnacle pour les films à teneur en Si supérieure à 20 at.% et modèle MDX plus pour ceux contenant moins de 20 at.% de Si.

#### III.2.2.1. Composition et épaisseur

L'évolution de la teneur en Si dans les revêtements en fonction du rapport  $P(\text{Fe})/P(\text{Si})$  a été étudiée.  $P(\text{Fe})$  représente la puissance totale injectée sur les deux cibles en Fe et  $P(\text{Si})$  la puissance injectée sur la cible en Si. Les résultats obtenus avec le générateur Pinnacle plus sont présentés sur la Figure III-21 et ceux obtenus avec le générateur MDX 500 sont présentés sur la Figure III-22. Nous constatons qu'il est possible de contrôler avec une bonne

précision le procédé en vue d'obtenir une composition particulière de l'alliage. Rappelons cependant que ces résultats supposent le respect de la condition énoncée au paragraphe II.1.3 qui stipule qu'une cible neuve ne peut être utilisée lorsque la tension de polarisation chute de plus de 150 V pour une puissance injectée de 300 W à 0,5 Pa.

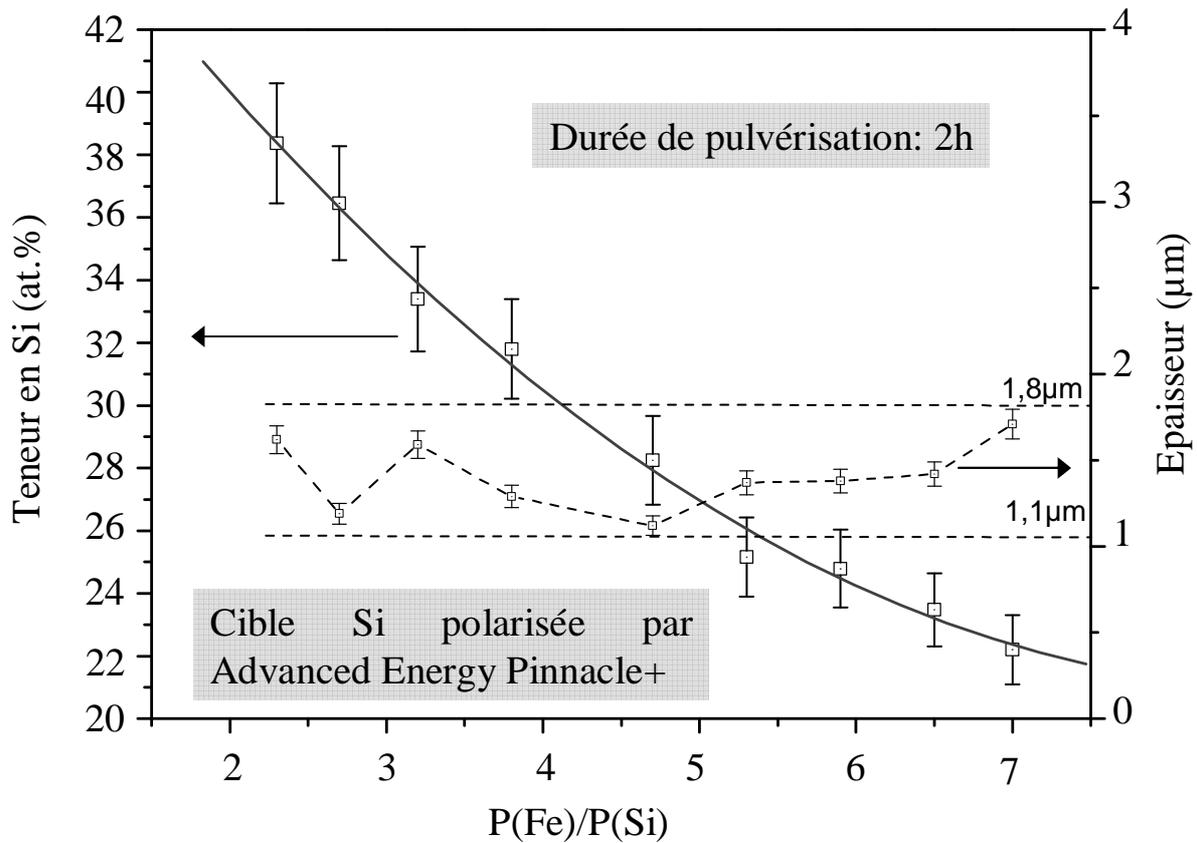


Figure III-21. Evolution de la composition et de l'épaisseur des revêtements en fonction du rapport des puissances injectées sur les cibles en Fe et la cible en Si polarisée avec le générateur de courant continu Advanced Energy Pinnacle.

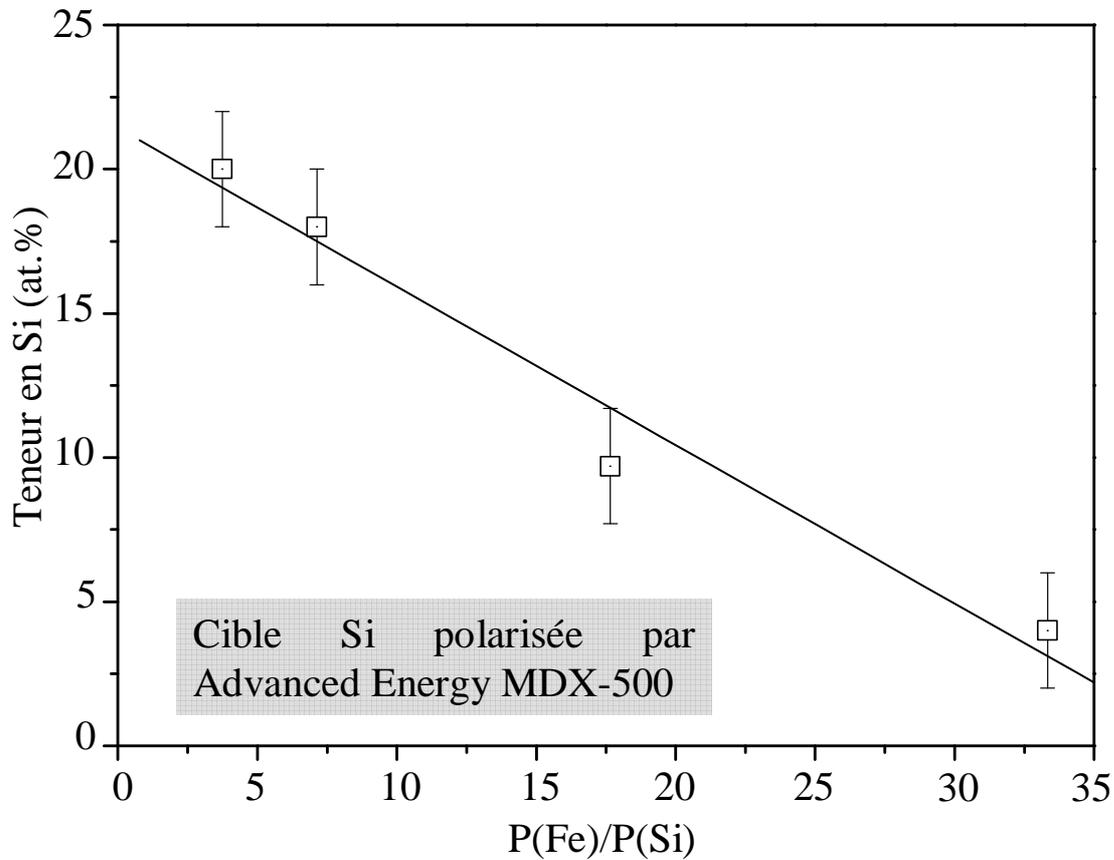


Figure III-22. Evolution de la composition des revêtements élaborés en fonction du rapport des puissances injectées sur les cibles en Fe et la cible en Si polarisée avec le générateur Advanced Energy MDX-500.

#### III.2.2.2. Etude structurale

##### ✓ Diffraction de rayons X

Les échantillons ont été analysés par diffraction des rayons X afin de déterminer leur structure cristalline. La Figure III-23 présente les résultats de diffraction en configuration  $\theta$ - $2\theta$  des revêtements élaborés par co-pulvérisation pour des teneurs en Si allant de 4 at.% à 37,5 at.%.

Les dépôts cristallisent dans la phase  $\alpha$ -Fe jusqu'à 20 at.% de Si. Pour des teneurs en Si plus élevées, les revêtements sont amorphes. Ces résultats viennent confirmer ceux présentés par Masahiro et al. [44] puisque la transition cristallin-amorphe est observée entre 22 et 28 at.% de Si. Notons que Shimada et al. [45] observent quant à eux une transition dès

15 at.% Si. Un décalage des pics vers les grands angles est observé lorsque la teneur en Si augmente dans les revêtements (voir Figure III-24). Ce décalage est le résultat de la diminution du paramètre de maille, qui est la conséquence de la substitution du Si au Fer dans la structure cubique centrée (voir Figure III-25). Si pour 20 at.% de Si les angles de diffraction des pics observés se rapprochent plus de ceux de la structure  $\alpha'$  du  $\text{Fe}_3\text{Si}$ , l'absence de raies de substructures ne permet pas d'affirmer qu'il s'agit de la structure  $\text{Fe}_3\text{Si}$ .

La taille de grain, estimée par la méthode Debye Scherrer, varie entre 25 et 32 nm selon la composition des films. Cependant, aucune tendance ne peut être dégagée dans l'évolution de la taille de grains en fonction de la teneur en Si.

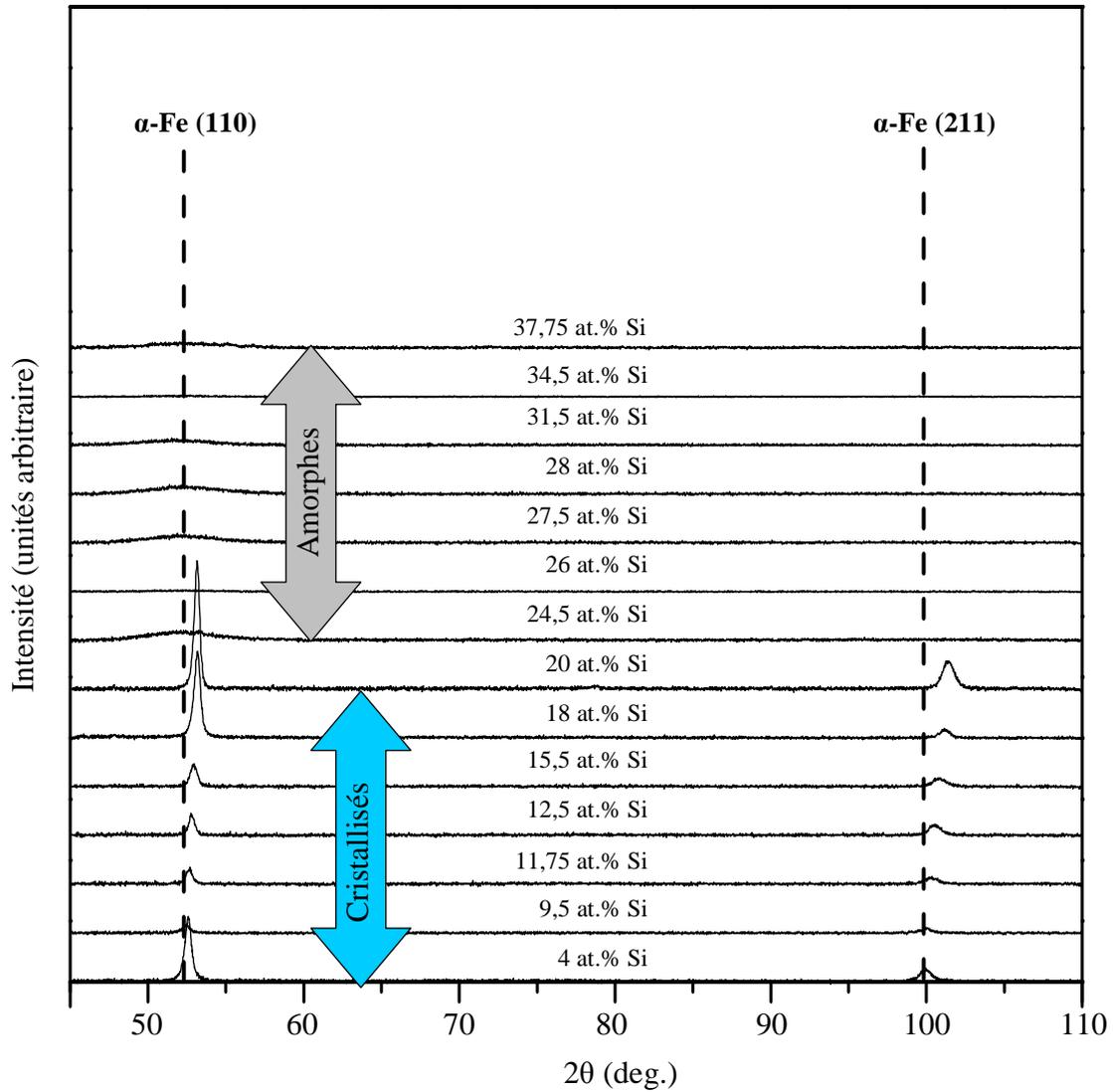


Figure III-23. Diagrammes de diffraction des rayons X des revêtements élaborés par co-pulvérisation à 0,5 Pa.

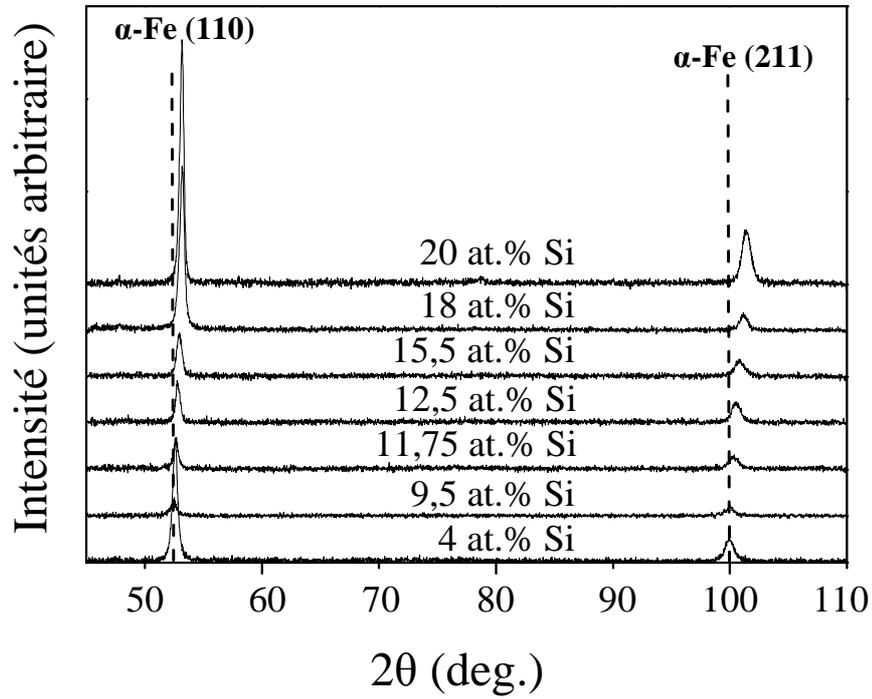


Figure III-24. Diagrammes de diffraction des rayons X des revêtements, cristallisés, élaborés par co-pulvérisation à 0,5 Pa.

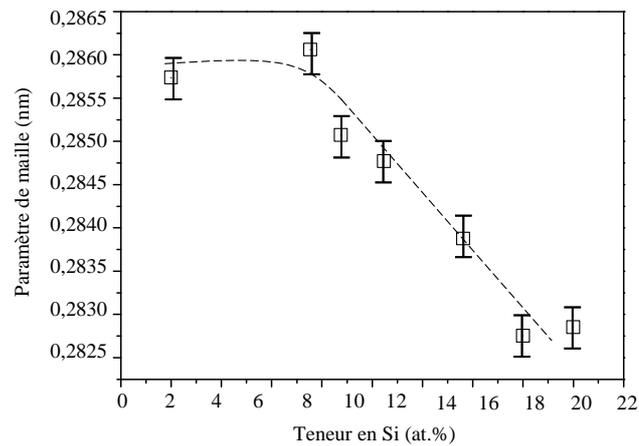


Figure III-25. Evolution du paramètre de maille des revêtements élaborés par co-pulvérisation à 0,5 Pa.

III.2.2.3. Etude magnétique

Les cycles d'hystérésis des revêtements élaborés par co-pulvérisation sont présentés sur la Figure III-26 pour les revêtements nanocristallins et sur la Figure III-27 pour les revêtements amorphes. Ces cycles montrent globalement que quelle que soit la teneur en Si dans les films, la saturation magnétique est atteinte pour un champ magnétique extérieur inférieur à 30 kA/m et que les dépôts présentent un magnétisme très doux. La forme des cycles (cycles carrés ou cycles couchés) indique la présence d'une anisotropie magnétique dans le plan.

En effet, un cycle carré est caractéristique de l'application d'un champ magnétique de mesure, parallèle à l'axe de facile aimantation. Dans ce cas, la diminution de la valeur du champ magnétique externe après saturation n'entraîne pas de réorientation des moments magnétiques atomiques qui sont déjà dans leur direction de prédilection. Par conséquent, l'aimantation globale reste quasi-constante jusqu'à ce que le champ magnétique externe atteigne une valeur opposée suffisamment élevée pour réorienter les moments dans le sens contraire, mais toujours selon l'axe de facile aimantation.

Un cycle couché est quand à lui caractéristique d'un champ magnétique de mesure parallèle à l'axe de difficile aimantation. Dans ce cas, la diminution de la valeur du champ magnétique après saturation est accompagnée de la réorientation des moments magnétiques qui tendent à s'aligner selon l'axe de facile aimantation.

Notons enfin, que la valeur du champ coercitif est également fortement corrélée à l'angle formé par le champ magnétique externe et la direction de facile aimantation. Pour un même échantillon, lorsque le champ magnétique est appliqué parallèlement à la direction de facile aimantation, le champ coercitif est plus élevé que lorsqu'il est appliqué parallèlement à la direction de difficile aimantation.

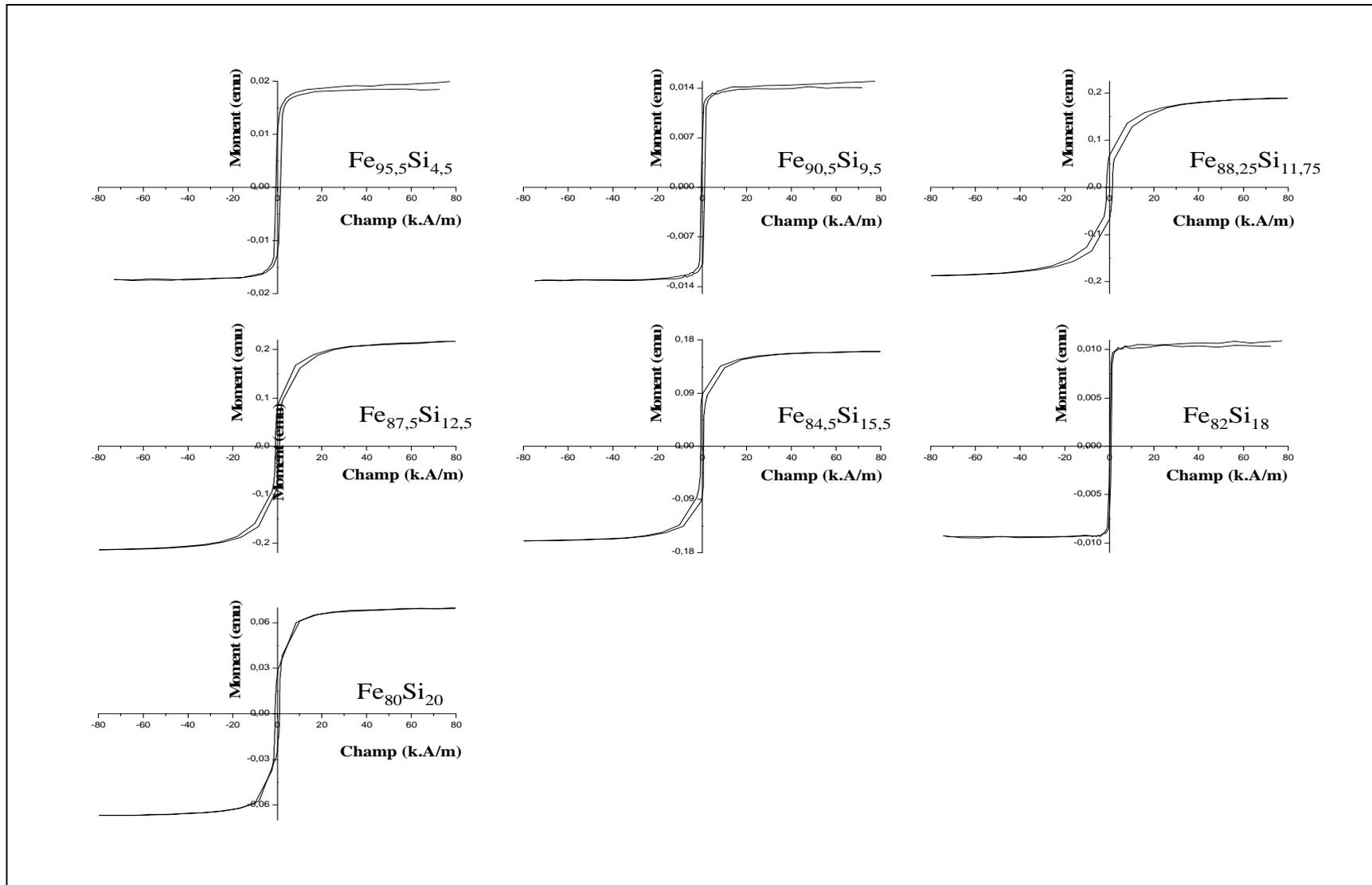


Figure III-26. Cycles d'hystérésis des revêtements cristallisés.

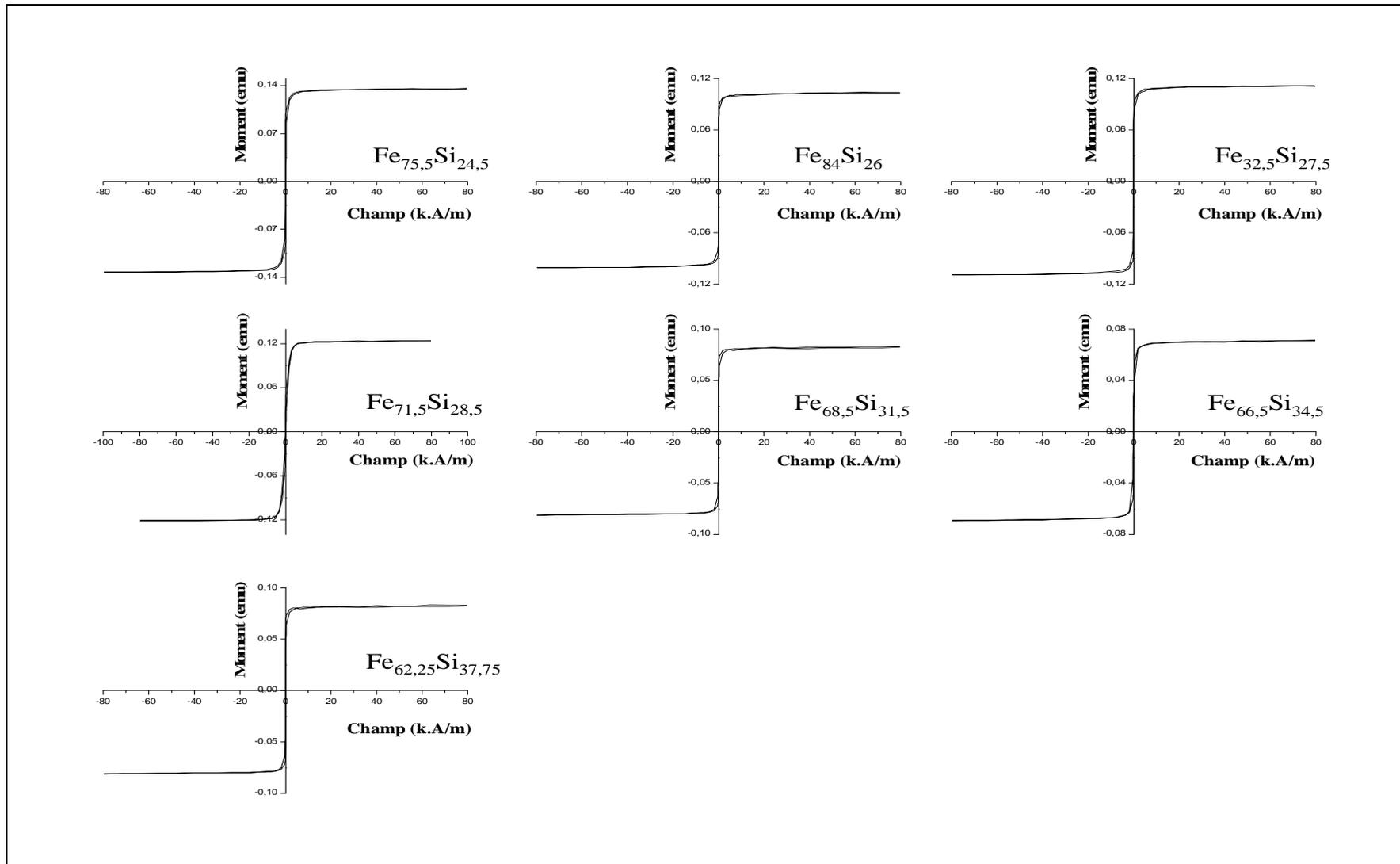


Figure III-27. Cycles d'hystérésis des revêtements amorphes.

La Figure III-28 montre l'évolution des champs coercitifs de ces revêtements en fonction de leur teneur en Si. Les valeurs de  $H_c$  ainsi relevées montrent que les films élaborés sont magnétiquement doux. La Figure III-28 montre l'évolution des champs coercitifs de ces revêtements en fonction de leur teneur en Si. Les valeurs de  $H_c$  ainsi relevées montrent que les films élaborés sont magnétiquement doux.

N'ayant pas contrôlé lors du tracé des cycles l'orientation des axes faciles et difficiles, il nous est impossible de proposer ici une étude rigoureuse de l'évolution du champ coercitif en fonction de la teneur en Si. Cependant, il est évident qu'une forte diminution du champ  $H_c$  accompagne la transition de la structure cristalline vers une structure amorphe.

Aussi, nous proposons dans ce qui suit, une interprétation de nos résultats en nous basant sur la bibliographie [14, 45, 53]. Cette interprétation préliminaire permet de visualiser le rôle primordiale qu'ont les anisotropies magnéto-strictive et magnéto-cristalline sur le champ coercitif.

Dans la partie de la courbe où les films sont cristallisés, on peut noter une forte augmentation du champ coercitif pour les revêtements contenant entre 11 et 20 at.% de Si. On peut interpréter l'évolution de  $H_c$  en fonction de la teneur en Si dans les films en se basant sur l'évolution de l'anisotropie magnéto-cristalline  $K$  et magnéto-strictive  $\lambda$  de l'alliage Fe-Si en fonction de la teneur en Si. Nous supposons pour cela que l'évolution des constantes d'anisotropies  $K$  et  $\lambda$  de l'alliage Fe-Si en couche mince se rapproche de celle de l'alliage massif. Rappelons que les anisotropies magnétiques (magnéto-strictive et magnéto-cristalline) sont les principales grandeurs qui pilotent la valeur du champ coercitif dans les matériaux ferromagnétiques [14,45]. La Figure III-29 montre l'évolution de  $\lambda$  pour l'alliage Fe-Si polycristallin [45], et la Figure III-30 celle de  $K$  en fonction de la teneur en Si [53].

Dans la partie de la courbe où les films sont cristallisés, on peut noter une forte augmentation du champ coercitif pour les revêtements contenant entre 11 et 20 at.% de Si. On peut interpréter l'évolution de  $H_c$  en fonction de la teneur en Si dans les films en se basant sur l'évolution de l'anisotropie magnéto-cristalline  $K$  et magnéto-strictive  $\lambda$  de l'alliage Fe-Si en fonction de la teneur en Si. Nous supposons pour cela que l'évolution des constantes d'anisotropies  $K$  et  $\lambda$  de l'alliage Fe-Si en couche mince se rapproche de celle de l'alliage massif. Rappelons que les anisotropies magnétiques (magnéto-strictive et magnéto-cristalline) sont les principales grandeurs qui pilotent la valeur du champ coercitif dans les matériaux

ferromagnétiques [14,45]. La Figure III-29 montre l'évolution de  $\lambda$  pour l'alliage Fe-Si polycristallin [45], et la Figure III-30 celle de  $K$  en fonction de la teneur en Si [53].

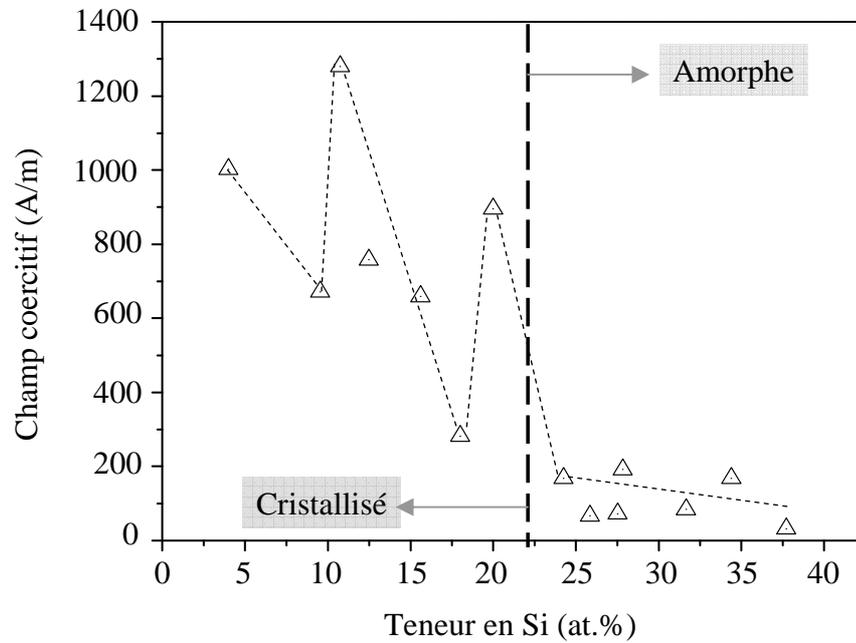


Figure III-28. Evolution du champ coercitif en fonction de la teneur en Si dans les revêtements élaborés par co-pulvérisation.

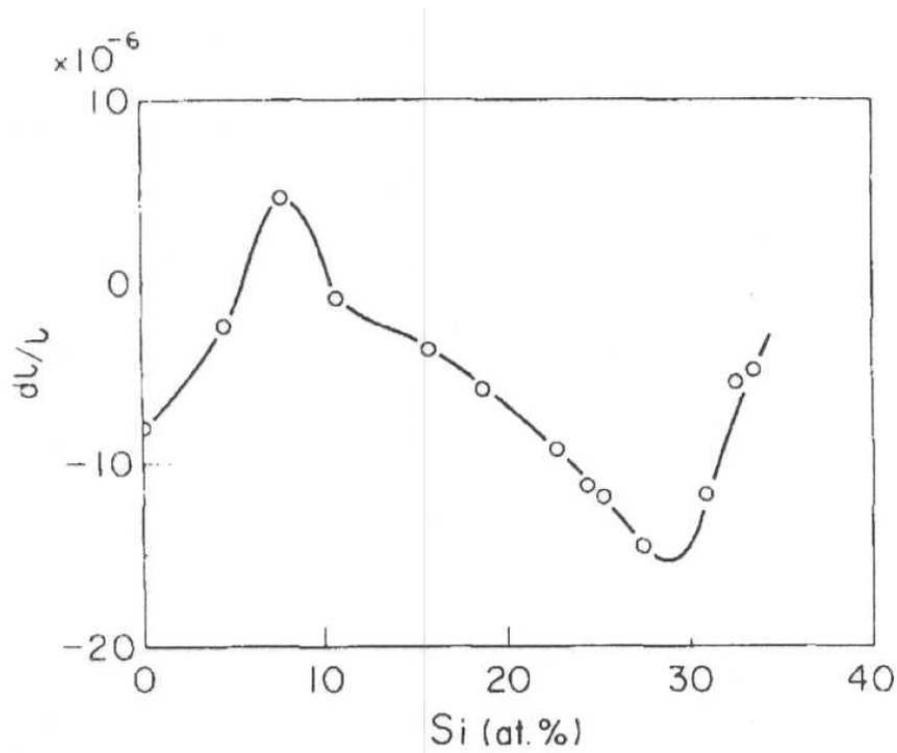


Figure III-29. Evolution de la constante magnéto-strictive en fonction de la teneur en Si dans l'alliage Fe-Si, d'après [45].

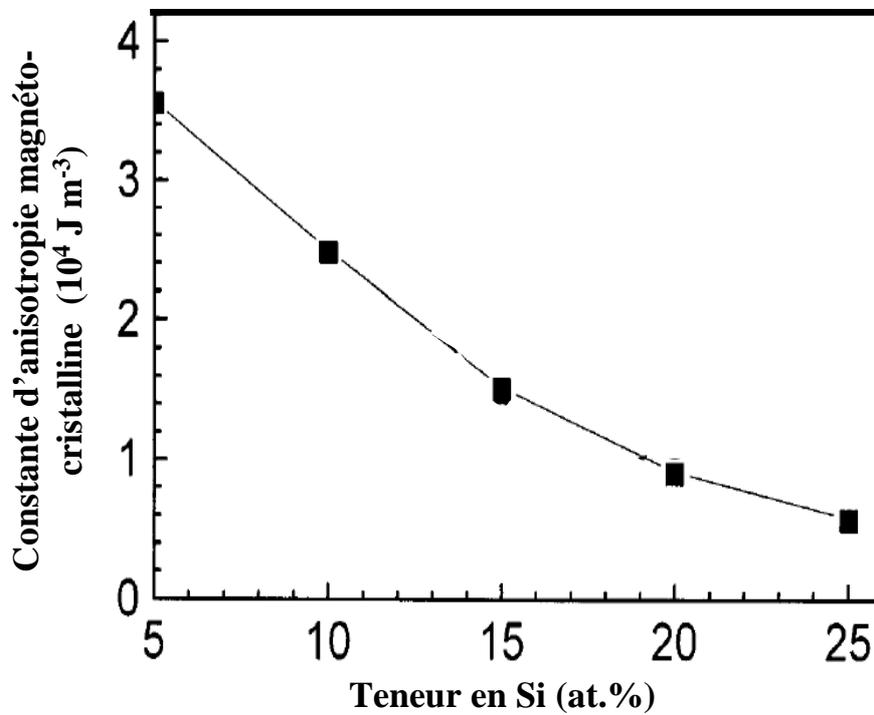


Figure III-30. Evolution de la constante magnéto-cristalline en fonction de la teneur en Si dans l'alliage Fe-Si, d'après [53].

On peut noter que pour des compositions comprises entre 5 et 20 at.% Si l'anisotropie magnéto-cristalline diminue en fonction de la teneur en Si. L'anisotropie magnéto-élastique passe par un minimum entre 5 et 10 at.%, ce qui implique une diminution du champ coercitif. Entre 10 et 15 at.% Si, la valeur de  $\lambda$  passe par un maximum et entraîne une forte augmentation du champ coercitif. Entre 15 et 18 at.% Si, la valeur de  $\lambda$  passe à nouveau par un minimum et la valeur du  $H_c$  chute à nouveau. Entre 18 et 20 at.% Si, la valeur de  $\lambda$  augmente, entraînant une augmentation de  $H_c$ . Cependant, nous observons que  $H_c$  diminue fortement dès que la teneur en Si atteint 24,5 at.%. En effet, dès que la transition cristallin-amorphe a lieu, la valeur de  $K$  est quasi nulle, ce qui entraîne une forte diminution de  $H_c$  pour les revêtements amorphes.

Nous avons supposé, dans l'interprétation ci-dessus, que seules les anisotropies magnéto-cristalline et magnéto-élastique déterminent la valeur du champ coercitif, et que les valeurs de ce dernier ne dépendent pas de la direction de la mesure. Cependant, nous savons que d'autres paramètres peuvent affecter la coercitivité, notamment les contraintes internes, les impuretés, les défauts de croissance et la dispersion des mesures dues au mauvais contrôle de l'orientation de l'axe facile durant les tracés de cycles d'hystérésis.

L'importance de ces paramètres n'a pas pu être ni identifiée ni quantifiée dans notre étude, mais on peut supposer qu'elle participe à l'écart observé entre l'évolution de  $H_c$  dans notre étude par rapport à celle d'autres études [45].

#### III.2.2.4. Etude électrique:

Les mesures de résistivité ont été présentées sur la Figure III-31. Une évolution quasi linéaire de la résistivité en fonction de la teneur en Si est observée. La valeur de la résistivité approche  $2,5 \mu\Omega.m$  pour les films contenant près de 45 at.% Si. Une légère diminution de la résistivité est observée autour de 25 at.% Si, ce qui pourrait indiquer une mise en ordre due à la formation de la phase  $Fe_3Si$ . Cependant, les clichés de diffraction de rayons X n'ont pas permis de confirmer cette hypothèse, en raison de l'aspect amorphe des films pour de telles compositions.

Sur la Figure III-32 sont superposées les valeurs mesurées de la résistivité des revêtements élaborés à partir d'une cible composite avec un substrat fixe, et celles des revêtements élaborés par co-pulvérisation et substrat rotatif. On peut constater une bonne

concordance entre ces deux résultats, ce qui montre qu'aux faibles teneurs en Si (< 10at.%) le mode de dépôt n'a pas une influence directe sur la résistivité.

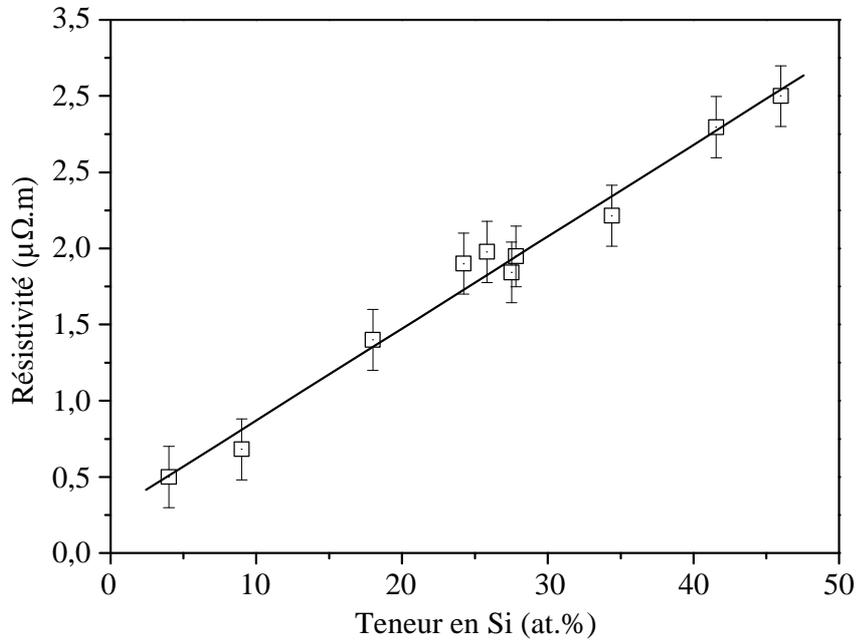


Figure III-31. Evolution de la résistivité des revêtements FeSi élaborés par co-pulvérisation.

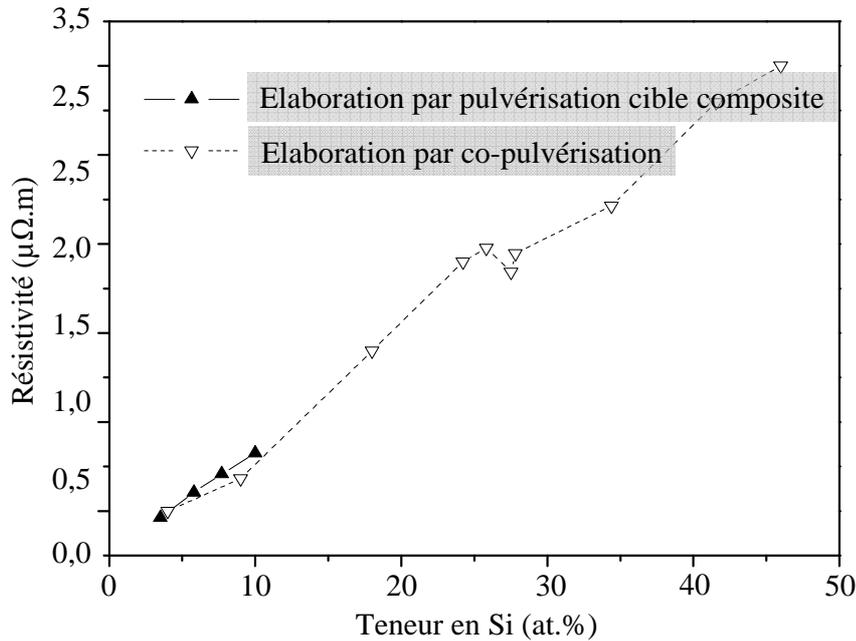


Figure III-32. Superposition des valeurs mesurées de la résistivité pour les échantillons élaborés par pulvérisation d'une cible composite et par co-pulvérisation.

#### III.2.2.5. Caractérisation des domaines magnétiques:

Les domaines magnétiques relatifs à des échantillons pour différentes teneurs en Si ont été observés par effet Kerr magnéto-optique. Les résultats de ces observations sont présentés sur la *Figure III-33*. Notons que les domaines magnétiques ont pu être observés quelle que soit la teneur en Si dans les films de Fe-Si. Les domaines magnétiques observés sur l'échantillon contenant 4 at.% de Si sont des domaines de fermeture qui se forment sur le bord de l'échantillon (voir § I.1.1.5). La forme particulière des domaines observés sur l'échantillon contenant 9,5 at.% est probablement le résultat de l'influence des contraintes existantes au sein de cet échantillon. Les autres échantillons montrent des domaines magnétiques quasiment parallèles entre eux. La largeur de ces domaines varie de 0,25 mm à 2 mm.

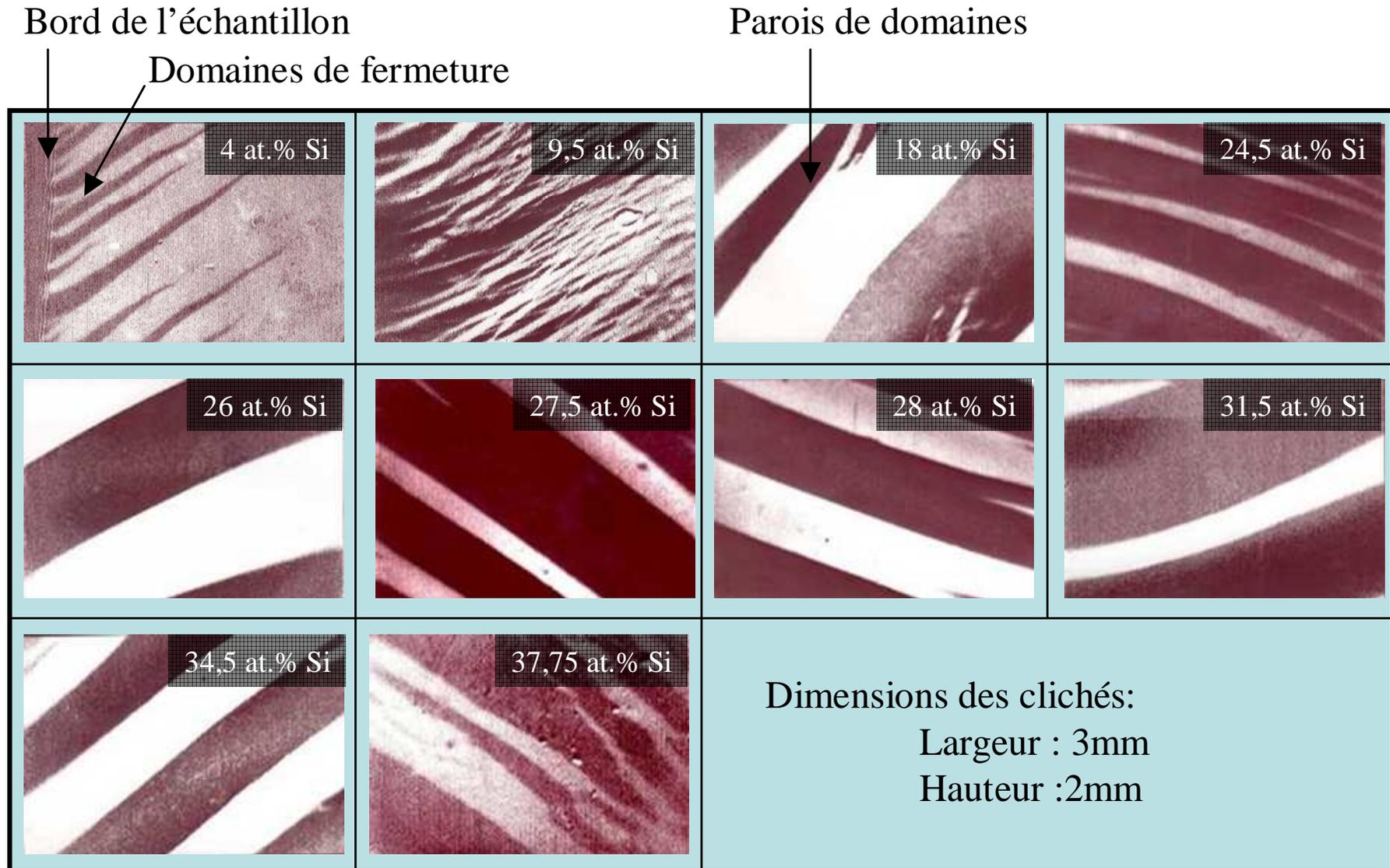


Figure III-33. Domaines magnétiques observés par effet Kerr magnéto-optique.

## Conclusion du chapitre III

La pulvérisation cathodique magnétron a été utilisée pour élaborer des alliages Fe-Si avec divers teneurs en Si. Dans sa configuration initiale, le porte substrat du bâti de pulvérisation était fixe et les flux de pulvérisation des deux cibles existantes ne permettaient pas, en raison de la distance séparant les cibles, d'élaborer un alliage à partir de deux cibles distinctes. Nous avons donc eu recours à la pulvérisation d'une cible composite unique. Celle-ci était obtenue en disposant des pastilles de Si sur une cible en Fe. La composition des films était contrôlée en modifiant la surface des pastilles de Si. La composition des films ainsi obtenus varie de 0 à 15 at.% Si et la zone d'homogénéité et de composition sur le porte substrat s'étend à un cercle de rayon égal à 4,5 cm. Les analyses structurales des revêtements élaborés ont montré que tous les films sont cristallisés dans la structure  $\alpha$ -Fe. Les mesures réalisées au VSM ont montré que les échantillons étaient magnétiquement doux avec une valeur minimum du champ coercitif égale à 500 A/m pour des teneurs en Si autour de 6 at.%. Les mesures de résistivité ont montré une augmentation quasi linéaire de la résistivité avec l'augmentation de la teneur en Si.

Afin de réaliser des revêtements avec des teneurs en Si allant jusqu'à 40 at.% nous avons dû modifier le réacteur de pulvérisation et le doter d'un substrat rotatif. De plus, nous avons ajouté une cible supplémentaire ce qui a porté le nombre total des cibles utilisables lors d'un même dépôt à trois. Ces modifications ont de plus permis d'augmenter sensiblement la zone d'homogénéité en composition et en épaisseur des revêtements élaborés.

Les teneurs en Si des revêtements obtenus varient entre 0 et 39 at.%. Seule la structure  $\alpha$ -Fe a pu être observée dans les revêtements cristallisés. Par ailleurs, la zone de transition cristallin-amorphe se situe vers 24 at.% Si. Cette transition s'accompagne d'une forte diminution du champ coercitif. Cette diminution ainsi que l'évolution générale du champ coercitif en fonction de la teneur en Si ont été expliquées en se basant sur l'évolution des constantes d'anisotropies magnéto-cristalline et magnéto-élastique. La résistivité évolue de manière quasi linéaire en fonction de l'augmentation de la teneur en Si.

Enfin, les observations effectuées par MOKE ont montré que quelles que soient les teneurs en Si entre 4 et 37 at.%, des domaines magnétiques sont observables. La taille de ces domaines est relativement élevée puisque pour certains échantillons nous avons observé des domaines larges de 2 mm.

Les résultats d'analyses nous ont permis d'envisager une application dans le domaine des capteurs à Magnéto-Impédance (MI)

En effet, comme nous l'avons décrit au paragraphe § I.4.5, le cahier des charges pour la réalisation de capteur MI impose au matériau magnétique utilisé d'avoir un champ coercitif faible, une résistivité élevée dans le cas des capteurs en structure sandwich et une anisotropie magnétique, contenue dans le plan, faible mais marquée.

Ces propriétés sont approchées par les revêtements Fe-Si que nous avons élaborés, et notamment par les revêtements de compositions voisines de 25 at.% Si.

Ces derniers possèdent un champ coercitif faible, en général inférieur à 200 A/m. une résistivité de l'ordre de  $1.8 \mu\Omega.m$ , soit 100 fois supérieure à celle de Cu, et une anisotropie faible en raison de leur structure amorphe mais marquée, comme nous pouvons le voir à travers les domaines magnétiques observés par Effet Kerr.

Nous allons dans le chapitre suivant présenter les travaux préliminaires réalisés dans le but d'élaborer des capteurs à MI.

## Chapitre IV. Elaboration et test de capteurs à magnéto-impédance



## Introduction

Les capteurs à Magnéto-Impédance (MI) suscitent depuis les années 90 un intérêt grandissant en raison de leur capacité à détecter les faibles champs magnétiques avec une sensibilité jamais égalée par les capteurs de champ déjà existants.

Historiquement, les premiers capteurs MI ont été élaborés sous forme de micro-fils. Par la suite des capteurs à base de rubans et de couches minces ont été étudiés afin d'en améliorer les performances.

Les capteurs à base de couches minces présentent l'avantage de la miniaturisation. En effet, le défi technologique qui consiste à intégrer un ou plusieurs capteurs à MI dans un dispositif le plus petit possible ouvre un horizon d'application très étendu, allant du biomédical au spatial en passant par l'électronique embarquée.

Comme nous l'avons exposé précédemment, des études ont montré que la réponse des capteurs est amplifiée si une structure sandwich est adoptée dans leur fabrication. Pour rappel, la structure sandwich consiste à insérer un matériau conducteur, généralement du cuivre, entre deux couches minces ferromagnétiques. Dans le cadre de notre étude, nous avons adopté cette structure dans l'élaboration des capteurs.

Notons également, qu'une anisotropie magnétique orientée de manière à ce que les parois de domaines magnétiques soient perpendiculaires au sens de la circulation du courant électrique, participe à une amplification de la réponse du capteur au champ magnétique extérieur (voir la *Figure IV-1-a*).

Enfin, le rapport de la largeur de l'élément conducteur  $l$  à la largeur totale du capteur  $L$ , a une influence certaine sur la réponse de celui-ci. En effet, plus le rapport  $l/L$  est faible, plus le capteur est performant (voir la *Figure IV-1-b*) [79].

Dans le présent chapitre, nous présentons les travaux préliminaires visant à réaliser des capteurs à MI par pulvérisation cathodique magnétron. Le matériau ferromagnétique utilisé dans ces capteurs est l'alliage Fe-Si. La teneur en Si de l'alliage sélectionné pour cette application est de 24 at.% de Si. En effet, cet alliage présente, à notre avis, les propriétés magnétique et électrique les plus adéquates avec le cahier des charges des capteurs à MI : Un

faible champ coercitif, une résistivité cent fois plus élevée que celle du Cu et une anisotropie magnétique faible mais marquée.

Comme nous l'avons évoqué ci-dessus, l'orientation des domaines magnétiques par rapport au sens de la circulation du courant électrique dans le conducteur revêt une importance primordiale dans la conception du capteur. Aussi, dans un premier temps nous avons optimisé les conditions d'élaboration de la couche mince magnétique dans cette optique.

Par la suite, nous avons réalisé différents capteurs en modifiant la valeur du rapport  $l/L$ , et en orientant volontairement les domaines perpendiculairement et parallèlement au sens de circulation du courant électrique.

Enfin, nous avons testé les capteurs sur un banc de caractérisation dédié aux capteurs à MI.

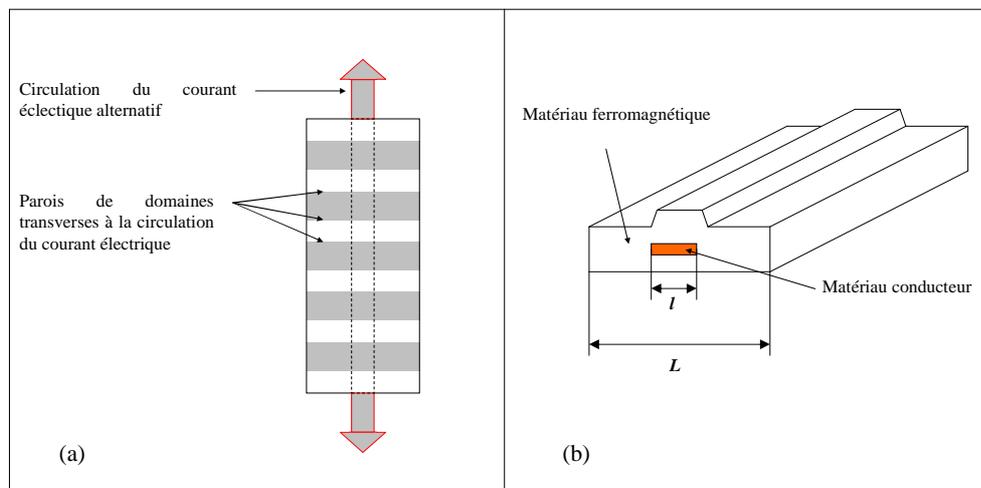


Figure IV-1. (a) Orientation optimale des domaines magnétiques par rapport au sens de circulation du courant électrique; (b) Schéma représentatif d'un capteur à MI en structure sandwich où  $l$  est la largeur du matériau conducteur et  $L$  la largeur totale du capteur.

## IV.1. Optimisation de l'orientation des domaines magnétiques

Sur la Figure III-33, nous avons observé l'orientation des domaines magnétiques par effet Kerr sur les échantillons de différentes compositions. Sur cette figure nous remarquons que les domaines ne sont pas orientés dans la même direction selon la composition. Les observations n'ayant pas été effectuées dans la même zone sur tous les échantillons, il nous est donc difficile de savoir si ces différences d'orientation sont le résultat de la composition ou de la position sur le porte substrat. Afin de clarifier ce point, nous avons réalisé pour un échantillon des observations des domaines en fonction de la distance à l'axe du substrat (voir la Figure IV-2). Les images issues de ces observations sont présentées sur la Figure IV-3.

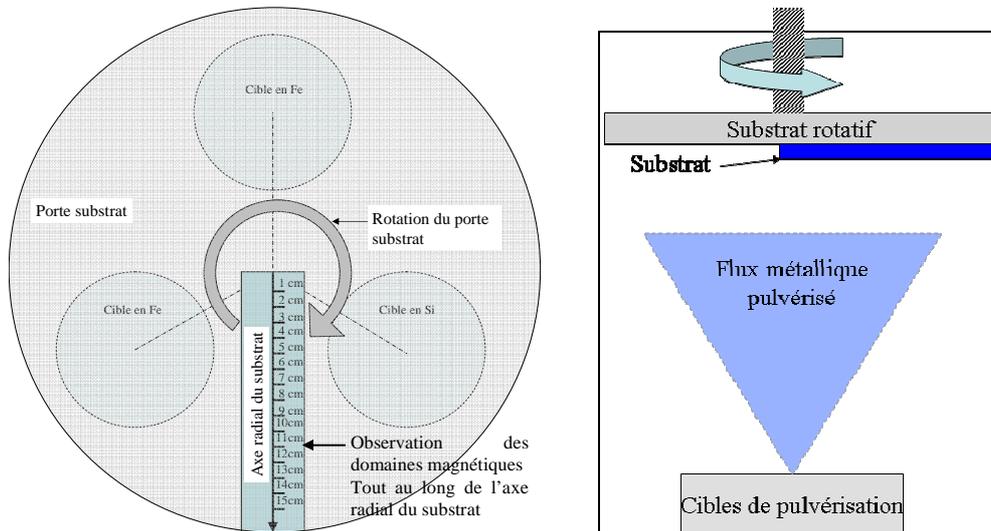


Figure IV-2. Schéma explicatif du positionnement de l'échantillon sur le porte substrat et des zones d'observation des domaines magnétiques.

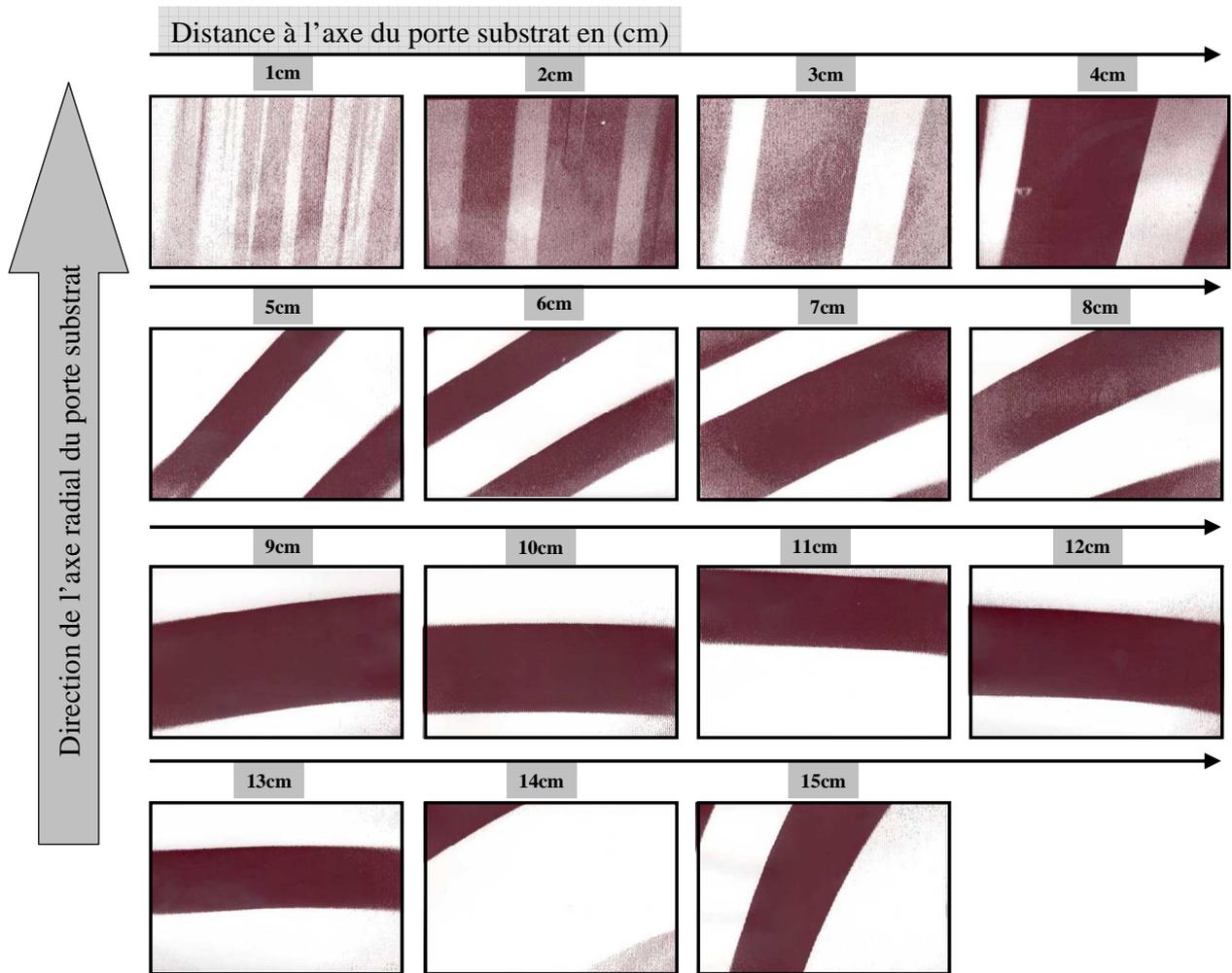
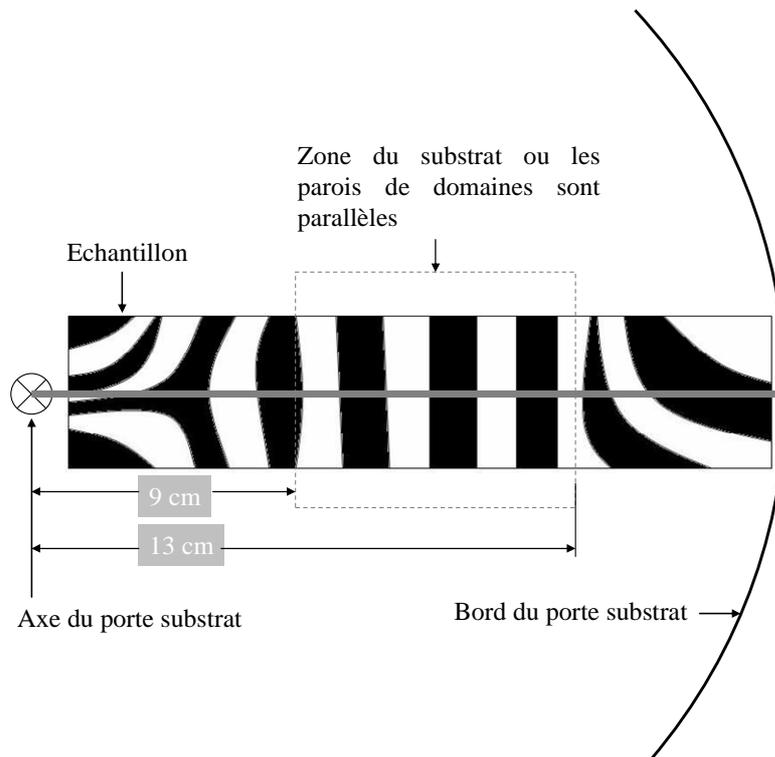


Figure IV-3. Photographies des domaines magnétiques observés par effet Kerr en fonction de la distance à l'axe du porte substrat pour un échantillon Fe-Si contenant 24 at.% de Si.

Il est possible de reconstituer schématiquement les domaines magnétiques sur l'ensemble de l'échantillon (voir la Figure IV-4). Il apparaît clairement qu'entre 9 et 13 cm de l'axe du porte substrat, les parois de domaines magnétiques sont parallèles entre elles. Notons de plus que dans cette zone le revêtement est suffisamment homogène en composition et en épaisseur pour supposer que les propriétés magnétiques et électriques ne varient pas de manière importante.



*Figure IV-4. Reconstitution des domaines magnétiques sur un échantillon le long de l'axe radial du porte substrat.*

Les mêmes orientations de domaines ont été observées sur d'autres revêtements de compositions différentes, ce qui permet d'affirmer que pour une épaisseur supérieure à  $1 \mu\text{m}$ , ces résultats sont reproductibles. Pour de faibles épaisseurs, nous avons noté une modification de l'orientation des domaines et même une disparition du contraste observé par effet Kerr lorsque l'épaisseur des revêtements est inférieure à  $0,4 \mu\text{m}$ . Il semble donc que l'épaisseur joue un rôle important sur l'anisotropie magnétique des films élaborés dans notre réacteur. Cependant, l'épaisseur minimum requise pour observer un effet de Magnéto-Impédance conséquent est de  $1 \mu\text{m}$  et l'effet de l'épaisseur sur l'anisotropie magnétique n'a pas fait l'objet d'une étude approfondie.

A présent nous avons déterminé la zone sur le porte substrat sur laquelle seront positionnés les échantillons servant à la fabrication des capteurs. La prochaine étape consiste à élaborer les capteurs.

## IV.2. Elaboration des capteurs

L'élaboration des capteurs à magnéto-impédance par pulvérisation cathodique magnétron a nécessité de passer par trois étapes de dépôt. D'abord, des masques sont appliqués aux substrats et la première couche de Fe-Si est élaborée. Les substrats sont ensuite retirés du réacteur et de nouveaux masques sont plaqués sur les échantillons. Ceux-ci sont ensuite remis dans le réacteur et une couche de Cu est déposée sur la surface non recouverte par le masque. Enfin, les masques de la seconde étape sont retirés et ceux de la première étape sont placés à nouveau sur les échantillons et la dernière couche de Fe-Si est déposée.

Les masques sont réalisés à l'aide de lames de verre coupées selon le dessin recherché. Le substrat utilisé est également une lame de verre. La largeur du conducteur en Cu est contrôlée en écartant plus ou moins les lames de verre lors de la réalisation des masques.

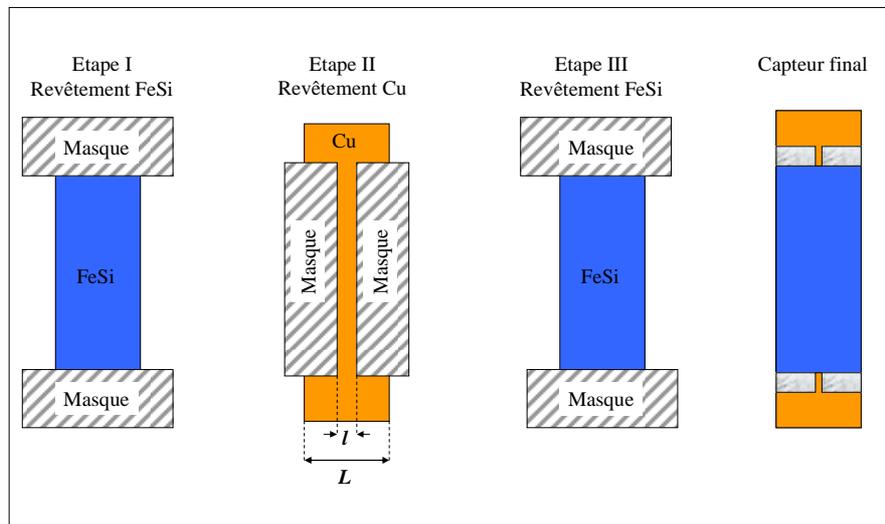
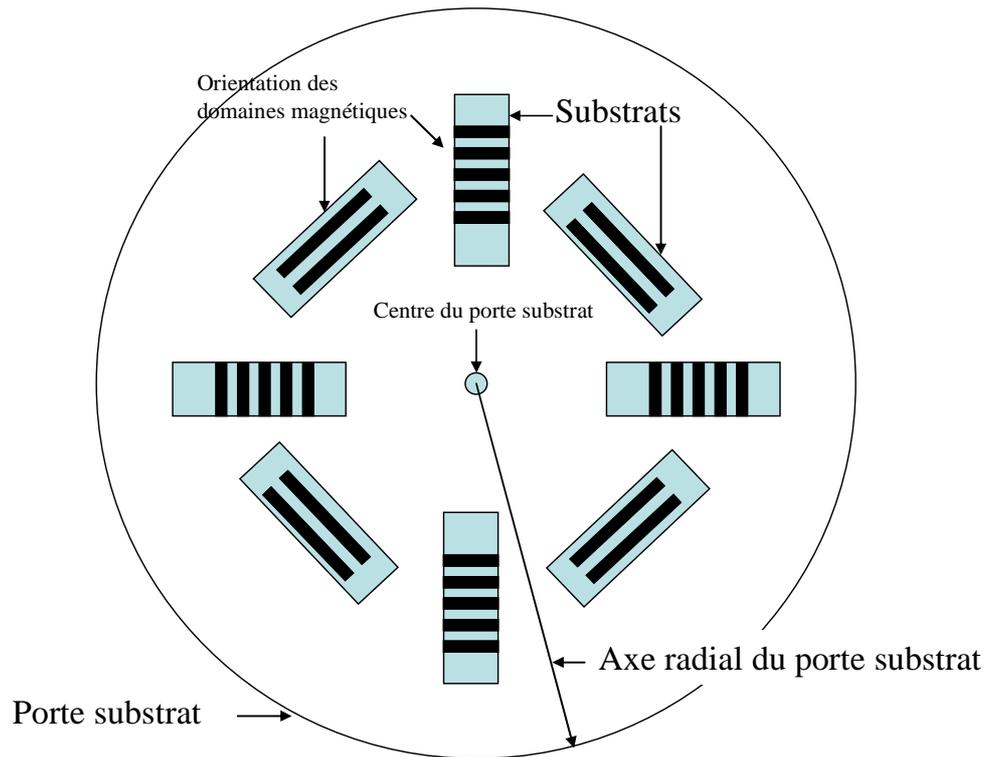


Figure IV-5. Différentes étapes nécessaires à la réalisation d'un capteur

MI.

Le procédé utilisé pour orienter les domaines magnétiques dans un sens parallèle ou perpendiculaire à la bande du Cu a consisté à placer les échantillons le long de l'axe radial du substrat ou perpendiculairement à celui-ci (voir la Figure IV-6).



*Figure IV-6. Schéma représentatif de la disposition des différents substrats pour l'élaboration des capteurs.*

L'épaisseur des deux couches ferromagnétiques de Fe-Si est de  $3\ \mu\text{m}$  ( $1,5\ \mu\text{m}$  pour chaque couche ferromagnétique) et l'épaisseur de la couche de Cu est  $1\ \mu\text{m}$ .

Une fois les capteurs élaborés il faut les tester. Le banc qui a permis de réaliser ces tests à été décrit au § II.2.2.4.

### IV.3. Test des capteurs

Rappelons que le test des capteurs à MI consiste à mesurer la variation d'impédance aux bornes du conducteur en cuivre lorsque celui-ci est parcouru par un courant alternatif et soumis à un champ magnétique externe variable. Le dispositif décrit au § II.2.2.4 doit être complété par la description du support du capteur utilisé lors de la mesure. Celui-ci permet de disposer le capteur dans la zone de champ magnétique la plus homogène. Il contient également une résistance dont la valeur est calculée en fonction de la résistance du capteur. Branchée en série, elle permet de fixer le courant électrique circulant dans celui-ci (voir la Figure IV-7).

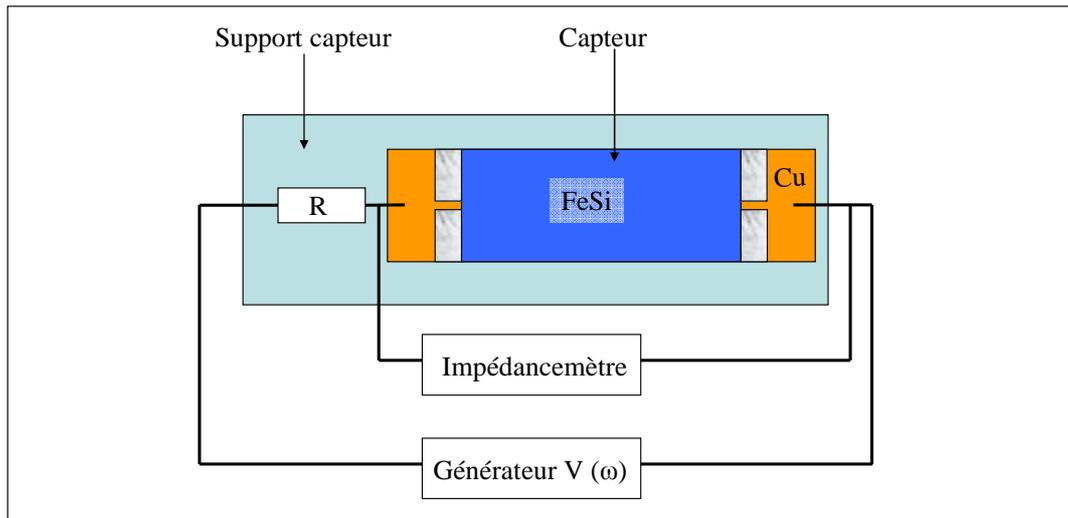


Figure IV-7. Cellule de positionnement et de connexion des capteurs.

Trois types de capteurs ont été élaborés et testés à l'aide de cet appareillage. Deux capteurs, dont l'épaisseur totale est de  $3\ \mu\text{m}$ , sont formés à partir de deux couches Fe-Si de  $1,5\ \mu\text{m}$  d'épaisseur chacune, entre lesquelles est insérée une couche de Cu de  $1\ \mu\text{m}$  d'épaisseur (voir Figure IV-8-A et Figure IV-8-B). Les dimensions latérales de ces capteurs sont décrites dans la Figure IV-8. Un troisième capteur plus épais est formé de deux couches Fe-Si de  $4\ \mu\text{m}$  d'épaisseur chacune pour une épaisseur totale de  $8\ \mu\text{m}$  (voir Figure IV-8-C). Les dimensions de la couche de Cu restent inchangées. Dans tous les cas la longueur de la couche Fe-Si est de 4cm.

Pour les capteurs de  $3\ \mu\text{m}$  d'épaisseur, l'orientation des domaines magnétiques est selon les capteurs :

- ✓ Capteur "**Type 1**" : Perpendiculaire au sens de la circulation du courant  $I(\omega)$  (voir Figure IV-8-A)
- ✓ Capteur "**Type 2**" : parallèle à  $I(\omega)$  (voir Figure IV-8-B.)
- ✓ Capteur "**Type 3**" : Les domaines du capteur de  $8\ \mu\text{m}$  d'épaisseur sont quant à eux parallèles à  $I(\omega)$  (voir Figure IV-8-C).

Les configurations correspondant aux trois types de capteurs sont schématisées sur la Figure IV-8.

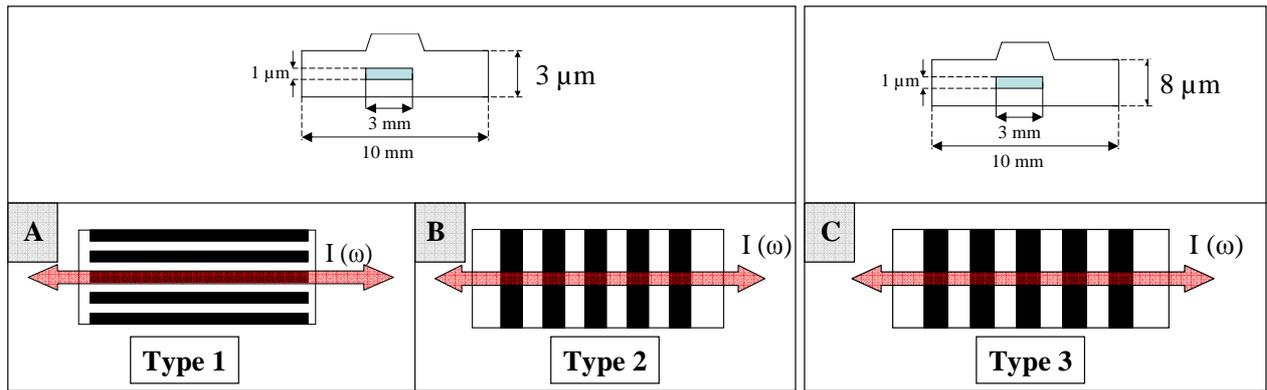


Figure IV-8. Schéma explicatif des dimensions latérales et de l'orientation des domaines magnétiques dans les capteurs caractérisés.

L'effet magnéto-impédance est, le plus souvent, exprimé en terme de variation d'impédance en fonction du champ magnétique extérieur appliqué. Ce champ peut être appliqué selon deux modes distincts :

- ✓ Le mode transverse "TMI" : lorsque  $H$  est appliqué perpendiculairement au sens de circulation du courant électrique  $I(\omega)$ .
- ✓ Le mode longitudinal "LMI" lorsque qu'il est colinéaire à  $I(\omega)$ .

L'ensemble des résultats des tests du capteur Type 1 sont regroupés sur les Figure IV-9. La Figure IV-9-A donne la variation relative d'impédance  $\Delta Z/Z_{\text{sat}}$  en fonction du champ magnétique externe pour différentes fréquences de  $I(\omega)$  en mode TMI. La variation est maximale lorsque le champ magnétique est nul quelque soit la fréquence du courant électrique. La valeur maximum de  $\Delta Z/Z_{\text{sat}}$  est atteinte à 5 MHz. Elle est de 4,5%. Les résultats pour le mode LMI sont reportés sur la Figure IV-9-B. Pour des fréquences de 5, 10 et 15 MHz la valeur maximum est observée pour un champ nul. Pour des fréquences voisines de 20 MHz un plateau est observé dans la courbe entre 0 et 500 A/m. Un tel comportement a déjà été noté dans d'autres travaux [58].

Avant d'expliquer ce phénomène, rappelons que le courant électrique qui parcourt le capteur génère un champ magnétique qui modifie la configuration magnétique. Aux basses fréquences, les changements d'aimantation se font par déplacement des parois de Bloch,

tandis qu'à hautes fréquences, la rotation spontanée des moments magnétiques devient prépondérante.

Dans la configuration du capteur Type 1, les domaines magnétiques sont orientés dans le sens de la longueur. Aussi, lorsqu'un faible champ magnétique est appliqué en mode LMI, il ne modifie que très peu la perméabilité transverse de l'alliage Fe-Si. En conséquence, pour de faibles champs en mode LMI, l'effet MI est faible.

Lorsque le champ est appliqué en mode TMI, son influence sur la perméabilité transverse est plus conséquente. Ceci explique que la variation d'impédance relative atteigne 4,5 % en mode TMI contre, seulement, 3,2 % en mode LMI.

La Figure IV-9-C reprend les valeurs maximales de variation d'impédance en fonction de la fréquence du courant électrique entre 0,5 et 20 MHz. Il apparaît que, dans cette gamme de fréquences, les variations les plus importantes soient observées pour 5 MHz.

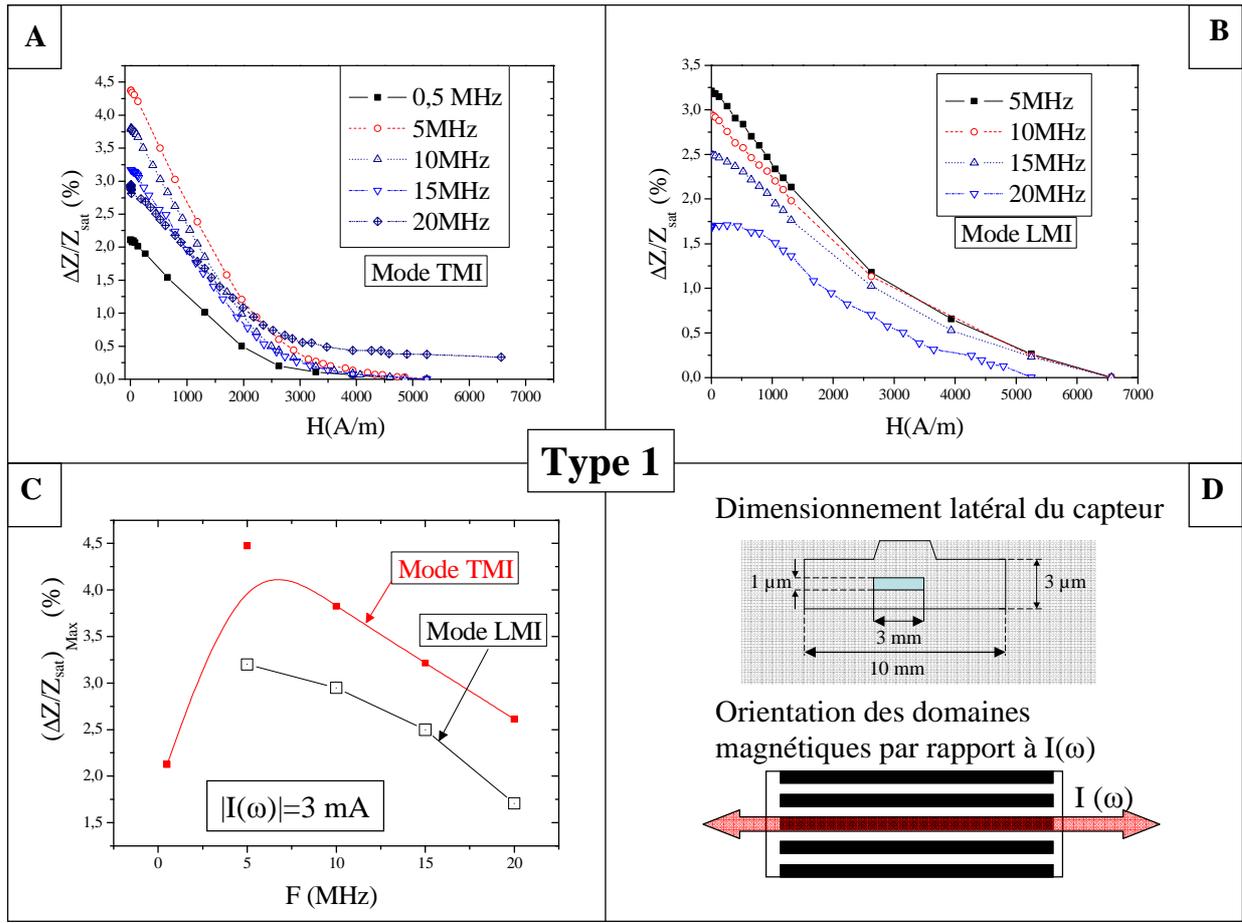
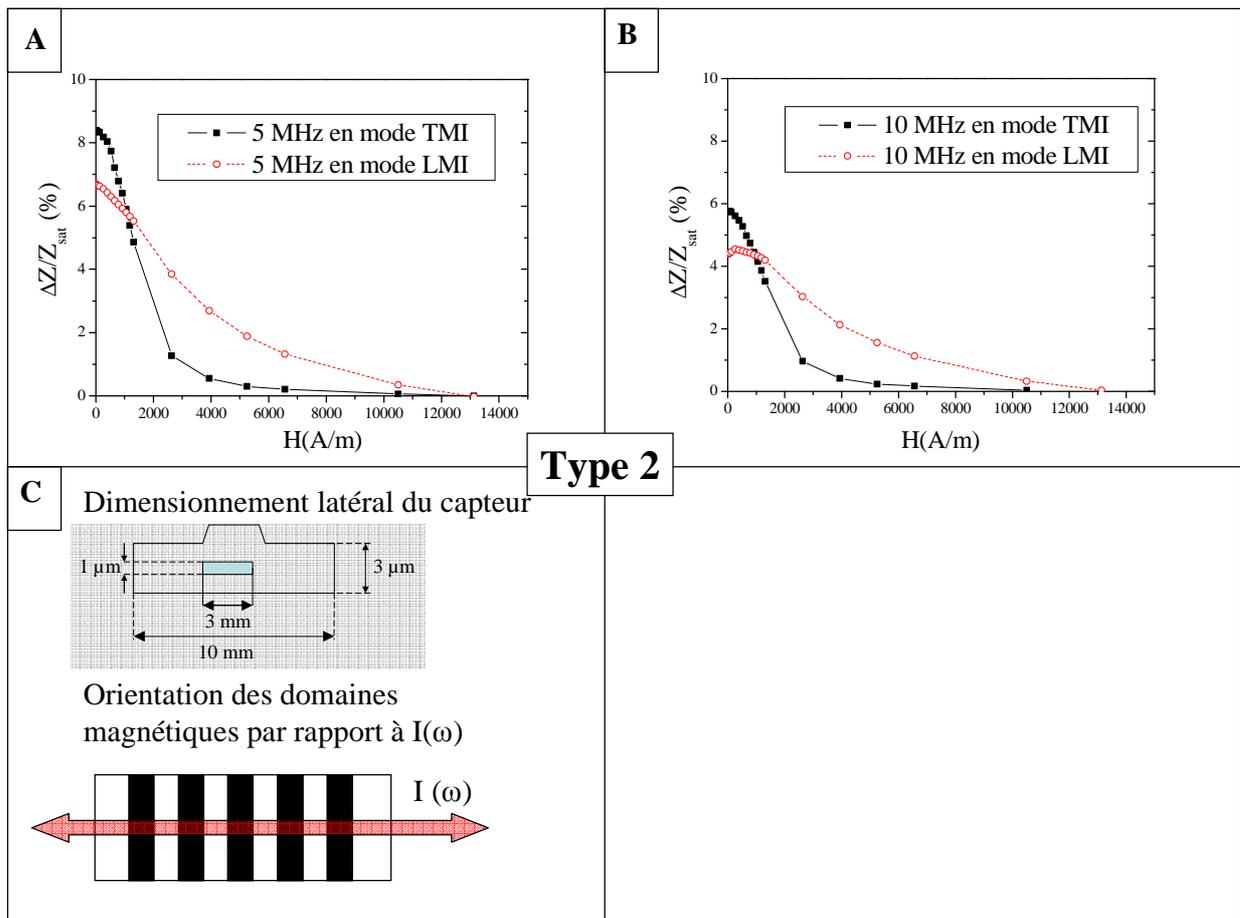


Figure IV-9. Courbes de caractérisation du capteur Type 1. A: Variation relative d'impédance pour différentes fréquences en fonction du champ externe appliqué en mode TMI. B: Variation relative d'impédance pour différentes fréquences en fonction de champ externe appliqué en mode LMI. C: Variation relative maximum en fonction de la fréquence pour les modes TMI et LMI. D: Dimensions latérales du capteur et orientation des domaines magnétiques.

Le capteur de Type 2 a ensuite été testé. Les résultats de ces mesures sont regroupés sur les Figure IV-10. Afin de comparer les résultats obtenus pour le capteur de Type1 avec ceux du capteur de Type 2, nous avons réalisé les mesures de variation d'impédance pour une fréquence de 5 MHz. Par ailleurs nous avons vérifié expérimentalement que l'effet MI est maximum à cette fréquence. Comme dans le capteur de Type 1, la réponse du capteur de Type 2 en mode TMI est plus importante qu'en mode LMI. Une fois encore, c'est l'influence du champ magnétique sur la perméabilité transverse qui est en cause. De plus, l'effet est

sensiblement plus important dans ce capteur alors qu'il a été élaboré en même temps que le capteur de Type1. La seule différence réside dans l'orientation des domaines magnétiques par rapport au courant électrique. Cependant, il a été noté dans d'autres travaux [55,58,80] que des parois de domaines perpendiculaires au courant électrique sont plus favorables à l'effet MI. Cela provient de la sensibilité accrue des moments magnétiques à la conjugaison des champs magnétiques produits, d'une part par la circulation du courant électrique et, d'autre part, par le champ magnétique externe. Des résultats semblables mais moins intenses sont observés à 10 MHz (voir *Figure IV-10-B*)



*Figure IV-10. Courbes de caractérisation du capteur Type 2. A: Variation relative d'impédance à 5 MHz pour les modes TMI et LMI. B: Variation relative d'impédance à 10 MHz pour les modes TMI et LMI. C: Dimensions latérales du capteur et orientation des domaines magnétiques.*

Les résultats présentés ci-dessus nous ont mené à concevoir un capteur possédant une orientation des domaines magnétiques la plus favorable (identique au capteur Type 2), mais

plus épais. Ceci a été réalisé dans l'objectif d'accroître la quantité de matière qui entre en interaction avec les champs magnétiques. Le capteur Type 3 est donc un capteur possédant des parois de Bloch perpendiculaires au sens de circulation du courant électrique et l'épaisseur totale est de 8  $\mu\text{m}$  contre 3  $\mu\text{m}$  pour les capteurs Type 1 et Type 2.

Les résultats de caractérisation de ce capteur sont présentés sur la Figure IV-11. Les variations d'impédance en fonction du champ pour différentes fréquences en mode TMI sont reportées sur la Figure IV-11-A. Quelque soit la fréquence, la variation d'impédance est la maximale pour une valeur nulle du champ magnétique externe. La courbe représentant la variation maximale d'impédance en fonction de la fréquence du courant électrique parcourant le capteur est présenté sur la Figure IV-11-B. Il apparaît, ici encore, que les valeurs de  $(\Delta Z/Z_{\text{sat}})_{\text{Max}}$  sont maximales autour de 5 MHz. Cependant, ces valeurs sont plus faibles que celles reportées pour le capteur Type 2. Différentes contributions peuvent expliquer cette baisse de l'effet MI. D'abord, il est possible que les contraintes plus marquées dans les revêtements épais perturbent les domaines magnétiques dans le cœur du matériau ferromagnétique. Ensuite, une épaisseur plus élevée entraîne un gradient de composition en profondeur. Or, il est primordial que la teneur en Si dans l'alliage Fe-Si soit proche de 26 at. %. En effet, plus la teneur en Si diminue dans le revêtement (ce qui est le cas en raison d'une augmentation de la pulvérisation de la cible en fer voir §-I.2.3), plus la constante d'anisotropie magnéto-cristalline augmente détériorant dans le même temps le caractère magnétique doux de l'alliage Fe-Si. Enfin, Il est possible que de fortes contraintes aient induit un décollement du revêtement à son interface avec le conducteur en cuivre. Dans ce cas, le champ produit par  $I(\omega)$  n'interagirait plus de manière optimale avec le matériau ferromagnétique en raison de la formation de champ de fuite.

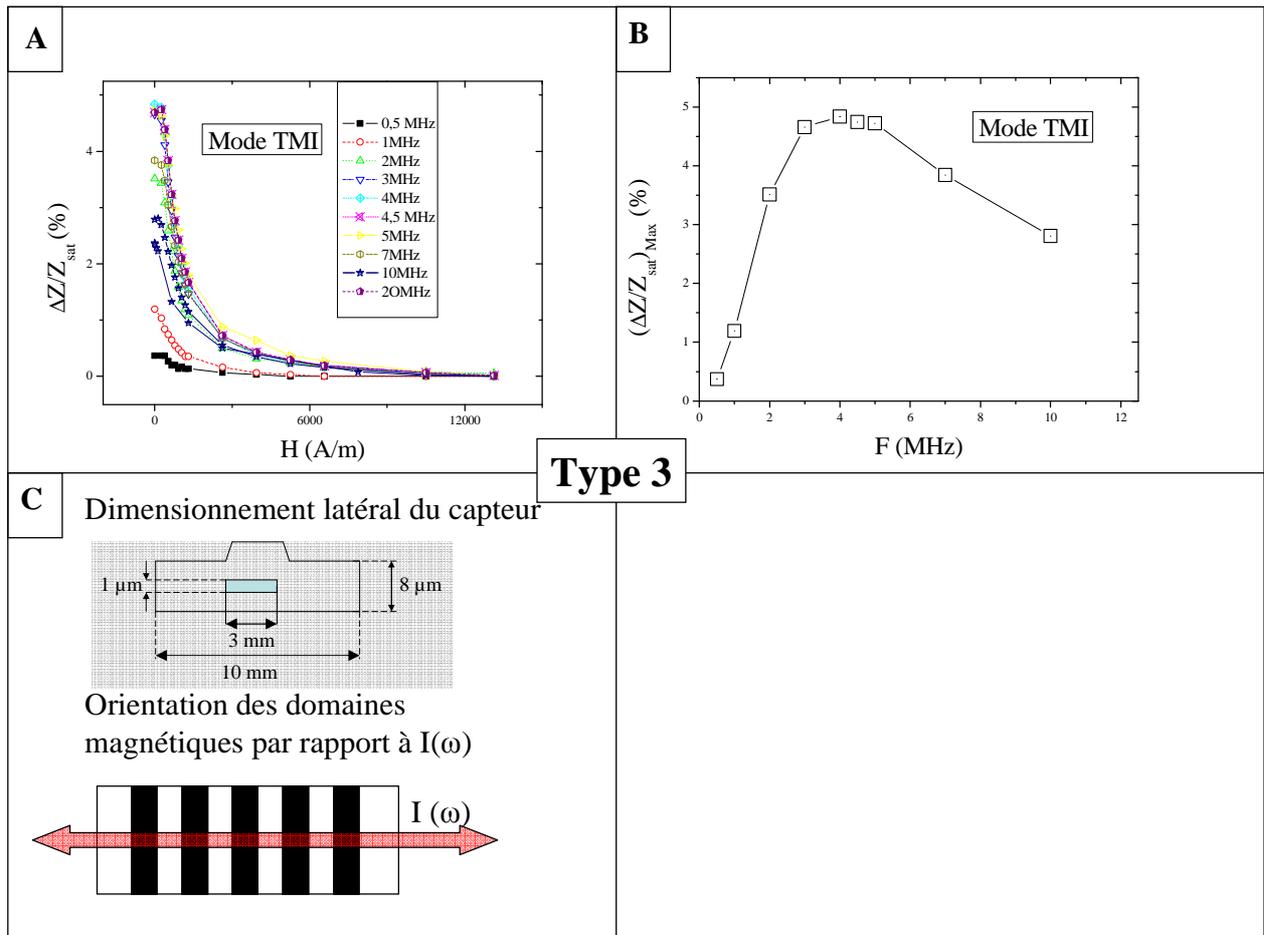


Figure IV-11. Courbes de caractérisation du capteur Type 3. A: Variation relative d'impédance pour différentes fréquences en fonction du champ externe appliqué en mode TMI. B: Variation relative maximum en fonction de la fréquence pour le mode TMI. C: Dimensions latérales du capteur et orientation des domaines magnétiques.

Enfin, l'histogramme présenté sur la Figure IV-12 montre que le capteur le plus performant, parmi ceux que nous avons élaborés et testés, est le capteur de Type 2 (Parois de Bloch perpendiculaire au sens de circulation de  $I(\omega)$ ) en mode TMI (variation de  $Z$  de l'ordre de 8,5%). En seconde position, on retrouve le même capteur en mode LMI (variation de l'ordre de 6,5%). Le capteur épais de Type 3 et le capteur de Type 1 présentent des valeurs de variations d'impédance du même ordre (autour de 4,5 %).

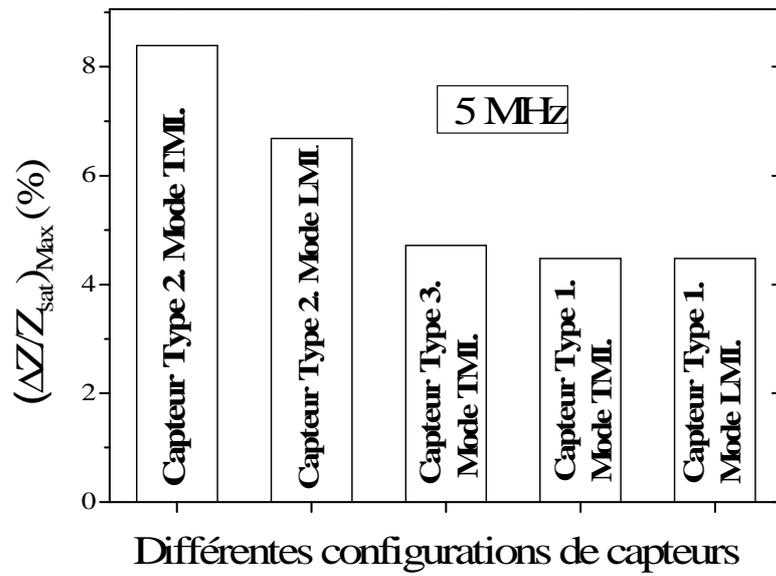


Figure IV-12. Histogramme de classification des capteurs en fonction de leur type et du mode d'application du champ magnétique externe.

## Conclusion du chapitre IV

La première partie de ce chapitre met en exergue les travaux visant à contrôler l'orientation des domaines magnétiques dans les films Fe-Si élaborés par co-pulvérisation. Le second point abordé est celui de la description des étapes nécessaires à la fabrication d'un capteur, notamment en détaillant les dimensions des capteurs et les masques utilisés pour obtenir un capteur en structure sandwich. Par la suite, un descriptif du dispositif de caractérisation des capteurs a été présenté. En particulier, nous avons schématisé l'élément servant de support au capteur, sur lequel les branchements des différents appareils de mesures sont effectués. Enfin, les résultats de ces caractérisations pour trois types de capteurs ont été présentés.

Ces résultats montrent que l'effet Magnéto-impédance est observable dans les revêtements ferromagnétiques Fe-Si à 26 at. % Si. L'étude du phénomène, tous types de capteurs et tous modes d'aimantation confondus, montre que la fréquence optimale dans la gamme [0,5 à 20 MHz] pour l'effet MI est de 5 MHz. Cette fréquence a été retenue pour comparer la variation d'impédance relative maximale  $(\Delta Z/Z_{sat})_{Max}$  entre les différents types de capteur et dans les différents modes d'aimantation. Les résultats montrent que celle-ci varie entre 4,5 et 8,5 %. Les meilleures performances des capteurs sont atteintes par le capteur de Type 2 (3  $\mu\text{m}$  d'épaisseur et des domaines transverses) en mode TMI. Ces travaux montrent l'importance de l'orientation des domaines magnétiques dans l'effet Magnéto-impédance.



## Conclusion générale

L'objectif premier de ce travail de thèse a été de réaliser des films minces ferromagnétiques doux à base de Fe. Dans cette optique, la pulvérisation cathodique magnétron a été utilisée et l'alliage Fe-Si a été choisi comme composé à étudier.

Peu d'études portant sur l'alliage Fe-Si à haute teneur en Si (supérieure à 6 at.%) élaboré par pulvérisation cathodique magnétron ont été, à notre connaissance, publiés. Pourtant cet alliage présente un intérêt certain de par ces performances magnétiquement douces supérieures à celles des alliages de composition plus conventionnelle (3 et 6 at.%). En effet, pour des teneurs en Si élevées, la résistivité de ce matériau augmente tout en conservant un champ coercitif faible (inférieur à 1000A/m). Cela en fait un matériau prometteur pour de nombreuses applications.

Parmi les différentes compositions possibles de l'alliage (coté riche en fer), celles entraînant l'apparition d'une phase amorphe nous sont apparues comme étant particulièrement intéressante à étudier. En effet, les propriétés magnétiques, notamment la valeur du champ coercitif, sont fortement corrélées à la disposition des atomes dans le matériau.

Dans ce contexte, notre étude a été conçue en quatre étapes:

1. établir un état de l'art des travaux de recherche portant sur l'alliage Fe-Si à haute teneur en Si élaboré par pulvérisation,
2. utiliser un dispositif de pulvérisation cathodique magnétron afin de réaliser des films de différentes teneurs en Si,
3. réaliser une étude des différentes propriétés structurales, magnétiques et électriques des revêtements,
4. mettre à profit les propriétés observées dans la conception et la réalisation d'une application originale.

Concernant la partie technique de ce travail, les premiers résultats ont été obtenus par pulvérisation d'une cible composite formée par une cible en fer sur laquelle nous avons disposé des pastilles de silicium. Ce procédé, bien que facile à mettre en oeuvre, a montré ses limites, tant en terme de reproductibilité que de surface exploitable sur le porte substrat. C'est

pourquoi nous avons fait évoluer le réacteur de pulvérisation initial vers un système permettant de faire de la co-pulvérisation.

Une fois ce dispositif opérationnel, nous avons abordé les difficultés de pulvérisation des cibles en fer en raison de leur nature ferromagnétique. C'est pourquoi une part importante de notre travail a consisté à établir un protocole expérimental permettant de pulvériser les cibles en Fe, tout en assurant un contrôle optimal de la composition de l'alliage déposé.

A partir de ce protocole, les films ont été élaborés et leur caractérisation a permis d'établir un large panorama de leurs propriétés structurales, magnétiques et électriques.

Parmi les résultats de ces caractérisations, une transition cristallin-amorphe a été détectée à une teneur de 26 at.% Si. Pour des teneurs en Si inférieures, seule la structure  $\alpha$ -Fe a été observée et l'évolution du paramètre de maille pour les échantillons cristallisés diminue en même temps que la teneur en Si augmente.

Les analyses magnétiques ont montré que l'aimantation dans les films est préférentiellement orientée dans le plan. De plus, le champ coercitif dans le plan a été mesuré pour tous les échantillons. Son évolution en fonction de la teneur en Si a été reliée à l'évolution de l'anisotropie magnéto-cristalline et magnéto-élastique. En particulier, la chute de la valeur de l'anisotropie magnéto-cristalline lorsque la phase amorphe se forme dans l'alliage entraîne une forte chute du champ coercitif.

Les mesures de résistivité, par la méthode des quatre-pointes, a mis en évidence une évolution quasi linéaire de la résistivité en fonction de la teneur en Si. Ce résultat confirme les analyses structurales et atteste que la phase ordonnée  $\text{Fe}_3\text{Si}$  de structure  $\text{DO}_3$  n'est probablement pas formée dans le cas des revêtements de Fe-Si obtenus par PVD.

Enfin, les domaines magnétiques, observés par effet Kerr magnéto-optique longitudinal, confirment que l'aimantation dans les films se situe majoritairement dans le plan du substrat et la largeur des domaines est particulièrement importante, pouvant atteindre 2  $\mu\text{m}$ . L'alliage  $\text{Fe}_{74}\text{Si}_{26}$  en particulier est formé de domaines parfaitement bien définis, et les parois de ces domaines sont sensiblement parallèles.

Après avoir accumulé un certain nombre de résultats, nous avons tâché de concevoir une application qui soit en adéquation avec les propriétés des alliages élaborés. Notre choix s'est porté sur les capteurs de champ à magnéto-impédance.

En effet, ce type de capteur nécessite l'utilisation de couches minces pourvues des propriétés suivantes :

- ✓ un faible champ coercitif,
- ✓ une anisotropie magnétique marquée dans le plan,
- ✓ des domaines parallèles entre eux,
- ✓ une résistivité électrique sensiblement plus élevée que celle du cuivre dans le cas de capteur en structure sandwich.

L'alliage  $\text{Fe}_{74}\text{Si}_{26}$  est théoriquement un bon candidat pour cette application.

Avant de passer à l'étape d'élaboration du capteur, nous avons réalisé une étude visant à déterminer l'orientation des domaines magnétiques en fonction de la position des échantillons sur le porte substrat. Cette étude a montré que dans la zone d'homogénéité en composition et en épaisseur des films les domaines magnétiques sont parfaitement parallèles entre eux.

Enfin, la dernière étape a consisté à réaliser trois prototypes de capteurs avec des épaisseurs et des orientations de domaines différentes.

Les caractérisations de ces capteurs ont fait apparaître l'importance de l'orientation des domaines magnétiques dans les capteurs puisque le meilleur capteur en termes de variation d'impédance est celui dont les domaines magnétiques sont perpendiculaires au sens de circulation du courant électrique.

L'originalité des capteurs ainsi élaborés se situe dans l'orientation spontanée des domaines magnétiques. En effet, habituellement, la réalisation de tels capteurs nécessite de passer par une étape supplémentaire visant à orienter les domaines dans le sens voulu par le concepteur. Pour cela, il existe plusieurs techniques telles que le recuit sous champ ou la traction sous champ. Ces techniques, en plus du fait qu'elles perturbent les propriétés magnétiques du matériau, ne permettent quasiment jamais d'obtenir des domaines parfaitement bien définis.

Les perspectives à ce travail sont nombreuses. Concernant la partie élaboration d'abord, il serait utile de réaliser des revêtements avec des teneurs en Si plus rapprochées dans la zone de transition cristallin-amorphe. Ceci permettrait de mieux cerner la composition à partir de laquelle le désordre atomique s'installe dans la couche mince et de relier ce désordre au champ coercitif de manière plus précise.

Du point de vue caractérisation, une étude par spectrométrie Mössbauer et des analyses VSM complémentaires nous semblent être des pistes envisageables. La spectrométrie

Mössbauer nous permettra d'explorer plus intimement l'environnement atomique du fer lors de la transition cristallin-amorphe et les analyses VSM d'affiner les valeurs de champs coercitif en fonction de la composition mais aussi d'accéder à l'aimantation à saturation dans nos films.

Enfin, de très nombreuses améliorations sont envisageables dans la réalisation des capteurs GMI. Notons, par exemple, que les dimensions latérales des prototypes que nous avons élaborés ne sont pas adaptées à ce type de capteurs. L'utilisation de masque obtenu par lithographie permettrait d'envisager la fabrication de capteurs beaucoup plus fins et, ainsi, d'augmenter fortement leur sensibilité. De même, il reste fort à faire pour augmenter la linéarité des capteurs. Pour ce faire, un grand nombre de prototypes doivent être réalisés et testés et de la modélisation doit être envisagée en parallèle aux expérimentations.

## Bibliographie

- [1] A.M. Cassarà, B. Maraviglia, S. Hartwig, L. Trahms, et M. Burghoff, “Neuronal current detection with low-field magnetic resonance: simulations and methods,” *Magnetic Resonance Imaging*, vol. In Press, Corrected Proof.
- [2] Manh-Huong Phan , Hua-Xin Peng , “Giant magnetoimpedance materials: Fundamentals and applications,” *Progress in Materials Science*, 2008, pp. 323-420.
- [3] Kaneo Mohri \*. Tsuyoshi Uchiyama, Larissa V. Panina, “Recent advances of micro magnetic sensors and sensing application,” *Elsevier Science S.A.*, 1997, pp. 1-8.
- [4] Masakatsu Senda , Osamu Ishii, Yasuhiro Koshimoto, and Tomoyuki Toshima, “Thin-Film Magnetic Sensor using High Frequency Magneto-Impedance (HFMI) Effect,” *IEEE*, 1994.
- [5] H. Chiriac and N. Lupu, “Design and preparation of new soft magnetic amorphous ferromagnets“ *Rapidly Quenched and Metastable Materials. International Conference N°11, Oxford , Royaume-Uni 2004*, vol. 375-77 (1337 p.), pp. 255-259.
- [6] A. Fert, “The present and the future of spintronics,” *Thin Solid Films*, vol. 517, Nov. 2008, pp. 2-5.
- [7] M.L. Sands et R.P. Feynman, *Cours de physique de Feynman*, London: Addison-Wesley, 1970.
- [8] M.L. Sands et R.P. Feynman, *Cours de physique de Feynman2*, London: Addison-Wesley, 1975.
- [9] *Magnetism in condensed matter*, Oxford: Oxford University Press, 2001.
- [10] *Physics of ferromagnetism*, Oxford: Clarendon Press, 1997.
- [11] *Introduction to magnetism and magnetic materials*, London: Chapman and Hall, 1991.
- [12] E. Du Tremolet de Lacheisserie, *Magnétisme*, Grenoble: Presses universitaires de Grenoble, 1999.
- [13] Givord, Degauque, Lebouc, Tenaud, Le Gall, verdaguer, Fert, Du Tremolet De Lacheisserie, Claeyssen, Gugat et Regnier, “Materiaux à propriétés spécifiques, les matériaux magnétiques.”
- [14] R. Bozorth et ASM International, *Magnetic properties of metals and alloys*, Cleveland: 1959.
- [15] COUDERCHON, *Alliages magnétiques doux*. “Techniques de l'ingénieur“, vol. M350, 1998.

- [16] NOZIÈRES, “Ferromagnétisme,” *Techniques de l'ingénieur*, vol. E 1 730, 1989.
- [17] A. Hubert et R. Schäfer, “Magnetic domains : the analysis of magnetic microstructures“, Berlin: Springer, 1998.
- [18] DEGAUQUE, “Matériaux à propriétés magnétiques dures : notions de base,” *Techniques de l'ingénieur*, vol. M 4 600, 2001.
- [19] E. Bergmann, “Analyse et technologie des surfaces“, Lausanne: Presses polytechniques et universitaires romandes, 2003.
- [20] *Cold plasma in materials fabrication*, Piscataway (NJ): IEEE Press, 1994.
- [21] *Dépôts physiques*, Lausanne: Presses polytechniques et universitaires romandes, 2003.
- [22] D.M. Hoffmann, *Handbook of vacuum science and technology*, San Diego: Academic Press, 1998.
- [23] *materials science of thin films*, Boston [etc.]: Academic Press, 1992.
- [24] J. Deville, *Physique et ingénierie des surfaces*, Les Ulis: EDP Sciences, 1998.
- [25] F. Massines et Réseau Plasmas froids (France). *Journées d'échanges (01 ; 2002 ; Bonascre, Ariège)*, Plasmas froids, Saint-Étienne: Publications de l'Université de Saint-Étienne, 2004.
- [26] A.J. Lichtenberg et M.A. Lieberman, *Principles of plasma discharges and materials processing*, New York: Wiley, 1994.
- [27] S. Audisio, *Revêtements et traitements de surface*, Lausanne: Presses Polytechniques et Universitaires Romandes, 1999.
- [28] H.H. Andersen, *Sputtering by particle bombardment*, Berlin [etc.]: Springer, 1981.
- [29] A. Galerie, *Traitements de surfaces en phase vapeur*, Paris: Hermès Science publ., 2002.
- [30] A. Durand et H. Le Gall, *vide*, Paris: In Fine, 1994.
- [31] *Glow discharge processes*, New York: John Wiley & sons, 1980.
- [32] A. BILLARD et Frédéric PERRY, “Pulvérisation cathodique magnétron,” *Techniques de l'Ingénieur*, vol. M 1 654, 2005.
- [33] T. Iseki, H. Maeda, et T. Itoh, “Improved wide erosion nickel magnetron sputtering using an eccentrically rotating tilted center magnet,” *Vacuum*, vol. 82, Juin. 2008, pp. 1162-1167.
- [34] W. Weidong, C. Zhimei, G. Dangzhong, H. Yong, Z. Yongming, et T. Yongjian, “The production of Fe film targets using enhanced magnetron sputtering,” *Nuclear*

- Instruments and Methods in Physics Research Section A: Accelerators, Spectrometers, Detectors and Associated Equipment*, vol. 480, Mar. 2002, pp. 98-103.
- [35] T. Moiseev et D.C. Cameron, "Comparison of the operating characteristics of an opposed target magnetron using ferromagnetic and non-ferromagnetic targets," *Surface and Coatings Technology*, vol. 200, Oct. 2005, pp. 644-648.
- [36] U. Mizutani, H. Hazama, T. Matsuda, Y. Yanagi, Y. Itoh, H. Ikuta, K. Sakurai, et A. Imai, "Magnetron sputtering activated by a 60 mm diameter superconducting bulk magnet," *Superconductor Science and Technology*, vol. 18, 2005, pp. S30-S33.
- [37] I. Jouanny, A. Billard, T.H. Loi, V. Demange, et E. Bauer-Grosse, "Sputtered Fe<sub>1-x</sub>(Ni-yCy)<sub>x</sub> films obtained in various (Ar-N<sub>2</sub>-CH<sub>4</sub>) reactive plasmas," *Surface and Coatings Technology*, vol. 200, Nov. 2005, pp. 1690-1695.
- [38] O. Bouaziz et A. Billard, "Structure-mechanical properties relationships of co-sputter deposited iron-magnesium coatings," *Surface and Coatings Technology*, vol. 201, Mai. 2007, pp. 7007-7012.
- [39] J.A. Thornton, "The microstructure of sputter-deposited coatings," *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*, vol. 4, Nov. 1986, pp. 3059-3065.
- [40] Jean-Claude BAVAY et Jean VERDUN, "Alliages fer-silicium," *Techniques de l'Ingénieur*, vol. D 2 110.
- [41] Philippe POUPEAU, "Diagrammes d'équilibre d'alliages binaires," *Techniques de l'Ingénieur*, vol. M 70p1.
- [42] R. Dunlap, G. Sibley, F. Sy, et T. Hatchard, "Combinatorial material science studies of Fe-rich Fe-Al and Fe-Si thin films," *Journal of Alloys and Compounds*, vol. In Press, Corrected Proof.
- [43] J.A. Aboaf, R.J. Kobliska, and E. Klokholm, "Properties of transition metal-metalloid ferromagnetic thin films" *IEEE Transaction on magnetics*, vol. MAG-14, NO. 5, 1978.
- [44] Masahiro Miyazaki, Masashi Ichikawa, Takayuki Komatsu, and Kazumasa Matusita, "Formation and electronic state of DO<sub>2</sub>-type ordered structure in sputtered Fe-Si thin films," 1992, pp. 2368-2374.
- [45] Y. Shimada et H. Kojima, "Magnetic properties of amorphous Fe-Si thin films," *Journal of Applied Physics*, vol. 47, 1976, pp. 4156-4159.
- [46] R. Sato Turtelli, R. Grossinger, E. de Morais, Vo Hong Duong, G. Wiesinger, M. Dahlgren, et E. Ferrara, "Magnetic properties of Si rich Fe<sub>100-x</sub>Si<sub>x</sub> rapidly quenched alloys," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 177-181, Jan. 1998, pp. 1389-1390.
- [47] N. Randrianantoandro, E. Gaffet, J. Mira, et J.-. Greneche, "Magnetic hyperfine temperature dependence in Fe-Si crystalline alloys," *Solid State Communications*, vol. 111, Juillet. 1999, pp. 323-327.

- [48] L.K. Varga, F. Mazaleyrat, J. Kovac, et J.M. Greneche, "Structural and magnetic properties of metastable Fe<sub>1-x</sub>Si<sub>x</sub> (0.15 < x < 0.34) alloys prepared by a rapid-quenching technique," *Journal of Physics: Condensed Matter*, vol. 14, 2002, pp. 1985-2000.
- [49] L.K. Varga, F. Mazaleyrat, J. Kovac, et A. Kikay, "Soft magnetic properties of nanocrystalline Fe<sub>100-x</sub>Si<sub>x</sub> (15 < x < 34) alloys," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 215-216, Juin. 2000, pp. 121-123.
- [50] M. Abdellaoui, E. Gaffet, T. Barradi, et F. Faudot, "Supersaturated A2 solid solution induced by ball milling in the Fe - Si system: structural and magnetic characterization and thermal stability," *IEEE Transactions on Magnetics*, vol. 30, 1994, pp. 4887-4889.
- [51] M. Cherigui, N.E. Fenineche, et C. Coddet, "Structural study of iron-based microstructured and nanostructured powders sprayed by HVOF thermal spraying," *Surface and Coatings Technology*, vol. 192, Mar. 2005, pp. 19-26.
- [52] "Formation and electronic state of Do type ordered structure.pdf (Objet application/pdf)."
- [53] T. Zhou, Z. Yu, et Y. Du, "The microstructure and magnetic properties of nanocrystalline Fe<sub>100-x</sub>Si<sub>x</sub> alloys," *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, vol. 70, Jan. 2000, pp. 75-78.
- [54] K. Mohri, T. Kohsawa, K. Kawashima, H. Yoshida, et L. Panina, "Magneto-inductive effect (MI effect) in amorphous wires," *Magnetics, IEEE Transactions on*, vol. 28, 1992, pp. 3150-3152.
- [55] L.V. Panina, K. Mohri, K. Bushida, et M. Noda, "Giant magneto-impedance and magneto-inductive effects in amorphous alloys (invited)," *The 6th joint magnetism and magnetic materials (MMM)-intermag conference, Albuquerque, New Mexico (USA): AIP*, 1994, pp. 6198-6203.
- [56] "Aichi Steel." <http://www.aichi-steel.co.jp/ENGLISH/>
- [57] M. Knobel et K.R. Pirota, "Giant magnetoimpedance: concepts and recent progress," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 242-245, Avr. 2002, pp. 33-40.
- [58] C. Tannous et J. Gieraltowski, "Giant Magneto-Impedance and its Applications," *physics/0208035*, Août. 2002.
- [59] M. Phan et H. Peng, "Giant magnetoimpedance materials: Fundamentals and applications," *Progress in Materials Science*, vol. 53, Fév. 2008, pp. 323-420.
- [60] F. Alves et A. Bensalah, "New 1D-2D magnetic sensors for applied electromagnetic engineering," *Journal of Materials Processing Technology*, vol. 181, Jan. 2007, pp. 194-198.
- [61] J. Chen, W. Ding, Y. Zhou, Y. Cao, Z. Zhou, et Y. Zhang, "Stress-impedance effects in sandwiched FeCuNbCrSiB/Cu/FeCuNbCrSiB films," *Materials Letters*, vol. 60, Sep. 2006, pp. 2554-2557.

- [62] Y. Zhou, W. Ding, X. Mao, J. Chen, Y. Zhang, et X. Gao, "Stress-impedance effects in multilayered FeSiB/Cu/FeSiB films," *Thin Solid Films*, vol. 489, Oct. 2005, pp. 177-180.
- [63] Y. Zhou, X. Mao, J. Chen, W. Ding, X. Gao, et Z. Zhou, "Stress-impedance effects in layered FeSiB/Cu/FeSiB films with a meander line structure," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 292, Avr. 2005, pp. 255-259.
- [64] K. Mohri, T. Kohsawa, K. Kawashima, H. Yoshida, et L. Panina, "Magneto-inductive effect (MI effect) in amorphous wires," *Magnetics, IEEE Transactions on*, vol. 28, 1992, pp. 3150-3152.
- [65] K. Bushida et K. Mohri, "Sensitive magneto-inductive effect in amorphous wires using high-pass filter and micro field sensor," *Magnetics, IEEE Transactions on*, vol. 30, 1994, pp. 4626-4628.
- [66] M. Corrêa, A. Viegas, R. da Silva, A. de Andrade, et R. Sommer, "GMI in FeCuNbSiB Cu multilayers," *Physica B: Condensed Matter*, vol. 384, Oct. 2006, pp. 162-164.
- [67] R.L. Sommer et C.L. Chien, "Longitudinal, transverse, and perpendicular magnetoimpedance in nearly zero magnetostrictive amorphous alloys," *Physical Review B*, vol. 53, Mar. 1996, p. R5982.
- [68] Z. Zhong, H. Zhang, Y. Jing, X. Tang, L. Zhang, et S. Liu, "Magnetoimpedance effect in FeCoB/Cu/FeCoB sandwiched films with Permalloy underlayer," *Vacuum*, vol. 82, Jan. 2008, pp. 491-494.
- [69] W. Wang, S. Xiao, S. Jiang, H. Yuan, Z. Wu, G. Ji, S. Yan, Y. Liu, et L. Mei, "Influence of magnetic induced anisotropy on giant magnetoimpedance effects in FeCuNbSiB films," *Thin Solid Films*, vol. 484, Juillet. 2005, pp. 299-302.
- [70] D. Garcia[combining acute accent]a, J. Muñoz, G. Kurlyandskaya, M. Vázquez, M. Ali, et M. Gibbs, "Induced anisotropy, magnetic domain structure and magnetoimpedance effect in CoFeB amorphous thin films," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 191, Jan. 1999, pp. 339-344.
- [71] G.V. Kurlyandskaya, J.L. Muñoz, J.M. Barandiarán, A. García-Arribas, A.V. Svalov, et V.O. Vas'kovskiy, "Magnetoimpedance of sandwiched films: experimental results and numerical calculations," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 242-245, Avr. 2002, pp. 291-293.
- [72] L. Tuan, N. Ha, C. Kim, J. Rhee, et H. Lee, "Thickness dependence of the magnetic properties and magnetoimpedance effect in CoFeAlO thin films," *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, vol. 304, Sep. 2006, pp. e53-e55.
- [73] M. Corrêa, A. Viegas, R. da Silva, A. de Andrade, et R. Sommer, "Magnetoimpedance in amorphous/metal/amorphous sandwiched films at GHz frequencies," *Physica B: Condensed Matter*, vol. 384, Oct. 2006, pp. 155-157.

- [74] Y. Nishibe, H. Yamadera, N. Ohta, K. Tsukada, et Y. Nonomura, "Thin film magnetic field sensor utilizing Magneto Impedance effect," *Sensors and Actuators A: Physical*, vol. 82, Mai. 2000, pp. 155-160.
- [75] CHRISTIAN JANOT, "EFFET MOSSBAUER ET APPLICATIONS A LA PHYSIQUE DU SOLIDE," Pergamon Press, 1976, pp. 53-64.
- [76] Jean-Paul EYMERY, "Spectrométrie Mössbauer."
- [77] K. Trunov, M. Walterfang, W. Keune, N. Utochkina, et A. Trunova, "Structural and hyperfine magnetic properties of Fe<sub>3</sub>Si thin films grown at low temperature," *Thin Solid Films*, vol. 516, Juillet. 2008, pp. 6205-6209.
- [78] M.(... Saib, S. Flament, et Université de Caen, "Imagerie magnéto-optique du retournement de l'aimantation dans des couches minces de La<sub>0,7</sub>Sr<sub>0,3</sub>MnO<sub>3</sub>," [s.n.], 2007.
- [79] A.(... Bensalah, R.(... Barrué, et V. École normale supérieure (Cachan, "Contribution à l'étude théorique et expérimentale de l'effet de magnéto-impédance géante (GMI) dans les alliages nanocristallins, en vue de réaliser des capteurs magnétiques de haute sensibilité," [s.n.], 2005.
- [80] L. V. Panina, K. Mohn, Senior member, T. Uchyama, and M. Noda, "Giant Magneto-Impedance in CO-Rich Amorphous Wires and Films," *IEEE*, 1995.