

UNIVERSITE DE LIMOGES

Faculté des Sciences et Techniques

Ecole Doctorale Science Technologie Santé

IRCOM

N° 50.2002

THESE

Pour obtenir le grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITE DE LIMOGES

Discipline : Electronique des hautes fréquences et optoélectronique

Présentée et soutenue publiquement par

Marc VERITE

Le 14 novembre 2002

<p>ETUDE DE DEPOTS DE FERRITE POUR DISPOSITIFS INTEGRES MICRO-ONDES NON RECIPROQUES</p>

Directeurs de Thèse : Annie BESSAUDOU et Jean-Claude VAREILLE

Jury

D. GIVORD
J. P. RIVIERE

Laboratoire L. Néel Grenoble
Université de Poitiers

Rapporteur
Rapporteur

A. BESSAUDOU
F. COSSET
R. LEBOURGEOIS
J. P. MERCURIO
O. TANTOT
J. C. VAREILLE

Université de Limoges
Université de Limoges
Ingénieur Thalès à Orsay
Université de Limoges
Université de Limoges
Université de Limoges

Examinatrice
Examinatrice
Examinateur
Examinateur
Examinateur
Examinateur

**à mes parents,
à ma femme,
à mes amis.**

REMERCIEMENTS

Cette étude a été réalisée à la Faculté des Sciences et Techniques de l'Université de Limoges au sein de l'Institut de Recherche en Communications Optiques et Microondes (IRCOM), sous la direction de Madame A. BESSAUDOU et Monsieur J. C. VAREILLE. Je tiens à leur exprimer mes plus vifs remerciements pour leur disponibilité malgré un emploi du temps parfois surchargé, mais aussi pour leur expérience et les conseils scientifiques qu'ils m'ont prodigués tout au long de ce travail.

J'exprime également mes profonds remerciements à Monsieur D. GIVORD, Directeur de recherches au sein du Laboratoire L. Néel de Grenoble, et à Monsieur J. P. RIVIERE, Professeur à l'Université de Poitiers, qui, forts de leurs connaissances et de leur expérience, ont eu à juger ce travail.

Toute ma gratitude revient à Monsieur R. LEBOURGEOIS, Ingénieur au sein de la société Thalès à Orsay, ainsi qu'à Monsieur O. TANTOT, Maître de Conférences, qui ont accepté de faire partie du jury.

Outre sa présence dans ce jury, Monsieur J. P. MERCURIO, Professeur à l'Université de Limoges, m'a fait profiter de son savoir dans le domaine des matériaux. Je lui en suis très reconnaissant.

Je tiens aussi à remercier Madame D. MERCURIO et Messieurs A. BOULLE, R. GUINEBRETIERE, J. P. LAVAL, P. MARCHET pour l'aide spécifique qu'ils ont bien voulu me donner.

J'exprime toute ma gratitude à Monsieur A. CELERIER et Mademoiselle F. COSSET dont les compétences et les conseils ont été fort précieux tout au long de cette thèse.

Je remercie vivement Monsieur J. P. JABET pour sa collaboration technique efficace et sa constante disponibilité.

Je tiens à remercier tout particulièrement Monsieur A. LEBLANC tant pour l'aide qu'il m'a apporté durant ces trois années que pour les bons moments que nous avons passés ensemble.

Je ne saurais oublier mes amis thésards qui ont contribué à l'excellente ambiance présente dans l'équipe.

Je remercie chaleureusement mes parents qui m'ont soutenu tout au long de mes études, parfois au prix de quelques sacrifices, et sans qui je n'aurais pas pu atteindre ce niveau.

Enfin, j'ai une pensée toute particulière pour celle qui aura eu à me supporter tout au long de l'exercice délicat qu'est la rédaction et qui m'a encouragé dans les moments difficiles.
Merci Magalie ...

Table des matières

<u>INTRODUCTION GENERALE</u>	<u>10</u>
<u>I. CHAPITRE I : Le magnétisme et ses applications</u>	<u>12</u>
I.1. Etude du magnétisme	13
I.1.1. Les origines électroniques du magnétisme	13
I.1.1.1. Le moment orbital	14
I.1.1.2. Le moment de spin	14
I.1.1.3. Le moment magnétique total	14
I.1.2. Les différentes classes de matériaux	15
I.1.3. Le diamagnétisme	16
I.1.4. Le paramagnétisme	16
I.1.5. Le ferromagnétisme	17
I.1.5.1. Définition	17
I.1.5.2. Température de Curie	18
I.1.5.3. Domaines magnétiques et cycle d'hystérésis	19
I.1.5.3.1 Domaines magnétiques	19
I.1.5.3.2 Cycle d'hystérésis	21
I.1.5.4. Energie d'anisotropie magnétocristalline	22
I.1.5.4.1 Définition	22
I.1.5.4.2 Variation de l'énergie d'anisotropie en fonction de la température	23
I.1.5.5. Champ démagnétisant	24
I.1.6. Le ferrimagnétisme	24
I.1.6.1. Définition	24
I.1.6.2. Les ferrites	25
I.1.6.2.1 Définition et structure	25
I.1.6.2.2 Propriétés magnétiques	26
I.2. Le circulateur intégré	28
I.2.1. Principe de fonctionnement d'un circulateur	28
I.2.2. Propriétés	29
I.2.3. La résonance gyromagnétique	30
I.2.3.1. Description	30
I.2.3.2. Définition des tenseurs de Polder et de perméabilité magnétique	32
I.2.3.3. La non réciprocity dans les ferrites	33

I.2.3.4. Les dispositifs hors résonance	35
I.3. Les ferrites utilisés aux hyperfréquences	35
I.3.1. Choix du matériau	35
I.3.2. Structure cristalline	36
I.3.3. Diagramme de phases	38
I.3.4. Propriétés magnétiques	39
I.3.4.1. Le moment magnétique	39
I.3.4.2. Anisotropie magnétocristalline	40
I.4. Etude bibliographique	42
I.4.1. Les circulateurs	42
I.4.2. Techniques de dépôt de ferrite de baryum	44
I.4.2.1. Dépôts par évaporation	44
I.4.2.2. Dépôts par laser pulsé	45
I.4.2.3. Dépôts par pulvérisation	45
I.5. Conclusion	45
<u>II. CHAPITRE II : Dispositif expérimental de dépôt et moyens de caractérisation des couches</u>	51
<hr/>	
II.1. Dispositif expérimental de dépôt	52
II.1.1. Enceinte à vide	52
II.1.2. Système de pompage	52
II.1.3. Appareils de mesure des pressions et des débits	54
II.1.4. Balance à quartz	54
II.1.5. Canon à électrons	55
II.1.6. Porte-substrats utilisés	56
II.1.6.1. Cathode porte-substrats	56
II.1.6.2. Porte-substrats avec solénoïde	57
II.2. Différentes phases de réalisation d'un dépôt	58
II.2.1. Préparation du lingot de ferrite	58
II.2.2. Nettoyage des substrats	59
II.2.2.1. Nettoyage ex situ	59
II.2.2.2. Nettoyage in situ	59
II.2.3. Phase de dépôt	60
II.3. Dispositifs de caractérisation des couches	60
II.3.1. Le microscope électronique à balayage (M.E.B.)	60

II.3.1.1. Interaction du faisceau électronique avec l'échantillon	61
II.3.1.1.1 Emission d'électrons secondaires	62
II.3.1.1.2 Emission d'électrons rétrodiffusés	63
II.3.1.1.3 Emission des rayons X	63
II.3.1.2. Préparation des échantillons	64
II.3.2. Analyse structurale	64
II.3.2.1. Montage de type Bragg-Brentano	64
II.3.2.2. Chambres à focalisation : chambre de Guinier	66
II.3.3. Mesure des propriétés magnétiques	68
II.3.4. Mesure de l'épaisseur	70
II.3.5. Analyses SIMS	71
III. CHAPITRE III : L'hexaferrite de baryum : résultats expérimentaux	74
III.1. Introduction	75
III.2. Etude de l'hexaferrite de baryum massif	76
III.2.1. Diagrammes de diffraction	76
III.2.2. Propriétés magnétiques	77
III.2.3. Analyses de composition	78
III.3. Bilan des résultats obtenus durant la thèse d'Ibrahima WANE	79
III.3.1. Résultats généraux	79
III.3.2. Choix de la sous-couche d'accrochage	80
III.4. Influence de la température des substrats	82
III.4.1. Résultats cristallographiques	83
III.4.2. Propriétés magnétiques	86
III.4.2.1. Evolution du champ coercitif	88
III.4.2.2. Evolution de l'aimantation à saturation	90
III.4.3. Etude morphologique	91
III.4.4. Composition chimique	92
III.4.5. Conclusion	94
III.5. Influence de la vitesse de dépôt	94
III.5.1. Résultats cristallographiques	94
III.5.2. Propriétés magnétiques	95
III.5.2.1. Evolution du champ coercitif	97
III.5.2.2. Evolution de l'aimantation à saturation	99
III.5.3. Etude morphologique	99

III.5.4. Composition chimique	100
III.5.5. Etude de la répartition en profondeur des différents constituants	102
III.5.5.1. Analyses E.D.X	102
III.5.5.2. Analyses SIMS	104
III.5.6. Conclusion	106
III.6. Etude et caractérisation de films obtenus à différentes épaisseurs	107
III.6.1. Résultats cristallographiques	107
III.6.2. Propriétés magnétiques	109
III.6.2.1. Evolution du champ coercitif	109
III.6.2.2. Evolution de l'aimantation à saturation	110
III.6.3. Etude morphologique	111
III.6.4. Composition chimique	112
III.6.5. Etude de la répartition en profondeur des différents constituants	113
III.6.5.1. Analyses E.D.X	113
III.6.5.2. Analyses SIMS	114
III.6.6. Conclusion	115
III.7. Etude et caractérisation de couches ayant différentes épaisseurs, et réalisées à deux vitesses de dépôt distinctes	116
III.7.1. Résultats cristallographiques	116
III.7.2. Propriétés magnétiques	117
III.7.2.1. Evolution du champ coercitif	117
III.7.2.2. Evolution de l'aimantation à saturation	118
III.7.3. Composition chimique	119
III.7.4. Conclusion	120
III.8. Influence de la nature du substrat et réalisation de dépôts sous champ	121
III.8.1. Influence de la nature du substrat	121
III.8.2. Réalisation de dépôts sous champ	125
III.9. Conclusions et perspectives	127
IV. CHAPITRE IV : Application de la méthode Taguchi aux dépôts en couches minces	132
IV.1. Introduction	133
IV.2. Présentation de la méthode Taguchi	134
IV.2.1. Philosophie de l'approche Taguchi	134
IV.2.2. Organisation de la méthode Taguchi	136
IV.2.2.1. Détermination des facteurs à tester et de leurs niveaux	136

IV.2.2.2. Détermination de la matrice d'expériences	137
IV.2.2.3. Mesure et exploitation des résultats	138
IV.2.2.3.1 Définition de l'écart type	138
IV.2.2.3.2 Ratio Signal / Bruit	139
IV.2.2.3.3 Analyse des résultats	139
IV.3. Application de la méthode Taguchi à la réalisation de couches d'hexaferrite de baryum	143
IV.3.1. Définition des objectifs	143
IV.3.2. Sélection des facteurs influents	143
IV.3.3. Définition de la matrice d'expérience	144
IV.3.4. Traitement et analyse des données	145
IV.3.4.1. Intensité d'aimantation à saturation	145
IV.3.4.2. Champ coercitif	148
IV.3.4.3. Rapport Fer / Baryum	151
IV.3.5. Conclusion et perspectives	154
<u>CONCLUSION GENERALE</u>	<u>157</u>
<u>ANNEXES</u>	<u>159</u>
<u>ANNEXE I : Processus d'évaporation au canon à électrons</u>	<u>160</u>
<u>ANNEXE II : Processus d'évaporation au tri-canon</u>	<u>168</u>

INTRODUCTION GENERALE

Depuis quelques années, les contraintes de poids, de taille et de coût liées au développement rapide des réseaux locaux et à l'explosion de la téléphonie mobile grand public, ont conduit les concepteurs à vouloir intégrer certains composants passifs non réciproques comme les circulateurs ou les isolateurs. En effet, ces composants, basés sur les propriétés de gyrorésonance des ferrites, sont très employés dans tous les systèmes nécessitant une séparation des voies d'émission et de réception : radars, téléphonie mobile...

L'objectif auquel participe l'étude menée dans le cadre de cette thèse est de réaliser un circulateur intégré en technologie MMIC (Circuit Intégré Monolithique Micro-ondes) fonctionnant dans le domaine des ondes millimétriques.

Actuellement, la partie centrale de ces dispositifs, où s'effectue la circulation des ondes, est constituée d'une pastille massive de ferrite. Or, à de telles fréquences de fonctionnement il devient difficile, voire impossible, d'usiner ces pastilles de ferrite sous forme massive. En effet, le diamètre de la jonction doit être de l'ordre de grandeur de la demi-longueur d'onde. De plus, à l'heure actuelle, la polarisation des circulateurs est réalisée à l'aide d'aimants permanents massifs incompatibles avec les technologies des semi-conducteurs.

A partir de là, deux solutions peuvent être envisagées : l'intégration de composants actifs se substituant aux composants passifs, ou la combinaison d'un ferrite en film mince avec un semi-conducteur sur un circuit intégré. La première solution engendre un niveau de bruit élevé, des pertes d'insertion et une plus faible gamme de fréquence (environ 5 GHz) par rapport aux composants passifs. Forts de l'expérience acquise au sein de l'équipe dans le domaine des couches minces, nous nous sommes donc focalisés sur la réalisation et l'optimisation de couches « minces » magnétiques.

Notre choix s'est naturellement porté sur l'hexaferrite de baryum ($\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$) car il présente une forte anisotropie uniaxiale, une fréquence de gyrorésonance élevée (≈ 50 GHz) et peut être utilisé sans aimant permanent. Une première thèse sur le sujet a eu lieu au sein de l'équipe et a été soutenue par Ibrahima Wane en juillet 2000. Au cours de celle-ci, un autre hexaferrite a été étudié : l'hexaferrite de strontium ($\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$).

Dans la littérature, il existe de nombreuses techniques de dépôt sous vide permettant l'obtention de couches minces (pulvérisation, ablation laser ...). Cependant, à 70 GHz, afin de minimiser les pertes d'insertion au niveau du circulateur il est nécessaire de réaliser des

épaisseurs de ferrite importantes (entre 50 et 100 μm). Dans ce cas, il est donc nécessaire d'utiliser une technique autorisant de fortes vitesses de dépôt, et c'est pour cette raison que nous avons choisi l'évaporation au canon à électrons. Cependant cette technique présente des inconvénients et des difficultés de mise en œuvre comme, par exemple, la difficulté d'un transfert stœchiométrique du lingot au substrat, ou encore les délais importants nécessaires à la réalisation d'une couche (formation d'un lingot + phase de dépôt).

Ce mémoire se subdivise en quatre grandes parties. Dans le premier chapitre nous nous attachons à décrire de façon succincte les différentes classes de matériaux : diamagnétiques, paramagnétiques, ferromagnétiques et ferrimagnétiques, puis nous présentons le phénomène de résonance gyromagnétique qui est à l'origine du principe de fonctionnement d'un circulateur. Ensuite, nous donnons la structure cristalline et les principales propriétés de l'hexaferrite de baryum de type M. Enfin, dans la dernière partie de ce chapitre, nous dressons un rapide bilan bibliographique des travaux déjà effectués dans le domaine de l'intégration des circulateurs et dans celui de la réalisation de couches minces.

Le second chapitre décrit le dispositif expérimental de dépôt et les différents moyens de caractérisation dont nous nous sommes servis.

La troisième grande partie présente les résultats expérimentaux que nous avons obtenus durant cette thèse, l'objectif étant de déterminer l'influence de tous les paramètres de dépôt (vitesse de dépôt, température des substrats, durée du dépôt...) sur les différentes propriétés des couches de ferrite : propriétés magnétiques, chimiques, cristallographiques et morphologiques. De plus, dans ce chapitre, nous tentons de donner une explication de ces résultats en analysant les phénomènes mis en jeu.

Enfin, comme nous l'avons dit précédemment, la réalisation d'un dépôt étant un processus relativement long à mettre en œuvre et ayant de nombreux paramètres à contrôler, il est apparu nécessaire d'appliquer la méthode des plans d'expériences à la réalisation de couches. Ces méthodes sont très employées dans le monde industriel car elles permettent une économie de temps et de moyens dans l'optimisation d'un procédé. Le chapitre III montre l'intérêt de ces méthodes appliquées au cas qui nous intéresse, sachant que nous avons choisi une méthode bien particulière : la méthode Taguchi.

CHAPITRE I :
Le magnétisme et ses applications

I.1. Etude du magnétisme

Un matériau magnétique est composé d'un ensemble de cristaux. Chaque cristal est une structure spatiale périodique d'ions d'éléments simples. Chacun de ces ions étant formé d'un noyau et d'un nuage d'électrons, la théorie du magnétisme doit étudier :

- le magnétisme des particules élémentaires,
- le magnétisme d'un ensemble organisé de particules : atome ou ion,
- le magnétisme d'un ensemble régulier d'ions (cristal),
- et enfin, le magnétisme d'un ensemble ordonné ou désordonné de cristaux.

Cette étude est basée sur la mécanique ondulatoire et constitue une partie importante de la physique du solide.

Dans cette partie, un exposé très simplifié sera fait sur le magnétisme électronique et sur le magnétisme ionique. Puis nous présenterons les différentes classes de matériaux magnétiques : dia-, para-, ferro- et ferrimagnétiques. L'importance de ces deux derniers types nous a conduit à développer davantage leurs propriétés macroscopiques.

I.1.1. Les origines électroniques du magnétisme [1] [2]

On considère, à l'intérieur d'un atome, un électron qui tourne autour du noyau (figure I.1).

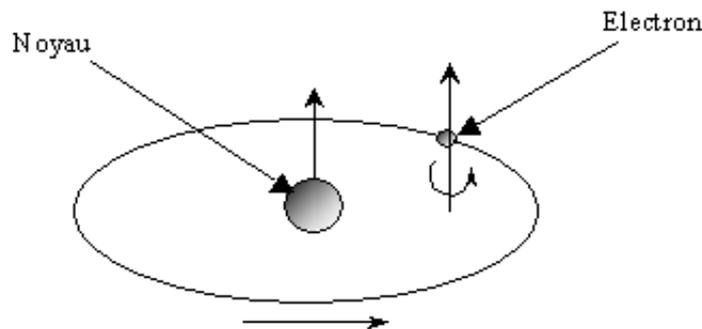


Figure I-1 : Mouvements de l'électron

A partir de là on peut définir deux notions élémentaires qui sont : **le moment orbital** et **le moment de spin**.

I.1.1.1. Le moment orbital

L'électron (charge e) décrit une orbite circulaire à raison de f rotations par seconde. Il est donc équivalent à un courant qui peut s'écrire sous la forme :

$$i = -e \cdot f \quad (1.1)$$

Ce courant, circulant dans une spire confondue avec l'orbite, crée, d'après la loi d'Ampère, un moment magnétique :

$$\vec{\mu}_L = \pi r^2 \times i \times \vec{n} \quad (1.2)$$

où : \vec{n} : normale orientée à la surface de la spire,
 r : rayon de l'orbite.

Le moment $\vec{\mu}_L$ est appelé le moment orbital. Ce moment est quantifié : il doit être un multiple du magnéton de Bohr défini par :

$$\mu_B = \frac{e}{2m} \cdot \frac{h}{2\pi} = 9,274 \times 10^{-24} \text{ A.m}^2 \quad (1.3)$$

où : e : charge de l'électron ($-1,607 \cdot 10^{-19}$ C),
 m : masse de l'électron ($9,107 \cdot 10^{-31}$ kg),
 h : constante de Planck ($6,62 \cdot 10^{-34}$ J.s).

I.1.1.2. Le moment de spin

De plus, nous savons que l'électron tourne aussi sur lui-même (spin) et présente donc un moment magnétique dit moment de spin ($\vec{\mu}_s$). Ce dernier est une propriété purement quantique des électrons et n'est autre que le magnéton de Bohr défini précédemment.

I.1.1.3. Le moment magnétique total

Enfin, le moment magnétique total de l'atome est la somme des moment orbitaux et des moments de spin de ses électrons périphériques. La norme de ce moment peut donc s'écrire de la façon suivante :

$$\mu = J_q g \mu_B \quad (1.4)$$

où J_q est un nombre quantique et g un facteur dit facteur de Landé. Pour les ferrites ce facteur g est très légèrement supérieur à deux.

En réalité, la théorie est beaucoup plus complexe que cela puisqu'elle fait intervenir les quatre nombres quantiques que sont les indices de la fonction d'onde attachée à l'électron (n , l , m et s). Mais dans ce travail, il n'est pas nécessaire d'entrer dans le détail de la mécanique quantique, les relations précédentes sont suffisantes.

I.1.2. Les différentes classes de matériaux [2] [3]

Tout d'abord, il est nécessaire de présenter les différentes relations décrivant un matériau magnétique soumis à un champ magnétique extérieur (H). L'induction magnétique (B) à l'intérieur du matériau est liée au champ magnétique (H), à l'aimantation (M) et à l'intensité d'aimantation (J) de la façon suivante :

$$B = \mu_0 (H + M) = \mu_0 H + J \quad (1.5)$$

où μ_0 représente la perméabilité magnétique du vide ($4\pi 10^{-7} \text{ V.s.A}^{-1}.\text{m}^{-1}$).

Les grandeurs J et M représentent, en fait, la densité volumique de moments magnétiques dans la matière. De plus, par définition, un milieu magnétique placé dans un champ magnétique acquiert un vecteur aimantation M tel que :

$$M = \chi H \quad (1.6)$$

où χ est la susceptibilité magnétique du milieu. Nous pouvons aussi exprimer la perméabilité magnétique relative du matériau à partir de cette susceptibilité :

$$\mu_r = 1 + \chi \quad (1.7)$$

A partir des valeurs de ce paramètre χ , il est possible de définir les grands groupes de matériaux magnétiques :

- diamagnétiques : $\chi < 0$, de l'ordre de -10^{-6} ,
- paramagnétiques : $\chi > 0$, très dispersé et inférieur à 10^{-3} ,
- ferromagnétiques : existence d'une aimantation spontanée ou rémanente très grande et χ est très grand et varie avec H .

Il est important de noter que les corps ferromagnétiques deviennent paramagnétiques au-delà d'une certaine température dite température de Curie.

Nous allons maintenant présenter de façon plus approfondie ces différents types de matériaux.

I.1.3. Le diamagnétisme [2] [4] [5]

Le diamagnétisme caractérise en général des substances qui ne comportent que des atomes non magnétiques. Il se définit comme étant une réaction de la matière aux variations du champ magnétique extérieur. Il s'agit en fait du résultat de l'application de la loi de Lenz à l'édifice atomique en considérant les orbites électroniques comme des circuits dont la résistance serait nulle. L'application d'un champ crée donc un moment permanent dont le champ s'oppose au champ appliqué. Le calcul de cet effet est basé sur l'utilisation du théorème de Larmor qui peut s'énoncer de la façon suivante : le mouvement des électrons d'un atome dans un champ magnétique est, si on ne considère que le premier terme de la perturbation apportée par le champ, le même qu'en l'absence de champ, avec, en plus, une précession angulaire ω telle que :

$$\omega = \gamma_L H = \frac{\mu_0 e}{2m} H \quad (1.8)$$

La valeur de γ_L correspond à 17 kilocycles par ampère par mètre.

Le sens de rotation par rapport à H se fait dans le sens positif. Le théorème de Larmor a été démontré dans le cas d'un ion en se basant sur le théorème du moment cinétique.

Il est aussi nécessaire de donner ici l'expression de la susceptibilité diamagnétique :

$$\chi_d = \frac{1}{\mu_0} \frac{M}{H} = -\mu_0 \frac{NZe^2}{6m} \langle r^2 \rangle \quad (1.9)$$

Il s'agit de l'expression de Langevin corrigée par Pauli. Z représente le numéro atomique, $\langle r^2 \rangle$ est la valeur moyenne du carré de la distance des électrons au noyau et enfin N est le nombre d'atomes par unité de volume. Nous constatons bien que χ_d est négatif. Cela vient du signe du courant dû au sens de rotation des électrons.

Ce type de magnétisme existe aussi dans les substances possédant des atomes magnétiques (cas des substances ferromagnétiques) mais, il est si faible qu'il est alors totalement masqué par la contribution des atomes magnétiques.

I.1.4. Le paramagnétisme [2] [4] [5]

Le paramagnétisme est un processus d'aimantation par passage d'un état désordonné à un état ordonné. Considérons un milieu contenant N atomes par unité de volume, chaque atome ayant un moment magnétique $\vec{\mu}$. Si aucun champ directeur ne vient aligner les moments ceux-ci seront dirigés au hasard et leur résultante sera nulle. Par contre, si un champ

magnétique est appliqué dans le milieu il va tendre à orienter les moments parallèlement à lui-même. Cette orientation est contrebalancée par l'agitation thermique qui disperse l'orientation des moments. Le moment résultant des N atomes est donc fonction du rapport $\frac{H}{T}$ du champ à la température absolue T.

La susceptibilité magnétique des substances paramagnétiques a été calculée respectivement par Langevin et Brillouin. L'expression qu'ils ont obtenue est la suivante :

$$\chi_p = \frac{\mu_0 N \mu^2}{3kT} = \frac{C}{T} \quad (1.10)$$

où μ est le module du moment magnétique de l'atome et k la constante de Boltzmann ($k=1,38 \cdot 10^{-23}$ J/K).

Dans cette expression C représente la constante de Curie. De plus, la relation (1.10) n'est valable que si $\mu H \ll kT$.

I.1.5. Le ferromagnétisme [2] [4] [5] [6] [7] [8]

I.1.5.1. Définition

Dans une substance ferromagnétique les moments magnétiques d'atomes voisins sont parallèles entre eux (**figure I.2**).

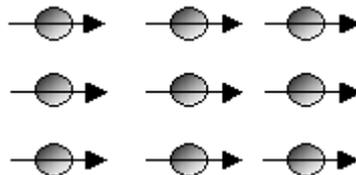


Figure I-2 : Réseau de spins

Cet alignement des moments est dû au fait qu'il existe une interaction interne appelée champ d'échange ou champ moléculaire. Ce champ d'échange peut être considéré comme l'équivalent d'une induction magnétique (B_E). Son intensité peut atteindre 10^3 Tesla. Dans l'approximation du champ moyen, chaque atome magnétique est donc soumis à un champ proportionnel à l'aimantation :

$$B_E = \lambda M \quad (1.11)$$

où λ est une constante indépendante de la température et où l'aimantation M est, par définition, le moment magnétique par unité de volume. Donc, d'après (1.11) chaque spin subit

l'aimantation moyenne due à tous les autres. En fait, il ne peut subir que l'influence de ses proches voisins.

En réalité, le phénomène mis en jeu est plus complexe que cela. En effet, le champ moléculaire est une approximation de l'interaction d'échange de la mécanique quantique. On montre que l'énergie d'interaction des atomes i, j portant les spins S_i, S_j possède un terme :

$$E = -2J_e S_i \cdot S_j \quad (1.12)$$

L'équation (1.12) est appelée modèle d'Heisenberg. Cette énergie d'échange est due à l'interaction spin spin des couches non saturées responsables des moments. Elle peut être positive, négative ou nulle, et elle dépend :

- de la distance entre les atomes voisins comparée au diamètre de la couche électronique responsable du moment de spin,
- et de l'angle entre les moments des deux atomes.

Dans l'expression (1.12), J_e représente l'intégrale d'échange qui est liée au recouvrement des distributions de charge des atomes i, j . C'est en fait J_e qui est responsable de l'orientation des moments de spin. Ce terme est très sensible à la distance inter-atomique.

Il existe neuf éléments ferromagnétiques à l'état pur dans la nature : les trois éléments de transition fer, cobalt et nickel, ainsi que six terre rares (Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm).

I.1.5.2. Température de Curie

A ce stade, il est nécessaire d'introduire la notion de température de Curie (T_c). En mesurant, en fonction de la température, la susceptibilité magnétique de différents corps, Pierre Curie a observé plusieurs phénomènes (**figure I.3**) :

- le diamagnétisme est insensible à la température et indépendant de l'intensité du champ,
- plus la température est élevée, plus la susceptibilité paramagnétique est petite,
- au-delà d'une certaine température critique (T_c), les ferromagnétiques perdent leurs propriétés magnétiques caractéristiques et se comportent comme des paramagnétiques.

Ce dernier point peut s'expliquer par le fait que lorsqu'on augmente la température on augmente aussi l'agitation thermique des atomes : ils deviennent plus mobiles et moins stables. Ainsi, dans les corps ferromagnétiques, les fluctuations des moments magnétiques atomiques sont telles, au-delà de la température de Curie, que le corps perd toute organisation magnétique et devient aussi désordonné qu'un matériau paramagnétique.

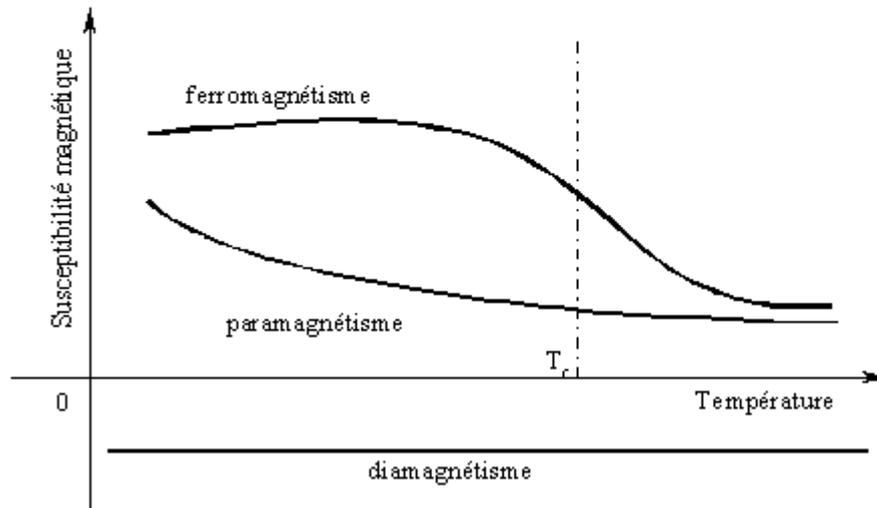


Figure I-3 : Comportement des matériaux en fonction de la température

I.1.5.3. Domaines magnétiques et cycle d'hystérésis

I.1.5.3.1 Domaines magnétiques

Un morceau de matériau ferromagnétique n'est pas toujours spontanément aimanté : il peut présenter un moment magnétique nul. En effet, le matériau est divisé en domaines magnétiques appelés domaines de Weiss qui sont spontanément aimantés (figure I.4).

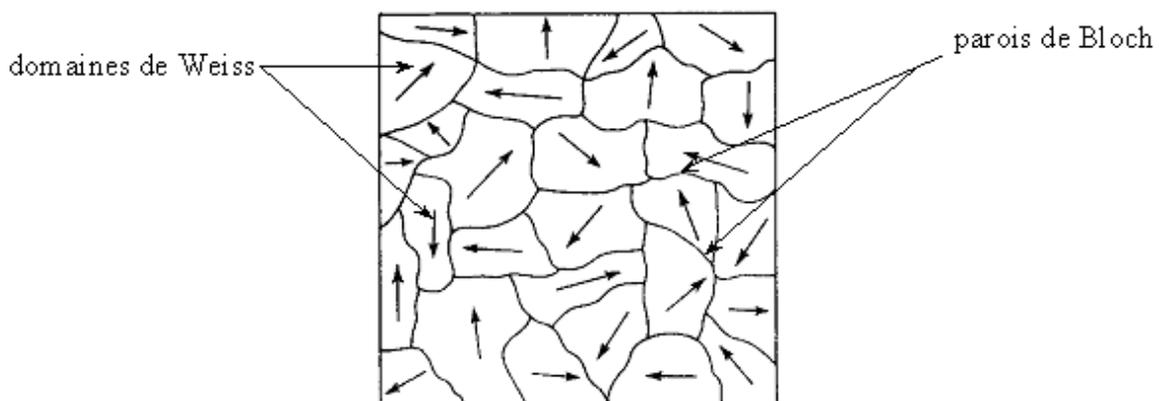


Figure I-4 : Aspect de la répartition des domaines dans un cristal

C'est la condition rendant l'énergie magnétique minimale qui est responsable de la décomposition du cristal en domaines dont l'orientation des moments est liée aux directions de facile aimantation. D'un domaine à l'autre la direction de l'aimantation spontanée locale varie donc de telle sorte que le moment magnétique total de l'échantillon est nul.

Ces domaines sont séparés par des parois appelées parois de Bloch.

La répartition de l'aimantation dans les couches minces peut différer de celle dans le massif, par suite :

- d'effets dimensionnels : les champs démagnétisants, dont nous donnerons la définition ultérieurement, varient fortement avec la géométrie,
- d'effets de structure : différentes anisotropies sont spécifiques aux couches minces.

En effet, lorsque la couche est suffisamment mince (épaisseur inférieure à 400 Å), les champs démagnétisants dans le plan de la couche sont très faibles et la répartition en domaines, rencontrée dans les matériaux ferromagnétiques massifs, n'est plus énergétiquement favorable. La couche est alors monodomaine et sous l'action d'un champ extérieur, le renversement de l'aimantation se fait par rotation cohérente des spins. Par contre, lorsque l'épaisseur augmente, la configuration en domaines est la plus favorable d'un point de vue énergétique. Une paroi de Bloch présente toujours une épaisseur très petite devant ses deux autres dimensions. L'aimantation est dans ce cas parallèle à la paroi et l'énergie de champ démagnétisant dans la paroi reste très faible. La figure ci-dessous montre la répartition des spins pour une paroi de Bloch.

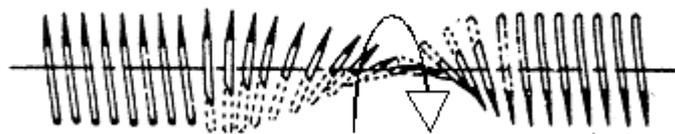


Figure I-5 : Répartition des spins dans le cas d'une paroi de Bloch

Pour une couche mince, l'une des dimensions de la paroi peut devenir de l'ordre de grandeur de l'épaisseur de la couche. Dans ce cas l'énergie de champ démagnétisant de paroi devient très grande et l'état d'énergie libre minimum correspond à une répartition de l'aimantation dans la paroi différente de celle dans les parois de Bloch. La rotation de l'aimantation se fait dans le plan. Cette répartition est caractérisée par les parois de Néel (**figure I.6**).



Figure I-6 : Répartition des spins dans le cas d'une paroi de Néel

I.1.5.3.2 Cycle d'hystérésis

La courbe de première aimantation et le cycle d'hystérésis sont deux propriétés importantes des substances ferromagnétiques. En effet, la plupart des applications technologiques sont basées sur l'existence de ce cycle. Par définition, le cycle d'hystérésis d'un matériau magnétique est le tracé de l'induction en fonction du champ H extérieur appliqué :

$$B = \mu_0(H + M) = \mu_0(1 + \chi)H = \mu H \quad (1.13)$$

Souvent on se contente de représenter M en fonction de H . Pour un matériau polycristallin non orienté, le cycle a la même forme quelle que soit la direction du champ H appliqué. Par contre, si le matériau est orienté, le cycle dépend de la direction de ce champ. La **figure I.7** ci-après donne un exemple de cycle d'hystérésis pour un matériau aimanté.

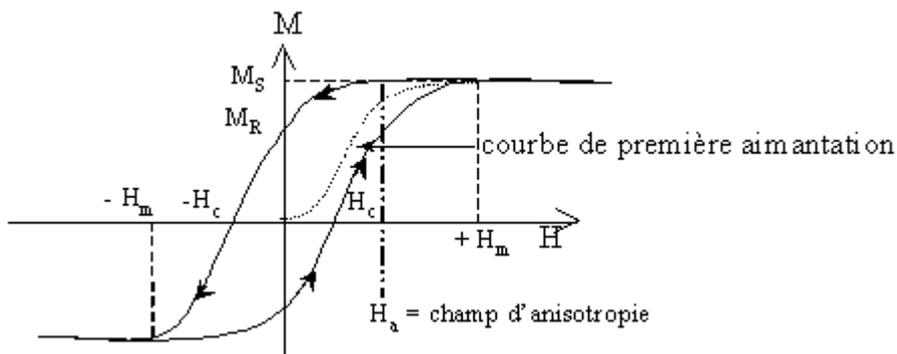


Figure I-7 : Cycle d'hystérésis d'un matériau aimanté

Si on applique un champ à un matériau, on modifie la répartition des domaines par déplacement des parois et il en résulte une variation de l'aimantation. Celle-ci est représentée en pointillés sur la **figure I.7** et est appelée courbe de première aimantation. Cette courbe présente une décroissance de sa pente qui finit par s'annuler. La valeur de l'aimantation à saturation (M_s) est obtenue lorsque tous les spins sont parallèles. La pente à l'origine de cette courbe s'appelle la perméabilité initiale du matériau. Cette perméabilité initiale μ_i représente

la valeur $\frac{\Delta M}{\Delta H}$ dans l'état démagnétisé. En fait, la courbe d'aimantation dépend beaucoup de la pureté de l'échantillon.

Si le champ varie entre deux valeurs extrêmes ($-H_m$, $+H_m$), la variation de l'aimantation n'est plus réversible et décrit un cycle d'hystérésis.

Le champ coercitif représente la valeur du champ à partir de laquelle le retournement des moments devient possible. Grâce à celui-ci on peut définir deux catégories de matériaux :

- les matériaux à grand champ coercitif (plusieurs centaines de kA/m) s'appellent des matériaux durs. Ils sont utilisés pour la réalisation d'aimants permanents ou d'éléments de mémoire,
- par opposition, les matériaux possédants une faible valeur du champ coercitif (quelques A/m) sont dits doux. Ils constituent des circuits magnétiques pour transformateurs ou des pièces de blindage magnétique.

A partir du tracé du cycle d'hystérésis on peut aussi évaluer la valeur du champ d'anisotropie (voir **figure I.7**). En effet, c'est la valeur du champ pour lequel l'aimantation est alignée avec celui-ci lorsqu'il est dans la direction de difficile aimantation. Il indique la facilité avec laquelle on peut faire basculer l'aimantation d'un matériau. Il s'agit d'un champ fictif auquel correspond une énergie : l'énergie d'anisotropie, que nous allons présenter dans le paragraphe suivant.

I.1.5.4. Energie d'anisotropie magnétocristalline

I.1.5.4.1 Définition

Cette énergie résulte de la structure cristalline elle-même. En effet, les moments des atomes tendent à s'orienter dans certaines directions dites directions de facile aimantation. Si un moment atomique est orienté dans une direction différente des directions de facile aimantation, il possède une certaine énergie potentielle d'anisotropie dépendant de l'angle du moment avec les directions de facile aimantation. Cette énergie est minimale lorsque le moment est orienté suivant l'axe de facile aimantation.

Pour un corps ferromagnétique, l'orientation des domaines peut être modifiée par l'application d'un champ directeur suivant une direction bien déterminée par rapport aux axes du cristal. Cette orientation des domaines va provoquer une aimantation résultante de l'ensemble du cristal et la courbe fournissant M en fonction de H pourra être tracée. L'énergie nécessaire pour amener l'ensemble des moments dans la direction du champ est donnée par :

$$E = \int HdM \quad (1.14)$$

Cette énergie est différente selon l'orientation de H, c'est à dire de M à saturation, par rapport aux axes du cristal.

Par exemple, l'expression générale de E, pour un système cubique, est de la forme :

$$E = K_1 (\alpha_1^2 \alpha_2^2 + \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2) + K_2 \alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2 + \dots \quad (1.15)$$

où les deux premiers termes suffisent et font apparaître deux constantes K_1 et K_2 . De plus, α_1 , α_2 et α_3 sont les cosinus directeurs de l'aimantation par rapport aux trois axes du cristal. Le nickel et la plupart des ferrites correspondent à un K_1 négatif. Pour les applications hautes fréquences il faut réduire au maximum K_1 de façon à réduire les pertes. A titre d'exemple, quelques valeurs de K_1 sont reportées dans le tableau ci-dessous :

	Fe	Ni	MnOFe ₂ O ₃	FeOFeO ₃	NiOFe ₂ O ₃
K_1 à 300°K en Joules/m ³	4,2.10 ⁴	-5.10 ³	-3.10 ²	-1,1.10 ⁴	6,2.10 ³

Tableau I-1 : Valeurs de K_1 pour quelques éléments

I.1.5.4.2 Variation de l'énergie d'anisotropie en fonction de la température

Les termes K_1 et K_2 varient très vite en fonction de la température. Ces termes présentent une variation liée à la variation de l'aimantation en fonction de la température de la forme :

$$K_n(T) = K_n(0) \left[\frac{M(T)}{M(0)} \right]^p \quad (1.16)$$

Ci-dessous, des valeurs de p sont données à titre d'exemple pour le fer et le cobalt.

n	p (fer)	p (cobalt)
1	10	3
2	21	10

Tableau I-2 : Valeurs de p pour le fer et le cobalt

I.1.5.5. Champ démagnétisant

Si l'on considère un aimant d'intensité d'aimantation M par unité de volume. Le champ magnétique en un point intérieur à l'aimant correspond au champ démagnétisant créé par les masses magnétiques fictives dues à la discontinuité de l'aimantation à la surface limite de l'aimant. Ce champ a pour expression :

$$H_d = -\overline{N} \frac{M}{\mu_0} \quad (1.17)$$

\overline{N} est un opérateur tensoriel sans dimension ayant une représentation simple dans les cas où l'aimant a une forme géométrique simple (cylindre, disque, sphère) se rapprochant d'une forme théorique ellipsoïdale. Pour un corps de forme ellipsoïdale à l'intérieur duquel le champ démagnétisant est homogène nous avons :

$$N = \begin{vmatrix} N_x & 0 & 0 \\ 0 & N_y & 0 \\ 0 & 0 & N_z \end{vmatrix} \quad (1.18)$$

N_x, N_y, N_z sont les composantes de N suivant trois axes de références Ox, Oy, Oz liés aux axes de symétrie de l'ellipsoïde. Ce champ démagnétisant introduit une anisotropie supplémentaire, dite de forme, car les composantes du tenseur \overline{N} ne sont pas égales.

Dans le cas d'un plan parfait, que l'on approche physiquement en utilisant un échantillon d'épaisseur très faible devant ses autres dimensions (couche mince), l'existence d'une composante normale de l'aimantation au plan de l'échantillon va être énergétiquement défavorable, et donc l'aimantation du matériau reste dans ce plan.

I.1.6. Le ferrimagnétisme [2] [4] [6]

I.1.6.1. Définition

Par définition, un matériau ferrimagnétique est un matériau qui possède deux sous-réseaux qui n'ont pas la même aimantation (**figure I.8**) : à l'intérieur d'un domaine, les moments de spins des atomes constituants peuvent être opposés ; le moment résultant étant positif, négatif ou nul.

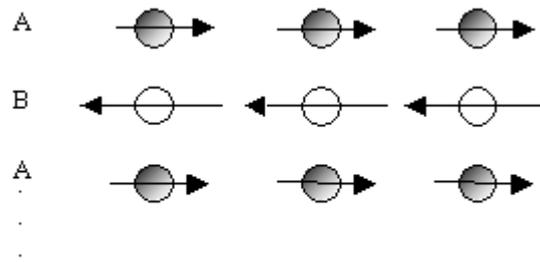


Figure I-8 : Réseau de spin d'un matériau ferrimagnétique

Le parallélisme ou l'anti-parallélisme des moments de spin est déterminé par la condition d'énergie d'échange minimale compte tenu de la valeur de l'intégrale d'échange. Tout ce qui a été exposé précédemment sur le ferromagnétisme reste valable pour l'étude des matériaux ferrimagnétiques. Dans ce qui suit nous allons nous intéresser à des corps ferrimagnétiques particuliers : **les ferrites**.

I.1.6.2. Les ferrites

I.1.6.2.1 Définition et structure

Au départ, le terme ferrimagnétisme a été créé pour décrire l'ordre des spins ferromagnétiques intervenant dans les ferrites. Les ferrites ont une structure granulaire polycristalline : chaque grain est un cristal de ferrite. Ces matériaux ont une très faible conductibilité, ce qui favorise les interactions matière-onde électromagnétique.

Un ferrite est un oxyde magnétique de formule chimique $\text{Fe}_2\text{O}_3\text{MeO}$ où Me représente un métal bivalent tel que Zn, Cd, Fe, Ni, Cu, Co, Mg....

La structure cristalline des ferrites est analogue à celle des spinelles de formule générale $\text{Al}_2\text{O}_3\text{MgO}$. La maille cristalline est formée :

- des ions oxygène répartis suivant une maille cubique à face centrée,
- et des ions métalliques qui se répartissent dans les interstices laissés par les ions oxygénés.

Les interstices laissés par les ions O^{2-} , appelées sites, sont de deux sortes :

- sites A tétraédriques : au centre de quatre ions oxygène,
- sites B octaédriques : au centre de six ions oxygène.

Une maille cristalline contient 32 ions oxygène et 24 ions métalliques. Aux 32 ions oxygène correspondent 96 interstices : 64 sites A et 32 sites B. De plus, les 24 ions métalliques se répartissent entre les différents sites suivant deux types de distribution

correspondant l'une à la structure spinelle, l'autre à la structure antispinelle ou structure inverse.

La majorité des ferrites utilisées aux hyperfréquences ont une structure antispinelle. Enfin le cas des ferrites est moins simple que le cas des cristaux métalliques. En effet, l'intégrale d'échange de deux ions métalliques dans une structure ferrite est établie en tenant compte d'une interaction de ces deux ions avec les ions oxygène les séparant (théorie du super-échange). La **figure I.9** représente schématiquement la structure cristalline des ferrites.

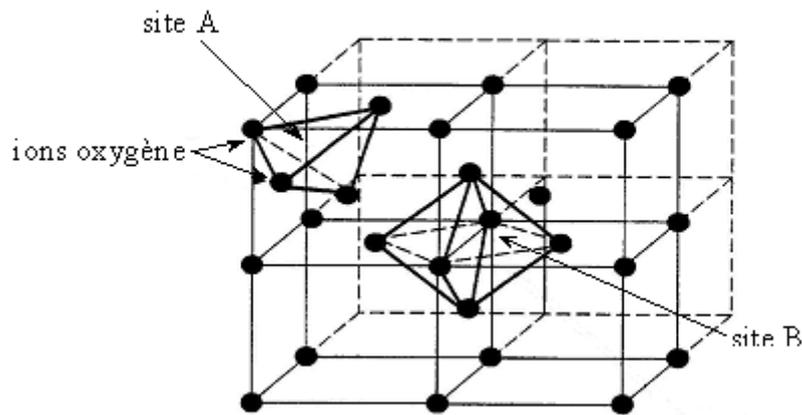


Figure I-9 : Structure cristalline des ferrites

I.1.6.2.2 Propriétés magnétiques

Dans les ferrites, il existe une grande énergie d'échange entre les ions des sites A et B. Celle-ci est négative et conduit donc à un antiparallélisme des moments μ_A et μ_B (μ_A et μ_B étant les moments des sites A et B).

S'il existe plusieurs ions magnétiques dans la composition d'un ferrite qui se répartissent entre les sites A et B, le moment total par molécule est :

$$\mu_{total} = \sum_i (x_{i_A} g_i S_i)_A - \sum_i (x_{i_B} g_i S_i)_B \quad (1.19)$$

μ_{total} s'exprimant en magnétons de Bohr.

Avec : x_{i_A} : nombre d'ions du type i par molécule sur les sites A,

x_{i_B} : nombre d'ions du type i par molécule sur les sites B,

g_i : facteur de Landé de l'ion i,

S_i : nombre total de spin de l'ion i.

S'il n'existe qu'une sorte d'ion ferromagnétique (Fe^{3+} par exemple) nous aurons x ions occupant des sites A et y ions occupant des sites B, avec $x + y = 1$. De plus, s'il existe une interaction entre les sites A et B, les moments des ions sur chacun de ces sites seront différents. Le moment moyen est donc de la forme :

$$\bar{\mu} = x\mu_A + y\mu_B \quad (1.20)$$

Si le nombre total d'ions par unité de volume est N_1 , il existera une aimantation résultante moyenne :

$$N_1 \bar{\mu} = xM_A + yM_B = M \quad (1.21)$$

Dans l'expression (1.21), M_A et M_B sont différents et ont pour expression respectives:

$$M_A = C \left(\frac{H + h_A}{T} \right) \quad (1.22)$$

$$M_B = C \left(\frac{H + h_B}{T} \right) \quad (1.23)$$

où : H : champ appliqué extérieur,

h_A : champ moléculaire sur les sites A,

h_B : champ moléculaire sur les sites B,

C : constante de Curie.

Les champs moléculaires h_A et h_B , qui sont des champ effectifs, introduits précédemment, sont définis à l'aide des relations suivantes :

$$h_A = \frac{n}{\mu_0} [\alpha x M_A + \epsilon y M_B] \quad (1.24)$$

$$h_B = \frac{n}{\mu_0} [\beta y M_B + \epsilon x M_A] \quad (1.25)$$

où n est un nombre positif et ϵ est égal à -1 . De plus, nous constatons que le champ moléculaire total h_A est dû à l'action des ions A (respectivement B) par l'intermédiaire du facteur $n\alpha$ (respectivement $n\epsilon$).

En éliminant des équations précédentes (1.24) et (1.25) les termes M_A , M_B , h_A et h_B on peut calculer $M = \chi H$ et on trouve la formule suivante :

$$\frac{1}{\chi} = \frac{T}{C} + \frac{1}{\chi_0} - \frac{\sigma}{T - \theta} \quad (1.26)$$

ici σ , θ et χ_0 s'expriment en fonction des paramètres x , y , n , α et β .

La forme de la courbe représentant $\frac{1}{\chi}$ est donnée sur la **figure I.10**.

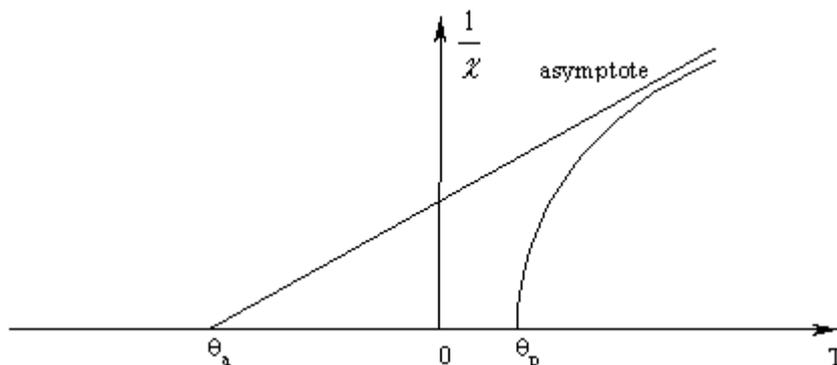


Figure I-10 : Variation de $1/\chi$ en fonction de la température

Sur cette courbe θ_a est le point de Curie asymptotique et θ_p est le point de Curie paramagnétique.

Si θ_p est négatif la substance est toujours paramagnétique, au contraire si θ_p est positif et la température inférieure à θ_p , elle possède une aimantation rémanente. En effet, dans ce cas, il apparaît des aimantations spontanées sur les sites A et B. Il y a donc une mise en ordre des spins au-dessous d'une certaine température.

I.2. Le circulateur intégré [9] [10] [11] [12] [13] [14] [15]

Les dispositifs à ferrite (isolateurs, circulateurs, déphaseurs ...) ont connu un essor considérable durant ces dix dernières années. Les circulateurs en Y sont employés en micro-ondes à cause de leur simplicité, de leur faible encombrement et de leur prix de revient modéré. Dans cette partie nous allons détailler le principe de fonctionnement des circulateurs en Y à trois voies, puis nous allons décrire rapidement le phénomène qui est à l'origine de la fonction circulation.

I.2.1. Principe de fonctionnement d'un circulateur

La **figure I.11** donne la représentation d'un circulateur en Y à trois voies. Un circulateur est un hexapôle. Il comporte trois voies à 120° les unes des autres autour d'un corps central où se trouvent les éléments qui confèrent au circulateur sa non réciprocity. Les circulateurs réalisent une transmission des ondes par substitution cyclique. En effet, quand un champ magnétique transversal lui est appliqué, il se crée dans la partie centrale un champ interne qui est tel qu'une onde entrant par la voie 1, 2 ou 3 ne peut ressortir respectivement que par la voie 2, 3 ou 1.

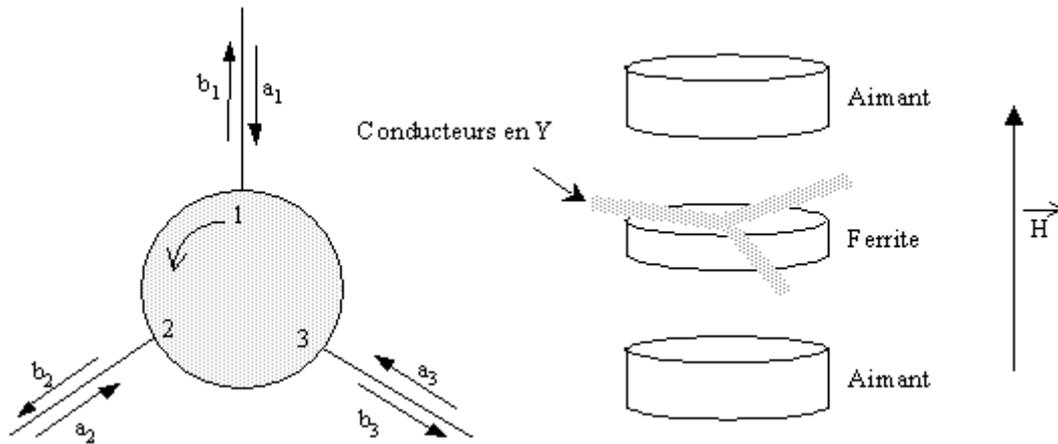


Figure I-11 : Schéma de principe d'un circulateur à trois voies

Un tel dispositif a donc deux fonctions essentielles au sein des systèmes :

- tout d'abord, il permet d'assurer une fonction d'aiguillage du signal radiofréquence dans tous les systèmes où la séparation des voies d'émission et de réception est utile (radars, transmissions par satellite, téléphonie mobile...),
- la seconde application se situe dans la fonction d'isolation inter-étages pour masquer une désadaptation entre deux éléments successifs dans une chaîne d'émission.

Les deux grandeurs importantes pour un circulateur sont :

- les pertes d'insertions qui doivent être les plus faibles possible (< 1 dB),
- et une bonne isolation (~ 30 dB).

Les circulateurs modernes doivent être capables de fonctionner dans une gamme de température allant de -40°C à $+85^{\circ}\text{C}$, dans une large bande de fréquences, avec de faibles pertes d'insertions et une bonne isolation.

I.2.2. Propriétés

Pour un circulateur à trois voies, les amplitudes des ondes qui entrent dans la jonction et celles des ondes qui en sortent sont reliées par la relation matricielle suivante :

$$[b_i] = [S_{ij}] [a_i] \quad (1.27)$$

Si les pertes à l'intérieur de la jonction sont supposées négligeables, la matrice S reste unitaire et est de la forme :

$$S = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{bmatrix} \quad (1.28)$$

Celle-ci étant unitaire la propriété suivante est vérifiée :

$$S \cdot \bar{S} = 1 \quad (1.29)$$

L'expression (1.29) ne fait que traduire le théorème de conservation de l'énergie.

De plus, comme la perméabilité du milieu intérieur à la jonction n'est pas scalaire, la jonction n'est pas symétrique et on a généralement :

$$S_{ij} \neq S_{ji} \quad (1.30)$$

En réalité, un circulateur n'est jamais parfait. La connaissance de ses propriétés revient à connaître les neuf termes de sa matrice S en fonction de la fréquence, de la température ...

I.2.3. La résonance gyromagnétique

En général, la plage du spectre électromagnétique, où les ferrites sont utilisés, est comprise entre 100 MHz et 100 GHz. A ces fréquences, un des phénomènes important exploité est la résonance gyromagnétique qui confère au matériau son aptitude à répondre différemment à une onde électromagnétique suivant sa polarisation. De plus, elle permet de séparer les dispositifs en deux classes distinctes :

- ceux qui travaillent à la résonance (isolateurs, filtres...),
- et ceux qui travaillent hors de la résonance (circulateurs...).

I.2.3.1. Description

Avant toute chose, nous devons faire certaines hypothèses simplificatrices pour pouvoir introduire la théorie qui va suivre :

- en l'absence de champ radiofréquence, et en présence du champ magnétique continu, à l'équilibre, M est constant dans tout le matériau. Le champ démagnétisant statique est le même dans tout le matériau. Cela impose une forme ellipsoïdale à celui-ci,
- les dimensions de l'échantillon sont faibles vis à vis de la longueur d'onde du champ microonde exciteur, c'est à dire qu'on négligera tout effet de propagation du champ d'excitation à l'intérieur de l'échantillon, aussi bien du champ microonde appliqué que du champ démagnétisant créé,

- les champs effectifs d'anisotropie sont négligeables.

On considère alors un ferrite de forme ellipsoïdale et aimanté à saturation par un champ magnétique statique H_z appliqué suivant une direction de facile aimantation. Le champ à l'intérieur du matériau se trouve dans la même direction et son intensité vaut :

$$H_i = H_z - N_z M_s \quad (1.31)$$

où N_z est le coefficient du champ démagnétisant selon Oz et M_s l'aimantation à saturation. On superpose à H_z un champ magnétique hyperfréquence \vec{h} ($h \ll H_z$) qui lui est perpendiculaire ($h \ll H_z$). De ce fait, un champ hyperfréquence h_i apparaît dans le matériau et son aimantation M est alors écartée de l'axe Oz :

$$\vec{M} = \chi \cdot (\vec{H}_i + \vec{h}_i) \quad (1.32)$$

dans cette expression χ est la susceptibilité magnétique du matériau. De plus, en appliquant le théorème du moment cinétique, on obtient :

$$\frac{d\vec{M}}{dt} = \gamma \mu_0 \vec{M} \wedge (\vec{H}_i + \vec{h}_i) + \text{terme d'amortissement} \quad (1.33)$$

Ainsi l'aimantation globale décrit un mouvement de précession autour de H_z à une fréquence f donnée (**figure I.12**).

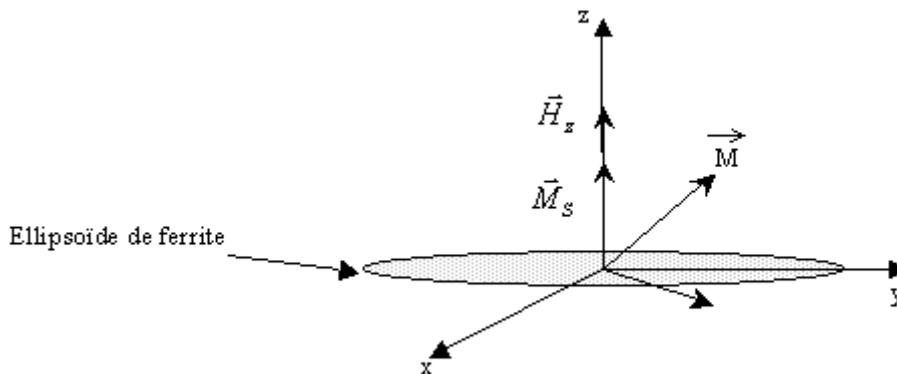


Figure I-12 : Précession de l'aimantation autour de la direction du champ magnétique

Cette fréquence f est donnée par la formule de Kittel suivante :

$$\omega = 2\pi f = \gamma \mu_0 \sqrt{[H_r - (N_z - N_x)M_s][H_r - (N_z - N_y)M_s]} \quad (1.34)$$

où :

γ est le facteur gyromagnétique,
 M_s est l'aimantation à saturation du matériau,
 H_r est la valeur du champ à la résonance,
 et N_x, N_y, N_z sont les facteurs démagnétisants et dépendent de la forme de l'échantillon (**tableau I.3**).

	N_x	N_y	N_z	ω
Echantillon sphérique	1/3	1/3	1/3	$\gamma\mu_0 H_r$
Plaquette infinie suivant x et y	0	0	1	$\gamma\mu_0 (H_r - M_s)$
Cylindre infiniment long suivant z	1/2	1/2	0	$\gamma\mu_0 (H_r + 0,5 M_s)$

Tableau I-3 : Valeurs des facteurs démagnétisants pour quelques échantillons

A titre indicatif, la valeur du facteur gyromagnétique pour les ferrites est telle que :

$$\gamma = 2,8 \text{ MHz/Oe} \quad (1.35)$$

I.2.3.2. Définition des tenseurs de Polder et de perméabilité magnétique

Deux notions importantes à introduire à ce stade sont les notions de tenseur de perméabilité magnétique $\overline{\mu}$ et de tenseur de susceptibilité magnétique $\overline{\chi}$. En résolvant simultanément les équations (1.32) et (1.33) et en éliminant les composantes indépendantes du temps, on obtient les relations suivantes :

$$M_x = \chi_{xx} \cdot h_x + \chi_{xy} \cdot h_y \quad (1.36)$$

$$M_y = \chi_{yx} \cdot h_x + \chi_{yy} \cdot h_y \quad (1.37)$$

Nous avons donc dans le ferrite :

$$\vec{M} = \overline{\chi} \vec{H} \quad (1.38)$$

où le tenseur $\overline{\chi}$ est aussi appelé tenseur de Polder.

En général, nous utilisons la relation entre l'induction magnétique \vec{B} et le champ magnétique \vec{H} qui permet de faire intervenir le tenseur de perméabilité magnétique de la manière suivante :

$$\vec{B} = \mu_0 \overline{\mu_r} \vec{H} \quad (1.39)$$

où μ_0 est la perméabilité magnétique du vide et $\overline{\mu_r}$ le tenseur de perméabilité magnétique.

Ce tenseur peut s'écrire :

$$\overline{\mu_r} = \begin{vmatrix} \mu_r & -j\kappa & 0 \\ j\kappa & \mu_r & 0 \\ 0 & 0 & \mu_{rz} \end{vmatrix} \quad (1.40)$$

les termes μ_r et κ peuvent être évalués, mais nous n'entrerons pas dans le détail du calcul ici.

I.2.3.3. La non réciprocity dans les ferrites

Pour un ellipsoïde de révolution nous avons $\chi_{xy} = -\chi_{yx}$, ce qui permet de diagonaliser la matrice [M]. Une base de vecteurs propres est donnée par le vecteur unitaire de l'axe Oz et les vecteurs unitaires du plan Oxy tournant à la pulsation du champ hyperfréquence, l'un dans le sens positif (polarisation circulaire positive h_+), l'autre en sens négatif (polarisation circulaire négative h_-). Les équations 1.36 et 1.37 s'écrivent alors :

$$M_+ = \chi_+ \cdot h_+ \quad (1.41)$$

$$M_- = \chi_- \cdot h_- \quad (1.42)$$

Pour un matériau ferrite possédant des pertes nous avons aussi bien pour χ_+ que pour χ_- :

$$\chi_{\pm} = \chi'_{\pm} - j\chi''_{\pm} \quad (\chi_{\pm} = \mu_{\pm} - 1) \quad (1.43)$$

La **figure I.13** représente l'évolution des quatre coefficients μ'_+ , μ'_- , μ''_+ et μ''_- en fonction du champ magnétique continu interne à un matériau de ferrite, pour une fréquence donnée. Dans le cas où la polarisation de l'onde est circulaire négative, on observe que $\mu'_- \approx 1$ et que $\mu''_- \approx 0$. Cette propriété est à la base des dispositifs non réciproques car il est possible de trouver des champs statiques H pour lesquels μ'_+ et μ'_- sont suffisamment différents et $\mu''_+ \approx \mu''_- \approx 0$.

De plus, au voisinage de la résonance, μ''_+ décrit une lorentzienne dont la largeur à mi-hauteur, notée ΔH , caractérise par définition les pertes magnétiques à la résonance.

Enfin, à partir de la connaissance des valeurs de μ'_+ loin de la résonance, on peut extrapoler une lorentzienne dont la largeur à mi-hauteur, notée ΔH_{eff} , correspond aux pertes magnétiques hors résonance (**figure I.14**).

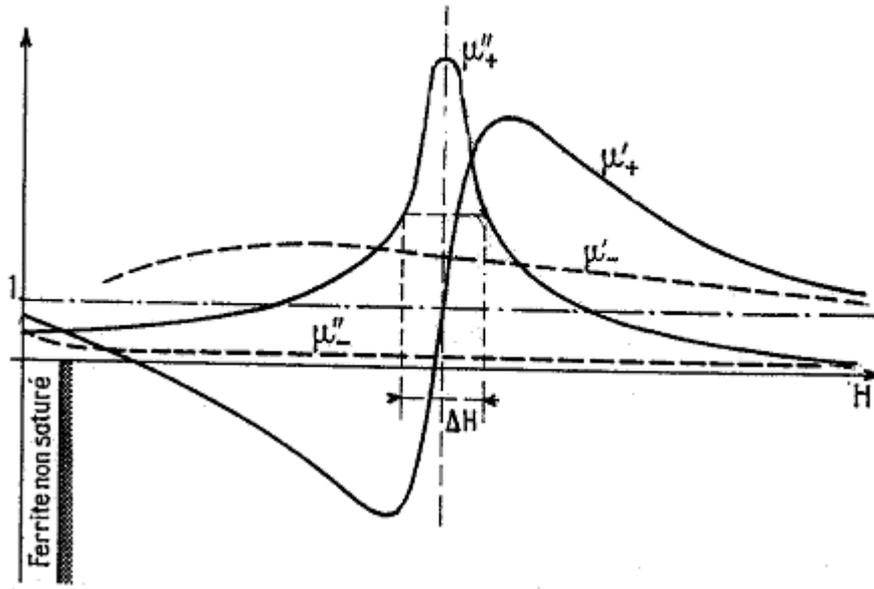


Figure I-13 : Evolution des quatre paramètres μ'_+ , μ'_- , μ''_+ et μ''_- en fonction du champ magnétique total interne pour une fréquence donnée

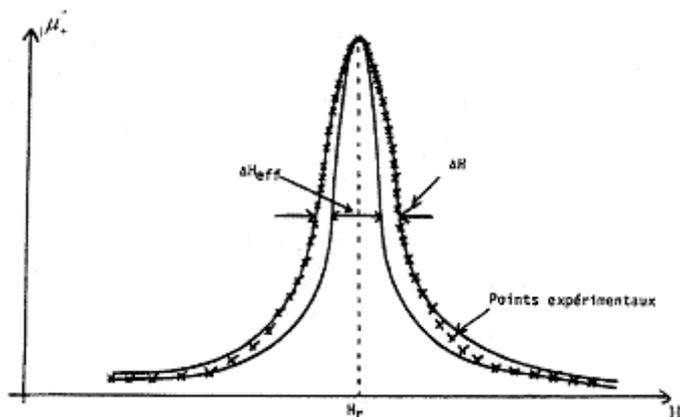


Figure I-14 : Définition de ΔH et de ΔH_{eff}

I.2.3.4. Les dispositifs hors résonance

Pour ces dispositifs, la valeur des pertes magnétiques à la résonance intervient peu : on utilise la différence de la perméabilité suivant la polarisation. Le paramètre qui est important est alors $\frac{4\pi M_s}{H^2 - (f/\gamma)^2}$ où f est la fréquence d'utilisation du dispositif et H la somme du champ appliqué et du champ d'anisotropie.

Les pertes d'insertion de ces dispositifs prennent en compte les pertes diélectriques du matériau utilisé et les pertes magnétiques hors résonance ΔH_{eff} .

I.3. Les ferrites utilisés aux hyperfréquences [16] [17] [18]

I.3.1. Choix du matériau

Le choix du matériau ferrite est conditionné par les performances du dispositif que l'on souhaite réaliser. La classe des matériaux oxydes ferrimagnétiques (ou ferrites) peut être subdivisée en quatre principales familles structurales :

- les spinelles $M\text{Fe}_2\text{O}_4$ ($M = \text{Co}, \text{Ni}, \text{Zn} \dots$)
- les grenats $\text{L}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$ (L : terre rare ou yttrium), dont le plus connu est le grenat d'yttrium fer (YIG) $\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$
- les orthoferrites LFeO_3 (L : terre rare ou yttrium)
- les ferrites hexagonaux.

Les caractéristiques magnétiques de quelques ferrites sont reportées dans le **tableau I.4** suivant :

Matériau	$\text{Y}_3\text{Fe}_5\text{O}_{12}$	LiFe_5O_8	$\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ (type M)	$\text{BaFe}_{18}\text{O}_{27}$ (type W)
M_s (10^{-4} Wb/m ²)	143	290	382	415
$4\pi M_s$ (Tesla)	0,18	0,364	0,48	0,522
H_A (kA/m)	4,2	36	$1,35 \cdot 10^3$	$1,51 \cdot 10^3$
H_A (Oe)	53	450	17000	19000

Tableau I-4 : Caractéristiques de quelques ferrites à $T = 300$ K

Nous allons décrire plus précisément les ferrites hexagonaux. Il en existe un grand nombre dont les plus importants sont :

- l'hexaferrite de baryum de type M ($\text{BaFe}_{12}^{3+}\text{O}_{19}$), d'anisotropie uniaxiale,
- l'hexaferrite de baryum de type W ($\text{BaFe}_2^{2+}\text{Fe}_{16}^{3+}\text{O}_{27}$), d'anisotropie uniaxiale,
- et l'hexaferrite de baryum de type Y ($\text{Ba}_2\text{Me}_2^{2+}\text{Fe}_{12}^{3+}\text{O}_{22}$), d'anisotropie planaire, Me étant un ion métallique divalent.

Les hexaferrites de type W ne sont pas intéressants pour la réalisation de dispositifs hyperfréquences. En effet, ils possèdent des ions Fe^{2+} qui entraînent des pertes diélectriques importantes dans le domaine hyperfréquences.

Les composés de type Y possédant une anisotropie planaire ne sont pas adaptés aux dispositifs dont le fonctionnement est basé sur la résonance gyromagnétique.

Les hexaferrites de type M possèdent des valeurs d'aimantation à saturation suffisamment élevées pour rendre leur utilisation possible au dessus de 20 GHz.

De plus, ils présentent une forte anisotropie magnétocristalline ce qui en fait les candidats idéaux pour la réalisation de dispositifs à ferrite dans le domaine des ondes millimétriques. Selon l'application, ils sont élaborés sous forme de mono ou polycristaux. Dans le deuxième cas, la nécessité de conserver les propriétés inhérentes à la forte anisotropie exige la réalisation de polycristaux orientés. Un autre point positif de ces matériaux est la stabilité en température de leurs propriétés magnétiques.

I.3.2. Structure cristalline

Compte tenu de nos objectifs, nous ne nous intéressons qu'aux hexaferrites de type M dont la structure cristalline est la même que celle de la magnétoplombite de formule approximative $\text{PbFe}_{7.5}\text{Mn}_{3.5}\text{Al}_{0.5}\text{Ti}_{0.5}\text{O}_{19}$. C'est un empilement compact de couches d'ions oxygène, certains de ces oxygènes étant substitués par des cations divalents de taille comparable (Ba^{2+} , Sr^{2+} , Pb^{2+} ...).

La structure hexagonale de type M correspond à l'empilement le long de l'axe c de blocs R, S, R* et S* (**figures I.15 et I.16**) où R* et S* se déduisent de R et S par une rotation de 180° autour de l'axe c.

De plus, une représentation de la structure cristalline de la phase M est donnée sur la **figure I.17**.

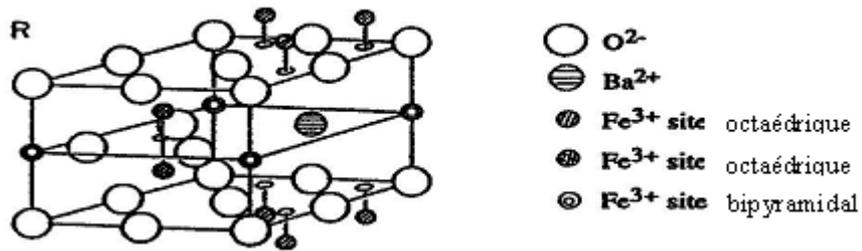


Figure I-15 : Bloc structural R (ou bloc hexagonal)

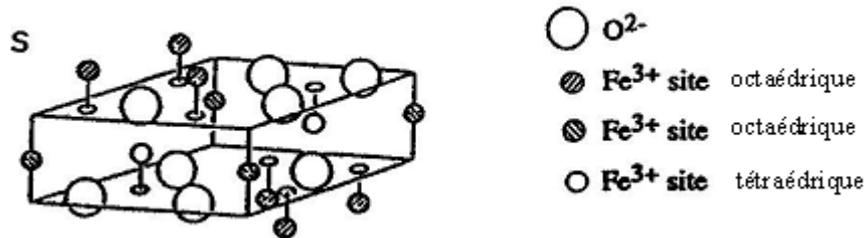


Figure I-16 : Bloc structural S (ou bloc spinelle)

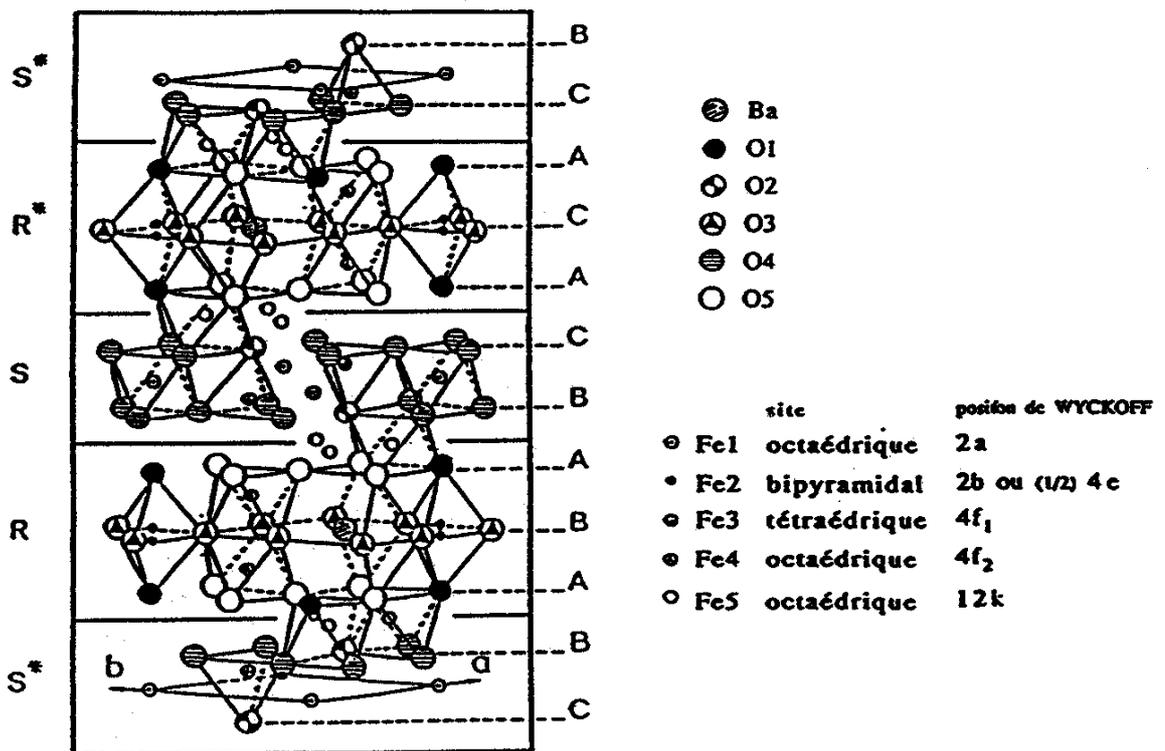


Figure I-17 : Structure cristalline de la phase M
 (paramètres de maille : a = 5,89 Å, c = 23,2 Å)

Les ions magnétiques Fe^{3+} sont situés dans trois types de sites interstitiels :

- deux cations en sites tétraédriques dans le bloc S,
- quatre cations en sites octaédriques dans le bloc S, cinq cations en sites octaédriques dans le bloc R,
- un cation en site bipyramidal,

et dans cinq positions cristallographiques distinctes.

I.3.3. Diagramme de phases

Les diagrammes d'équilibre ont pour but de visualiser de manière précise les domaines d'existence des diverses phases d'un système chimique, leurs relations et leur variation en fonction des variables de position (composition chimique) et d'action (pression et température). Le diagramme de phases concernant l'hexaferrite de baryum est donné sur la **figure I.18**.

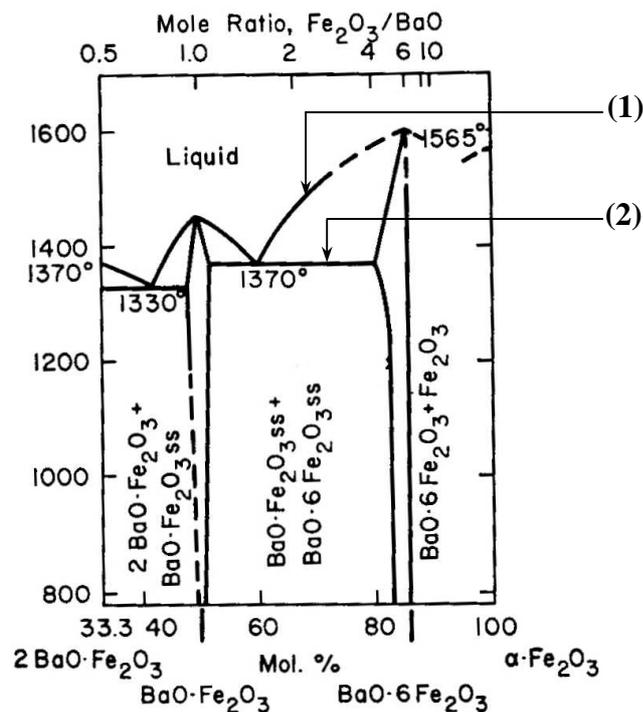


Figure I-18 : Diagramme de phases

Il faut noter que ce diagramme n'est pas complet puisqu'il commence à un pourcentage de 33,3% et qu'au-delà de 80% la composition et les températures ne sont pas définies. La courbe (1) est la courbe du liquidus qui représente le lieu des points où le liquide laisse déposer les premiers cristaux. Quant à la courbe (2), il s'agit de la courbe du solidus qui est le lieu des points où les phases solides laissent apparaître les premières gouttes de liquide.

A partir de ce diagramme, nous pouvons dire que le point de fusion du composé $\text{BaO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$ se situe à 1565°C . De plus, ce composé est défini sur un faible intervalle de compositions. En effet, un faible décalage en composition vers la droite ou vers la gauche du diagramme entraîne l'apparition de mélanges biphasés : $\text{BaO} \cdot \text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{BaO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3$ ou $\text{BaO} \cdot 6\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{Fe}_2\text{O}_3$.

I.3.4. Propriétés magnétiques

En général, les ferrites hexagonaux sont ferrimagnétiques. Ce qui les distingue des autres ferrites c'est qu'ils possèdent une forte aimantation à saturation et une forte anisotropie magnétocristalline selon l'axe c.

I.3.4.1. Le moment magnétique

Les propriétés magnétiques de l'hexaferrite de baryum sont semblables à celles de Fe_2O_3 du fait de la présence d'ions Fe^{3+} en sites octaédriques et tétraédriques. Elles sont régies par les règles de la théorie du super échange développée par Kramers dès 1934 et reprise par Anderson (1950).

Le super échange s'effectue par l'intermédiaire des ions oxygène et conduit à une configuration stable de moments antiparallèles. Son intensité est inversement proportionnelle à la distance entre les ions magnétiques et l'ion oxygène. De plus, elle est maximale pour un angle ion magnétique – oxygène – ion magnétique égal à 180° .

La structure cubique spinelle S ne conduit pas à une seule direction de facile aimantation. C'est la présence de couches BaO dans le bloc R qui impose cette direction : celle de l'axe c de la maille.

Dans le **tableau I.5** nous avons reporté la séparation et l'orientation des moments magnétiques des ions Fe^{3+} en fonction de leurs positions dans les différents sites.

Bloc cristallographique	Ions en sites tétraédriques	Ions en sites octaédriques	Ions pentacoordonnés
R	-	3↑ 2↓	1↑
S	2↓	4↑	-

Tableau I-5 : Orientation des moments magnétiques des ions Fe^{3+}

↑ (↓) : orientation « up » (« down ») suivant l'axe c

Le moment magnétique des ions Fe^{3+} est de cinq magnétons de Bohr (μ_B) au zéro absolu. Donc, pour une molécule de $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ tous les spins étant colinéaires, l'aimantation résultante est de :

$$5 * (3 + 4 + 1 - 2 - 2) = 20 \mu_B \text{ à } 0 \text{ K}$$

d'où un moment magnétique de 0,66 Tesla.

Sur la **figure I.19** est représentée l'évolution du moment magnétique à saturation en fonction de la température.

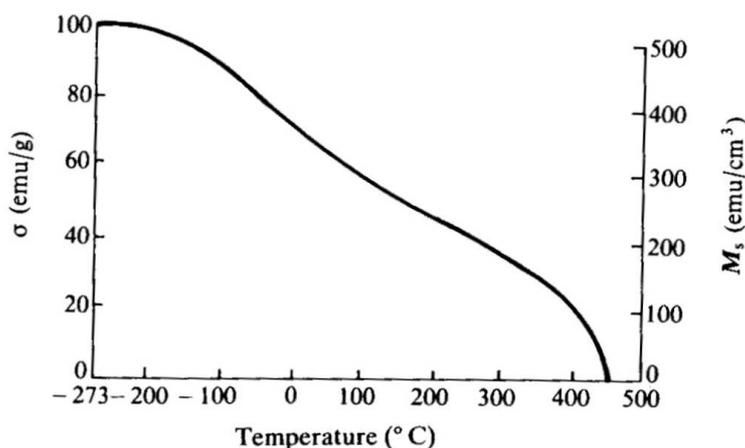


Figure I-19 : Moment à saturation du $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ en fonction de la température

$$1 \text{ emu/cm}^3 \rightarrow 4\pi \cdot 10^{-4} \text{ Tesla}$$

Nous constatons que l'aimantation décroît à peu près linéairement pour une plage de température variant de -73°C à 327°C . Cela est dû à la prépondérance des interactions entre ions placés en sites octaédriques. De plus, la température de Curie est de 450°C et le moment magnétique est égal à 0,48 Tesla pour une température de 20°C .

I.3.4.2. Anisotropie magnétocristalline

L'anisotropie du BaM est axiale suivant l'axe c et donc la valeur du champ d'anisotropie est très élevée.

Elle a deux origines microscopiques principales :

- le couplage dipolaire entre moments magnétiques,
- le couplage spin-orbite combiné au champ cristallin.

D'un point de vue phénoménologique, comme nous l'avons vu au paragraphe I.1.5.4.1., l'énergie d'anisotropie est l'énergie à fournir au matériau pour que son moment magnétique

soit aligné suivant une direction de difficile aimantation. Dans le cas d'un cristal de symétrie hexagonale, cette énergie s'écrit :

$$E_A = K_1 \sin^2\theta + K_2 \sin^4\theta + K_3 \sin^6\theta + K_4 \sin^6\theta \cos 6\phi \quad (1.44)$$

où θ et ϕ sont les coordonnées polaires de l'aimantation par rapport aux axes cristallographiques.

Pour les hexaferrites de type M on ne prend en compte que le premier terme. Dans ce cas, l'expression de E_A est donc de la forme :

$$E_A = K_1 \sin^2\theta. \quad (1.45)$$

De même, le champ d'anisotropie est le champ qu'il faut appliquer pour écarter le moment magnétique de la direction de facile aimantation. Son expression est de la forme :

$$H_A = \frac{2K_1}{\mu_0 M_s} \quad (1.46)$$

La valeur qui existe réellement est l'énergie. Dans l'expression de H_A seul le terme K_1 a une réalité physique. Ce champ permet seulement de rendre compte de l'énergie.

Sur la **figure I.20** est reportée l'évolution du champ d'anisotropie en fonction de la température.

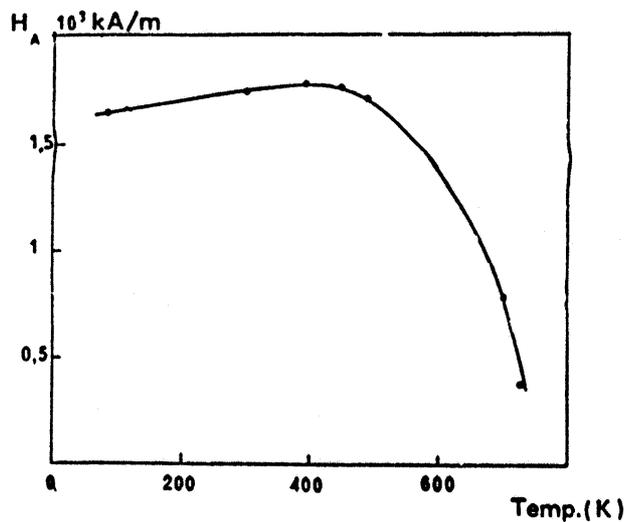


Figure I-20 : Variation de H_A en fonction de la température

A titre d'exemple, à température ambiante la valeur de la constante d'anisotropie est $K_1 = 250 \text{ kJ/m}^3$. De plus, nous constatons que le champ d'anisotropie vaut $1,36 \cdot 10^6 \text{ A/m}$ à cette même température.

I.4. Etude bibliographique

I.4.1. Les circulateurs [19] [20] [21]

L'émergence des communications mobiles depuis quelques années a relancé l'intérêt pour l'étude de nouveaux systèmes à ferrite. Actuellement, ces systèmes sont rarement utilisés au sein des téléphones cellulaires dans la gamme des très hautes fréquences (UHF). Le but à court terme serait qu'ils soient largement employés pour les futures générations de téléphones portables fonctionnant aux fréquences microondes. Comparés aux systèmes à ferrite réalisés en guide d'onde, ceux obtenus en technologie microstrip sont plus petits, plus légers, moins coûteux, mais surtout ils sont compatibles avec les systèmes intégrés.

Aux ondes millimétriques (40 à 300 GHz), il est nécessaire de réaliser des disques de ferrite massif très petits et très minces. En effet, nous savons que le diamètre du circulateur est égal à $\lambda_g/2$, où λ_g est la longueur d'onde guidée du signal HF utilisé.

Cela est vite apparu comme étant un frein technologique important. Par exemple, dans la bande Ka (26,5 à 40 GHz) le disque de ferrite à usiner doit posséder une épaisseur d'au plus 0,25 mm.

Pour éviter ce problème, l'une des solutions envisagée est de remplacer le disque par une sphère (figure I.21).

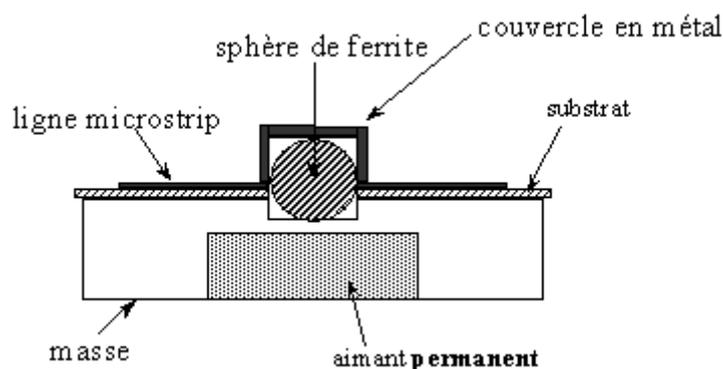


Figure I-21 : Vue en coupe d'un circulateur réalisé avec une sphère de ferrite

En effet, cette géométrie est plus facile à réaliser. De plus, une sphère de ferrite n'a pas besoin d'un champ magnétisant aussi important que celui nécessaire pour un disque. Les performances de ce type de circulateurs ont été évaluées. Les mesures ont été réalisées en

utilisant une sphère de ferrite de Nickel Zinc ayant un diamètre de 2 mm, une aimantation à saturation valant 0,5 Tesla et une constante diélectrique relative (ϵ_r) de 13,5. Dans ces conditions, la fréquence de circulation mesurée est de 37,5 GHz. De plus, il a été obtenu une isolation de 15 dB sur une plage valant 1 GHz autour de cette fréquence. D'autres essais ont été menés en faisant varier le diamètre de la sphère. Les résultats sont regroupés dans le **tableau I.6** suivant.

Diamètre de la sphère (mm)	2,4	2,5	2,6
Fréquence de circulation (GHz)	34,5	33,2	31,7

Tableau I-6 : Evolution de la fréquence de circulation en fonction du diamètre de la sphère

Jusqu'à présent l'isolation mesurée n'est pas suffisante pour la réalisation d'un circulateur. En effet, dans tous les cas, elle est à peine supérieure à 13 dB alors qu'idéalement elle devrait être proche de 30 dB.

En conclusion d'autres études doivent être menées pour améliorer les performances de tels dispositifs.

Une autre solution pour éliminer ce problème technologique est de remplacer le disque de ferrite massif par une couche. Le but, ici, est donc de réaliser des circuits intégrés monolithiques microondes sur GaAs. Le fait que les circuits soient réalisés sur GaAs entraîne une limitation au niveau de la température. En effet, celle-ci ne doit pas excéder 900°C, sous peine d'endommager le substrat si un recuit à haute température est nécessaire.

Nous allons présenter ici les résultats relatifs à la réalisation d'un circulateur intégré fonctionnant dans la bande X (de 8 à 12,5 GHz). Les couches de ferrite sont réalisées par laser pulsé sur substrat silicium. En effet, cette technique permet d'obtenir des couches possédant de bonnes propriétés magnétiques et diélectriques à des vitesses relativement importantes ($> 5 \mu\text{m/h}$). De plus, afin de minimiser les craquelures dues à la différence de coefficients de dilatation thermique qui existe entre le substrat silicium et la couche de ferrite, une sous-couche d'or d'épaisseur supérieure à 5 μm a été déposée. Le ferrite utilisé est un ferrite de YIG. Les couches ainsi obtenues sont ensuite recuites à 850°C pendant 20 secondes. Enfin, l'épaisseur déposée avoisine 80 μm .

Dans ces conditions les pertes d'insertion (S_{21}) minimales mesurées sur le circulateur sont de 3 dB et restent inférieures à 5 dB dans une gamme de fréquences allant de 6,2 à

11,5 GHz. Quant aux valeurs de l'isolation (S_{12}), elles sont supérieures à 11 dB. Les valeurs élevées des pertes sont dues à la rugosité des couches, aux craquelures, ainsi qu'à l'épaisseur déposée. En effet, en théorie, l'épaisseur qui permet d'obtenir les pertes minimales (<1dB) est de 100 μm .

Des simulations ont montré que les pertes diminuent lorsque l'épaisseur de la couche augmente. Cela est visible sur la **figure I.22** qui représente l'évolution des pertes d'insertion en fonction de l'épaisseur pour différents ferrites et à certaines fréquences. A titre d'exemple, pour le BaM, aux alentours de 70 GHz, une épaisseur comprise entre 50 et 100 μm est nécessaire afin de minimiser les pertes.

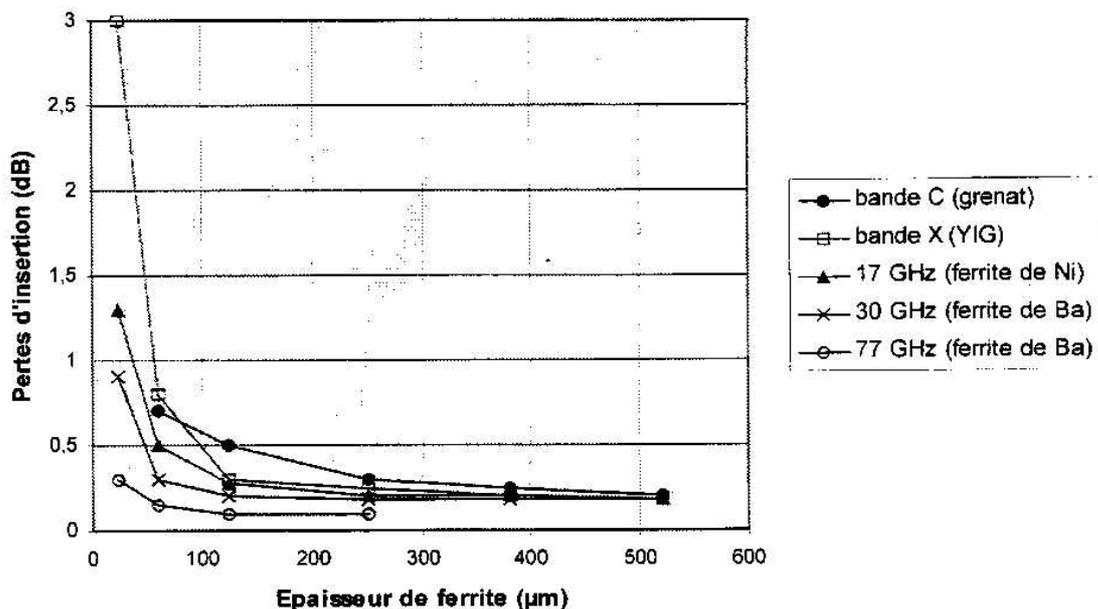


Figure I-22 : Evolution des pertes d'insertion en fonction de l'épaisseur des couches

I.4.2. Techniques de dépôt de ferrite de baryum

De nombreuses études portant sur l'optimisation des propriétés de couches de ferrite de baryum ont été réalisées. Deux applications importantes sont l'enregistrement magnéto-optique et la réalisation de circulateurs intégrés. Dans ce qui va suivre, nous allons présenter rapidement les avantages et les inconvénients des principales techniques de dépôt qui existent pour la réalisation de telles couches.

I.4.2.1. Dépôts par évaporation [22]

Cette technique est souvent utilisée à cause des vitesses d'évaporation importantes qu'elle permet. A titre d'exemple, durant leur étude, N. Matsushita et M. Naoe, ont réalisé des couches de ferrite de baryum à des vitesses de l'ordre de 25 $\mu\text{m}/\text{h}$. Ils ont alors étudié les

influences d'un recuit et de la température des substrats sur les propriétés magnétiques des couches ainsi obtenues. Après optimisation de ces deux paramètres ils ont retrouvé sur leurs dépôts les mêmes caractéristiques magnétiques que sur le massif.

I.4.2.2. Dépôts par laser pulsé [23] [24]

La technique de dépôt par laser pulsé a été largement utilisée pour la fabrication de couches minces d'oxydes, en particulier, pour la réalisation de couches minces de supraconducteurs (YBCO). Les principaux avantages de cette méthode résident dans le fait que les particules émises possèdent une énergie cinétique importante et qu'il se produit un transport congruent des espèces entre la cible et le substrat. Une des limitations est que les couches obtenues présentent des grains de grandes dimensions. Cela peut être pénalisant, notamment, dans le domaine de l'enregistrement magnéto-optique. Cependant, il est possible d'optimiser les différents paramètres durant le dépôt afin de réduire la taille de ces grains. De nombreuses études ont été menées sur la réalisation et la caractérisation de couches de ferrite de baryum obtenues par d'autres techniques (pulvérisation, épitaxie en phase liquide ...). Ce n'est que plus récemment que des études se sont focalisées sur l'obtention de couches de ferrite de baryum par laser pulsé.

I.4.2.3. Dépôts par pulvérisation [25] [26]

Certains travaux expérimentaux se sont attachés à comparer des dépôts réalisés par laser pulsé avec d'autres obtenus par pulvérisation. En théorie, ceux réalisés par pulvérisation radio fréquence et recuits sous vide doivent présenter un haut degré d'anisotropie magnétique et des grains de petite taille. Expérimentalement, dans les deux cas, les couches présentent quasiment les mêmes propriétés. Avant recuit, les dépôts sont amorphes avec de très petits cristaux d'oxyde de fer, donc ils ne présentent pas de comportement ferrimagnétique. Après avoir réalisé un recuit rapide sous vide ces mêmes couches ne sont toujours pas magnétiques mais sont cristallisées presque totalement suivant une phase FeO très orientée. Si le recuit est effectué sous air les dépôts obtenus par les deux techniques sont magnétiques. Cependant, le champ coercitif mesuré en perpendiculaire est plus important sur les couches fabriquées par pulvérisation.

I.5. Conclusion

Comme nous venons de le voir l'hexaferrite de baryum est l'un des principaux candidats pour la réalisation de dispositifs hyperfréquences. En effet, il possède une forte

anisotropie magnétocristalline, un champ coercitif important mais surtout il présente une grande résistivité et une grande perméabilité aux hautes fréquences.

Il existe de nombreuses techniques pour la réalisation de couches de ferrites. Chacune présente des avantages et des inconvénients. Durant notre étude nous avons utilisé l'évaporation au canon à électrons pour réaliser les couches. Nous avons choisi cette méthode à cause des vitesses de dépôt importantes qu'elle permet. En effet, nous devons faire des couches relativement épaisses (50 μm) pour réduire les pertes au niveau du circulateur. Cette technique possède cependant quelques inconvénients. Notamment, il est difficile de maintenir la stœchiométrie des couches.

Dans le chapitre suivant, nous allons présenter la technique de dépôt et les différents moyens de caractérisation que nous avons utilisés durant notre étude.

Bibliographie du chapitre I

[1] THOUREL Léo

Dispositifs à ferrites pour micro-ondes, Paris, éditions Masson et c^{ie}, 1969, pp 1 – 3.

[2] PIRCHER Georges

Introduction à l'étude du magnétisme, université de Paris, école supérieure d'électricité, 1966.

[3] BREUER Hans

Atlas de la physique, Librairie générale française, 1997, pp 250 – 251.

[4] DU TREMOLET DE LACHEISSERIE Etienne

Magnétisme, Tome I : Fondements, Collection Grenoble sciences, 1999, pp 92 – 94.

[5] RADVANYI Pierre

Les Curie : deux couples radioactifs, Les génies de la science, novembre 2001 – février 2002, pp 11.

[6] KITTEL Charles

Physique de l'état solide, éditions Dunod, 1983, pp 456 – 496.

[7] MORIAMEZ François

Effet de l'anisotropie magnéto-cristalline sur les mécanismes d'aimantation des couches minces magnétiques polycristallines, pp 5 – 34, Thèse de doctorat en Sciences Physiques, Université Bordeaux I, 1998, n° d'ordre 1986.

[8] FESSANT Alain

Etude de la dynamique d'aimantation dans les couches minces magnétiques amorphes, pp 8 – 28, Thèse de doctorat en Sciences et Techniques, Université de Bretagne occidentale, 1991.

[9] PERON Ronan

Etude théorique et expérimentale de circulateurs ultra miniatures en technologie uniplanaire, pp 6 – 7, Thèse de doctorat en électronique, Université de Bretagne occidentale, 1998, n° d'ordre 568.

[10] WANE Ibrahima

Etude, réalisation et caractérisation de couches de ferrites destinées à des dispositifs intégrés microondes non réciproques, pp 36 – 38, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, juillet 2000, n° d'ordre 30.2000.

[11] LABEYRIE Michele

Contribution à l'étude des hexaferrites pour ondes millimétriques, pp 4 – 10, Thèse de doctorat en science, Université de Paris Sud, novembre 1987.

[12] COMBES Paul F.

Micro-ondes : Circuits passifs, propagation, antennes, Paris, éditions Dunod, 1997, pp 70 – 73.

[13] NICOLAS Jean, BERNARD Désormière

Ferrites pour hyperfréquences, Techniques de l'ingénieur, E-248, pp 1 – 15.

[14] PIRCHER Georges

Ferrites – Interaction des matériaux ferrimagnétiques avec les microondes – Applications, université de Paris, école supérieure d'électricité, 1966.

[15] PARDAVI – HORVATH M.

Microwave applications of soft ferrites, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, 2000, 215 – 216, pp 171 – 183.

[16] KREISEL Jens

Etude d'hexaferrites de baryum substitués $\text{BaFe}_{12-2x}\text{A}_x\text{Co}_x\text{O}_{19}$ (A = Ir, Ti) – Synthèse de monocristaux, structures cristallines et magnétiques, spectroscopie Raman, pp 6 – 14, Thèse de doctorat en science et génie des matériaux, Institut national polytechnique de Grenoble, mars 1992.

[17] BRANDO Eric

Synthèse et étude cristallographique, magnétique et électromagnétique de nouveaux hexaferrites substitués de type M BaFe_{12-2x}A_xMe_xO₁₉ (A = Ru, Ir, Me = Co, Zn) destinés à l'absorption des ondes radar, pp 3 – 30, Thèse de doctorat en science et génie des matériaux, Institut national polytechnique de Grenoble, mars 1992.

[18] DU TREMOLET DE LACHEISSERIE Etienne

Magnétisme, Tome II : Matériaux et applications, collection Grenoble Sciences, 1999, pp 58 – 61.

[19] YUNG E. K. N., DOU W. B., ZHANG D. G., CHEN R. S.

Microstrip circulator made of a magnetized ferrite sphere, Microwave and Optical Technology Letters, janvier 2001, 28, n°2, pp 130 – 131.

[20] ADAM J. D., BUHAY H., DANIEL M. R., DRIVER M. C., ELDRIDGE G. W., HANES M. H., MESSHAM R. L.

Monolithic integration of an X-band circulator with GaAs MMICs, IEEE MTT-S Digest, 1995, pp 97 – 98.

[21] WEBB D. C.

Design and fabrication of low-cost ferrite circulator, Naval Research Laboratory, Washington DC.

[22] MATSUSHITA N., NAOE M.

High coercivity of barium ferrite (BaM) films deposited by arc discharge evaporation, IEEE transactions on magnetics, novembre 1993, vol. 29, N°6, pp 4089 – 4091.

[23] ZHANG X. Y., ONG C. K., XU S. Y., YANG Z.

Barium ferrite films with in-plane orientation grown on silicon by pulsed laser deposition, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 1998, 190, pp 171 – 175.

[24] HUANG F., WOLFGANG J. J., LE T. M., LAMBETH D. N., STANCIL D. D.

Oxygen pressure dependence of laser deposited barium ferrite films on LLC(111), IEEE Transaction on Magnetism, novembre 1995, Vol. 31, N°6, pp 3826 – 3828.

[25] GAGO-SANDOVAL P. A., CAREY R., NEWMAN D. M., THOMAS B. W. J.

A comparative study of processes for the production of structured barium ferrite films, IEEE Transaction on Magnetics, novembre 1994, Vol. 30, N°6, pp 4824 – 4826.

[26] BAYARD B., CHATELON J. P., LE BERRE M., JOISTEN H., ROUSSEAU J. J., BARBIER

The effects of deposition and annealing conditions on crystallographic properties of sputtered barium ferrite thick films, Sensors and Actuators A: Physical, 2002, Vol. 99, pp 207-212.

CHAPITRE II :
**Dispositif expérimental de dépôt et moyens de
caractérisation des couches**

II.1. Dispositif expérimental de dépôt [1]

Le schéma général du dispositif expérimental est représenté sur la **figure II.1** (page suivante).

II.1.1. Enceinte à vide

L'enceinte à vide est constituée d'un cylindre en acier inoxydable de 455 mm de diamètre intérieur et de 620 mm de hauteur. Ce cylindre est scindé en deux parties par une platine intermédiaire où est placé le creuset en cuivre dans lequel se trouve le lingot de ferrite. Les dépôts sont réalisés dans la partie supérieure, la partie inférieure étant réservée au fonctionnement du canon à électrons. Les deux parties de l'enceinte sont séparées car la pression nécessaire à la réalisation d'un dépôt est supérieure à la pression limite de fonctionnement du canon à électrons (10^{-2} Pa). Ces deux parties peuvent être mises en communication à l'aide d'une soupape intermédiaire. Lorsque cette dernière est fermée la communication entre les deux niveaux se fait uniquement par l'orifice de passage du faisceau électronique.

Un cache rotatif permet de recouvrir entièrement le creuset contenant le ferrite afin d'éviter un dépôt prématuré sur les substrats lors de la mise en phase vapeur du lingot.

Enfin, sur la paroi de l'enceinte sont disposées deux entrées de gaz : l'une réservée à l'oxygène et l'autre à l'argon.

II.1.2. Système de pompage

Les quantités de gaz à pomper étant relativement importantes, le groupe de pompage doit être puissant. Il est nécessaire que la pression finale atteinte lors de la phase de pompage soit faible ($\approx 8.10^{-4}$ Pa) pour que les conditions de dépôt soient optimales. En effet, il se produit un phénomène de dégazage des parois de l'enceinte dû à leur élévation en température qui a lieu lors des chauffages de la source d'évaporation et du chauffe-substrats.

Le pompage de la partie supérieure de l'enceinte est assuré par une pompe à diffusion d'huile ALCATEL CRYSTAL 162 (débit : 700 l/s à 0,04 Pa ; pression limite : 3.10^{-6} Pa) couplée à une pompe primaire à palettes EDWARDS E2M18 (débit : 20,5 m³/h).

Quant à la partie inférieure, elle possède un groupe de pompage constitué d'une pompe à diffusion d'huile ALCATEL CRYSTAL 200 (débit : 1200 l/s à 0,04 Pa ; pression limite : 5.10^{-7} Pa) couplée à une pompe primaire à palettes ALCATEL 2033 (débit : 35 m³/h).

Le système de la partie inférieure étant plus puissant que celui de la partie supérieure, il est nécessaire d'ouvrir la soupape de communication entre ces deux niveaux afin d'abaisser la durée totale du pompage.

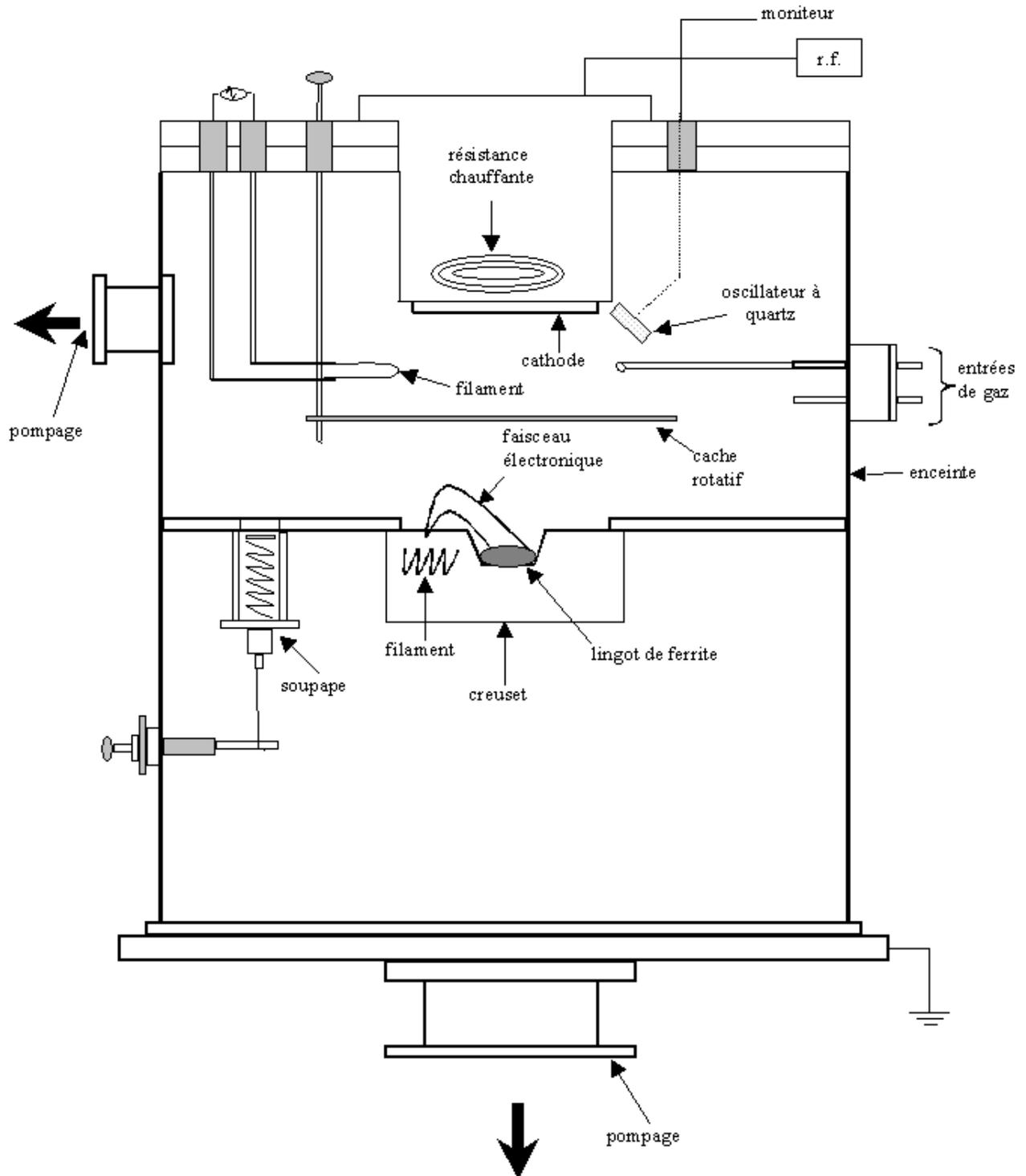


Figure II-1 : Dispositif expérimental de dépôt

II.1.3. Appareils de mesure des pressions et des débits

La mesure de la pression dans le bas de l'enceinte est réalisée grâce à un manomètre Penning ALCATEL CF2P (domaine de pression : $1 - 10^{-5}$ Pa), alors que la partie supérieure est connectée à une jauge Baratron (domaine de pression : $133 - 1,33 \cdot 10^{-2}$ Pa) associée à un lecteur de pression MKS 250B. Cette jauge permet aussi, lorsque la soupape de communication entre les deux niveaux est ouverte, de savoir à quel moment isoler les pompes primaires et passer en pompage secondaire (0,4 Pa).

D'autre part, l'oxygène et l'argon sont introduits à l'aide de deux vannes pilotées par un débitmètre MKS 247 C quatre voies. La consommation d'oxygène liée aux réactions et aux dissociations de ce gaz est compensée par une variation du débit, ce qui permet de conserver une pression constante durant la phase de dépôt.

II.1.4. Balance à quartz

Afin de pouvoir contrôler le déroulement d'une séquence d'évaporation, nous mesurons en temps réel l'épaisseur et la vitesse de croissance du dépôt grâce à une microbalance à quartz INTELLEMETRICS IL820. Le principe consiste à mesurer la dérive de la fréquence de résonance d'un cristal de quartz lorsque celui-ci est soumis à une surcharge de masse.

La tête de mesure est constituée d'un disque de quartz d'environ 10 mm de diamètre et 0,3 mm d'épaisseur ce qui correspond à une fréquence propre de résonance avoisinant les 6 MHz. Ce disque est muni de contacts électriques métallisés et est relié à un oscillateur électronique placé à l'extérieur de la chambre d'évaporation. La tête de mesure est placée à l'intérieur de celle-ci au voisinage des substrats et orientée comme eux vers la source d'évaporation. Au cours du dépôt, la variation de masse que subit le quartz induit une variation de fréquence de l'oscillateur qui est mesurée par comparaison avec une fréquence de référence. Cette différence de fréquence est ensuite convertie en épaisseur par un calculateur en fonction des paramètres fournis par l'utilisateur. Ces paramètres sont en particulier la densité du matériau déposé et un coefficient correcteur dit « facteur de forme ». Ce facteur correspond au rapport entre l'épaisseur déposée sur les substrats et celle déposée sur le disque de quartz.

Cette technique permet d'obtenir des résultats précis mais requiert un étalonnage préalable. En effet, le facteur de forme et la densité ne peuvent pas être connus a priori. La densité d'un matériau obtenu par évaporation diffère généralement de celle d'un matériau massif. Il est donc nécessaire de calibrer l'appareil en procédant à des mesures d'épaisseurs sur

des dépôts tests. Cette calibration n'est évidemment valable que pour les conditions particulières dans lesquelles elle s'est déroulée. Il est donc très important que ces conditions soient reproduites lors des évaporations ultérieures : pression résiduelle ; positions relatives de la tête de mesure, du substrat et de la source d'évaporation ; température du creuset et des substrats ; vitesse de croissance de la couche ; etc.

II.1.5. Canon à électrons

Le bloc canon à électrons, qui est placé dans la partie inférieure de l'enceinte, est représenté sur la **figure II.2** ci-dessous.

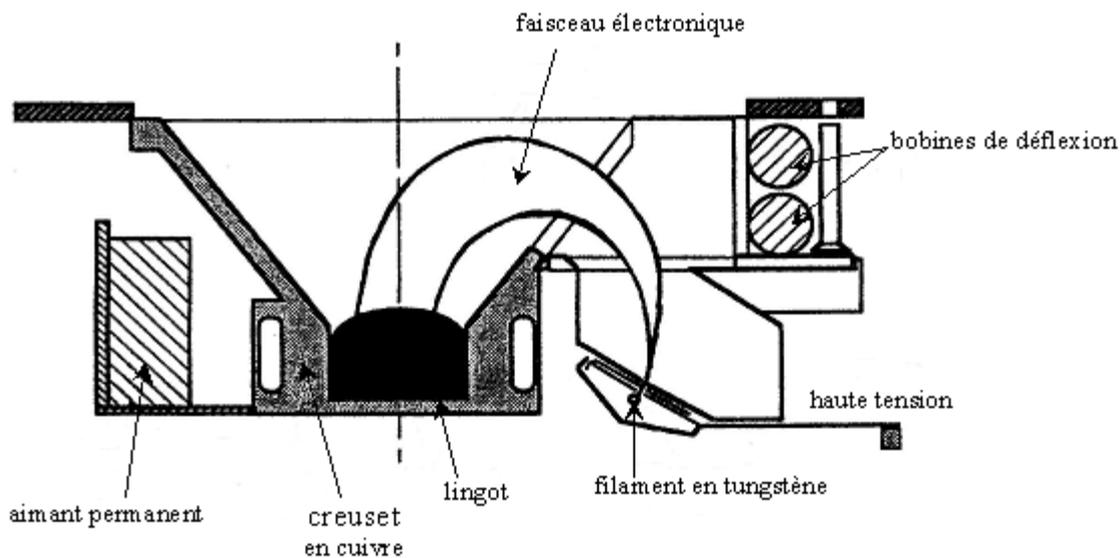


Figure II-2 : Bloc canon à électrons

Le bloc canon est relié à un générateur de puissance ELECTROTECH. Les électrons émis par le filament sont accélérés par une différence de potentiel (0 à 10 kV) délivrée par ce générateur. L'intensité du courant d'émission du filament peut varier entre 0 et 1,5 A ce qui correspond donc à une variation de puissance du faisceau électronique comprise entre 0 et 15 kW. Le faisceau émis par le filament décrit une trajectoire circulaire sous l'action de l'induction magnétique créée par l'aimant permanent placé près du creuset. De plus, sous l'action des bobines de déflexion, le faisceau balaye latéralement et longitudinalement le lingot, ainsi la zone d'impact peut être déplacée à la surface de ce dernier. On peut donc déplacer le faisceau d'électrons lors de la mise en phase vapeur du lingot ou le focaliser au centre du lingot lors de la phase de dépôt.

Enfin, il faut noter que le creuset est refroidi grâce à une circulation d'eau.

II.1.6. Porte-substrats utilisés

II.1.6.1. Cathode porte-substrats

Dans un premier temps, nous avons utilisé la cathode porte-substrats dont le schéma est représenté sur la **figure II.3**.

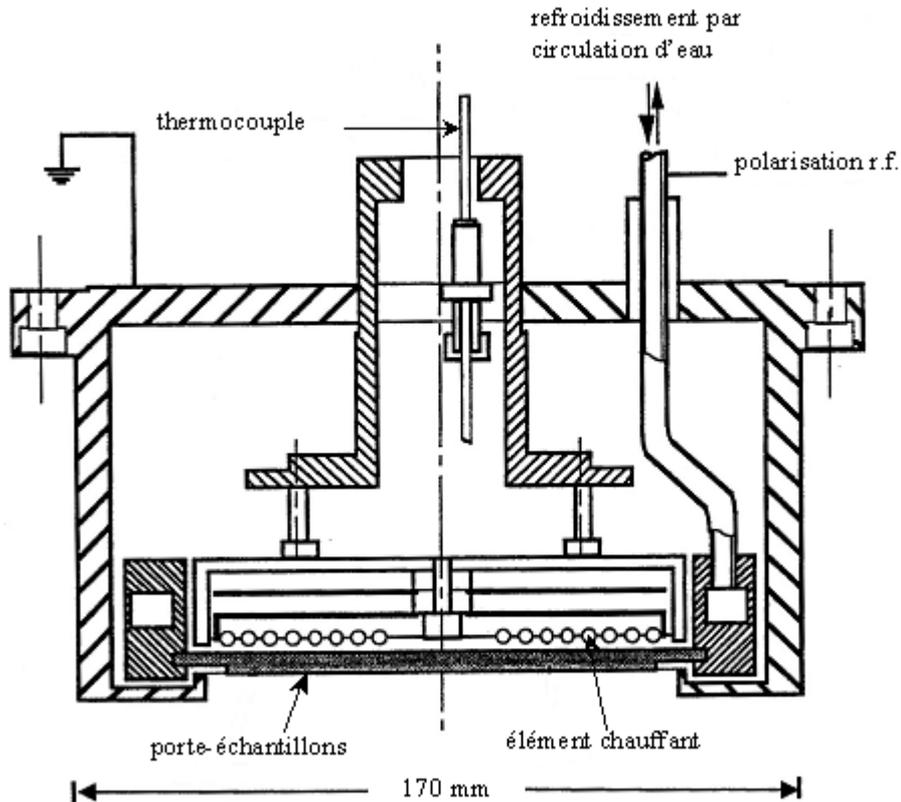


Figure II-3 : Cathode porte-substrats

Le diamètre extérieur de la cathode est de 170 mm. Le porte-échantillon, en acier inoxydable, sur lequel sont placés les différents substrats, a un diamètre de 100 mm. Il est isolé par rapport au cache externe de la cathode qui est relié à la masse.

De plus, un système de chauffage par rayonnement permet de porter les substrats jusqu'à une température de 700°C. Celle-ci est mesurée grâce à un thermocouple chromel-alumel placé au-dessus de l'élément chauffant. Un système de régulation VULCANIC (type 30760) assure la régulation en température des substrats.

Cette cathode porte-substrats peut aussi être polarisée à l'aide d'un générateur radiofréquence SAIREM fonctionnant à la fréquence de 13,56 MHz. Ce générateur sert à amorcer une décharge électrique entre la cathode et le reste de l'enceinte relié à la masse. La puissance maximale qu'il peut délivrer est de 1200 W pour une charge adaptée de 50 Ω. Cette

puissance est appliquée à la cathode par l'intermédiaire d'un adaptateur d'impédance afin de minimiser la puissance réfléchie.

Durant notre étude, nous avons utilisé une décharge électrique uniquement pour réaliser un nettoyage des substrats avant la phase de dépôt.

Après introduction dans l'enceinte d'un gaz neutre (argon) à pression suffisante, une décharge électrique est créée entre la cathode (sur laquelle sont fixés les substrats) et le reste de l'enceinte mis à la masse. Pour améliorer la réactivité des espèces mises en jeu, nous chauffons un filament en tungstène par effet joule. Ce filament émet donc des électrons conduisant à l'ionisation des atomes du gaz support de la décharge.

II.1.6.2. Porte-substrats avec solénoïde

Comme nous le verrons dans le chapitre suivant, ce montage est utilisé afin d'essayer d'orienter les couches selon l'axe c perpendiculaire au plan des substrats.

Le schéma général du porte-substrats est représenté sur la **figure II.4** ci-dessous.

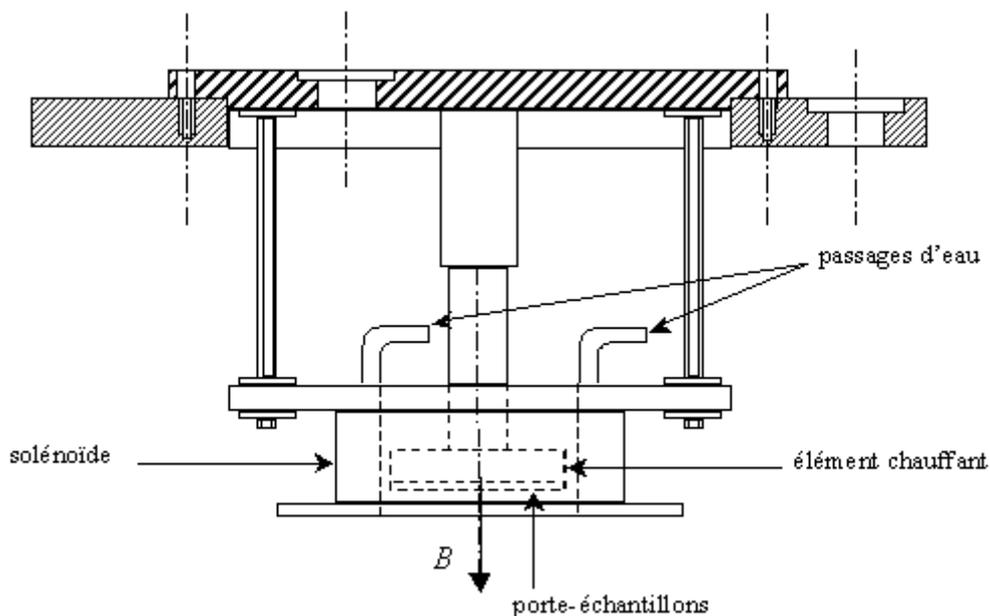


Figure II-4 : Porte-substrats avec solénoïde

Dans ce montage, les substrats peuvent être chauffés par conduction grâce à un élément chauffant de type SEI 20/50. Ces éléments chauffants à gaine alliage INCONEL sont utilisables depuis les températures cryogéniques jusqu'à plus de 1000°C. La température est lue à l'aide d'un thermocouple de type K (chromel-alumel) placé derrière les substrats. Le porte-échantillons et le solénoïde sont refroidis grâce à une circulation d'eau. La position du

bloc élément chauffant / porte-échantillons peut être réglée en hauteur à l'intérieur du solénoïde.

Ce solénoïde est constitué de 1500 spires. Il a une hauteur de 60 mm, une épaisseur de 36 mm et un rayon interne égal à 44,5 mm. Le fil utilisé pour sa réalisation possède un diamètre de 1,12 mm, soit une section voisine de 1 mm^2 . L'intensité maximale du courant qui peut parcourir ce solénoïde est liée au diamètre des fils. Pour le cuivre, cette intensité maximale est celle recommandée pour les circuits domestiques, soit 5 A/mm^2 . Le fil peut donc supporter théoriquement 4,75 A.

Un étalonnage préalable du solénoïde, au moyen d'un gaussmètre, a permis de tracer l'évolution de l'induction magnétique (B) créée au niveau des substrats en fonction de l'intensité du courant appliquée (I) (**figure II.5**).

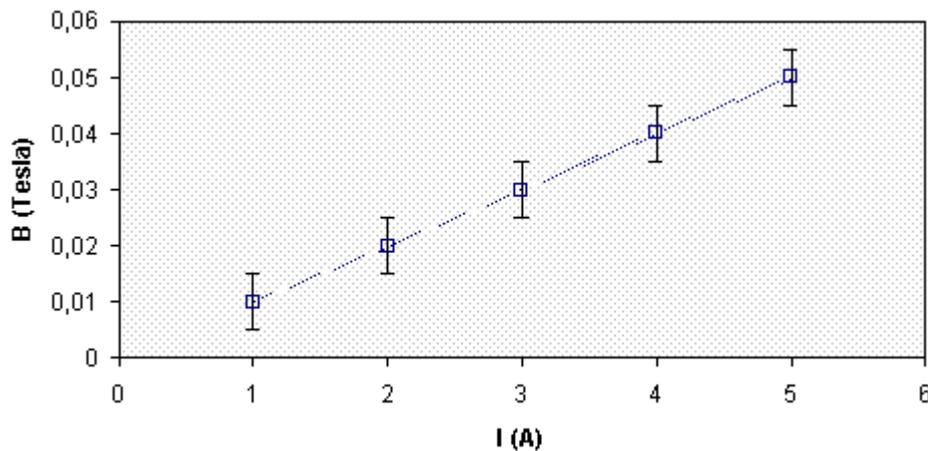


Figure II-5 : Tracé de l'induction magnétique créée au niveau des substrats en fonction de l'intensité du courant

D'après ce graphique l'induction varie entre 0,01 et 0,05 Tesla pour un courant compris entre 1 et 5 A. Ces valeurs peuvent être considérées comme importantes pour les domaines magnétiques des couches de $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ [2].

Enfin, comme on peut le voir sur la **figure II.4**, cette induction est normale au porte-substrats.

II.2. Différentes phases de réalisation d'un dépôt

II.2.1. Préparation du lingot de ferrite

Des pastilles cylindriques de ferrite sont réparties sur le fond du creuset. Lorsque la pression dans la partie inférieure de l'enceinte atteint approximativement la valeur de 10^{-4} Pa ,

ces pastilles sont fondues progressivement en faisant varier la puissance du canon entre 0 et 2,5 kW. Durant cette phase, il est nécessaire de positionner le cache rotatif au dessus du creuset afin d'éviter tout dépôt sur les substrats. Au final, le lingot doit posséder une surface homogène et légèrement convexe afin d'éviter les projections pendant la phase de dépôt.

Un lingot neuf est réalisé avant chaque dépôt afin de se placer dans les mêmes conditions d'évaporation d'un dépôt à l'autre.

II.2.2. Nettoyage des substrats

II.2.2.1. Nettoyage ex situ

Le fait de nettoyer les substrats avant chaque dépôt permet d'améliorer l'adhérence entre la couche de ferrite et son support. Cependant, l'obtention d'une bonne adhérence ne dépend pas uniquement de cette étape. En effet, d'autres facteurs entrent en jeu, comme les contraintes thermiques, mécaniques ou chimiques.

La phase du nettoyage ex situ a pour but d'éliminer toutes les particules solides (grains de poussière ou d'abrasif) se trouvant en surface. Pour cela il est nécessaire d'utiliser un solvant (alcool) qui dissout les contaminants sans attaquer le substrat.

Mais un tel nettoyage n'est pas suffisant pour obtenir une surface correcte.

II.2.2.2. Nettoyage in situ

Les impuretés de surface restantes sont éliminées grâce à un nettoyage in situ par amorçage d'une décharge électrique entre la cathode et l'enceinte mise à la masse. Le principe a été décrit au paragraphe II.1.6.1.

Avant chaque dépôt le nettoyage a été réalisé dans les conditions expérimentales suivantes:

durée : $t_n = 5 \text{ min}$

pression d'argon : $P_{Ar} = 0,33 \text{ Pa}$

débit d'argon : $D_{Ar} = 15 \text{ sccm} (25,22 \cdot 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3/\text{s})$

puissance rf incidente : $P_i = 200 \text{ W}$

puissance rf réfléchie : $P_r = 0 \text{ W}$

tension cathode : au début : $V_c = 0,66 \text{ kV}$

 à la fin : $V_c = 0,86 \text{ kV}$.

II.2.3. Phase de dépôt

A la suite de cette phase, le lingot est de nouveau progressivement fondu. On introduit de l'oxygène à la place de l'argon et on ajuste les différents paramètres de dépôt (puissance canon, pression et débit d'oxygène, vitesse de croissance balance ...). Le cache rotatif recouvrant le lingot en fusion est alors ôté et le dépôt proprement dit peut commencer. Les principales lois concernant l'évaporation sont reportées en annexe 1.

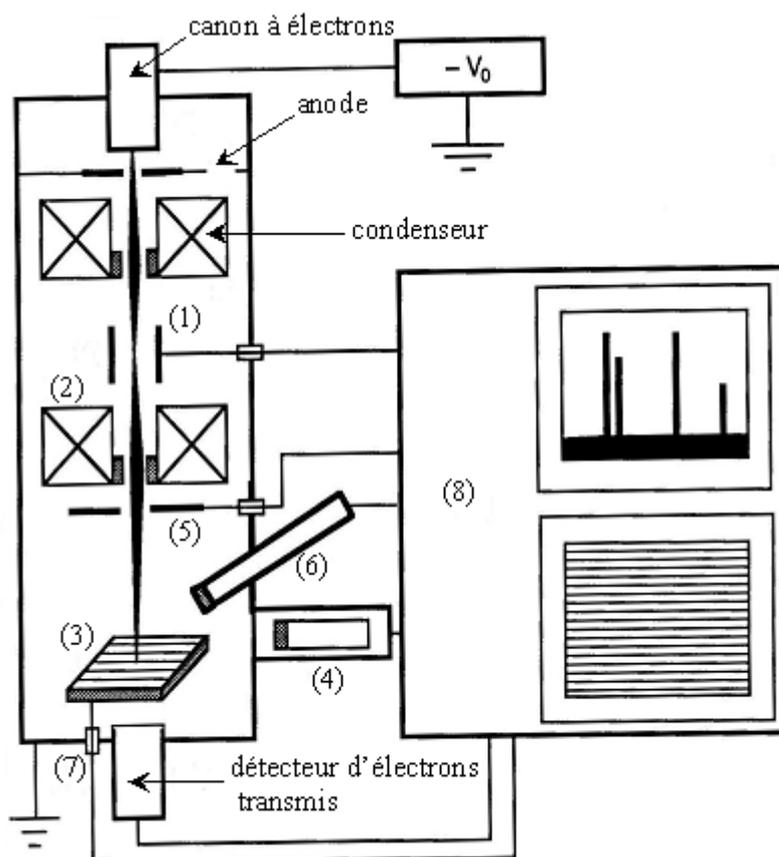
II.3. Dispositifs de caractérisation des couches

II.3.1. Le microscope électronique à balayage (M.E.B.) [3]

Le microscope que nous utilisons est un Philips XL20 équipé d'un système d'analyse de composition par dispersion en énergie des rayons X (E.D.X).

Le microscope électronique à balayage n'est pas un microscope conventionnel, dans le sens optique du terme, avec formation d'une image stigmatique par une lentille objectif. Sa technique de formation d'image est proche de celle utilisée en télévision, avec formation d'une image séquentielle. Dans un M.E.B., le faisceau d'électrons balaie l'échantillon.

Une représentation schématique du M.E.B. est donnée sur la **figure II.6**.



- (1) système de déflexion-balayage
- (2) objectif
- (3) préparation sur porte-objet goniométrique
- (4) détecteur d'électrons à scintillateur
- (5) détecteur d'électrons rétrodiffusés à semi-conducteur
- (6) spectromètre de rayons X à dispersion d'énergie Si(Li)
- (7) mesure du courant absorbé
- (8) électronique de commande, d'exploitation et de visualisation des images et spectres

Figure II-6 : Représentation schématique du M.E.B.

Le canon à électrons permet, à l'aide d'un filament porté à haute température, d'obtenir un faisceau d'électrons énergétiques. Ce faisceau passe à travers un système de lentilles électromagnétiques (condenseurs pour réduire le diamètre du faisceau et objectif pour focaliser le faisceau) et tombe sur l'échantillon avec un diamètre et une énergie contrôlés. Les signaux correspondants à la détection des rayonnements émis par le matériau sont alors synchronisés avec le balayage, faisant décrire la surface au faisceau d'électrons, ce qui permet la reconstitution de l'image sur un écran cathodique.

II.3.1.1. Interaction du faisceau électronique avec l'échantillon

L'interaction entre le faisceau d'électrons et la surface de l'échantillon est représentée de façon schématique sur la **figure II.7**.

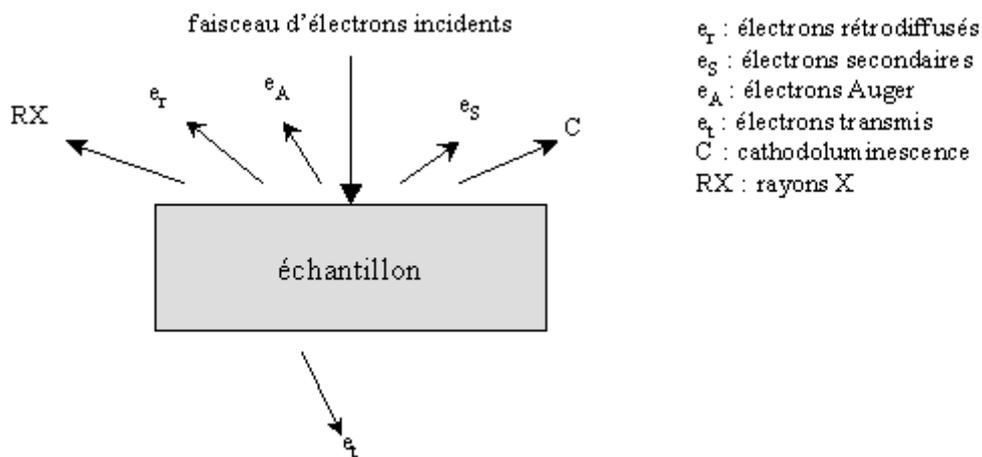


Figure II-7 : Représentation schématique

de l'interaction entre un faisceau d'électrons et la surface d'un échantillon

En pénétrant dans l'échantillon, le fin pinceau d'électrons diffuse peu et constitue un volume d'interaction dont la forme dépend principalement de la tension d'accélération et du numéro atomique de l'échantillon (**figure II.8**). Dans ce volume, les électrons et les rayonnements électromagnétiques produits sont utilisés pour former des images ou pour effectuer des analyses physico-chimiques.

Le premier cas correspond au fonctionnement normal du microscope électronique à balayage. On utilise, pour obtenir l'image topographique de l'échantillon (**figure II.9**), soit des électrons secondaires émis, soit des électrons rétrodiffusés.

Le deuxième cas correspond à une autre application du M.E.B. qui fait appel à l'analyse spectrométrique par rayons X avec dispersion, soit en fonction de la longueur d'onde, soit en fonction de l'énergie. Le microscope que nous utilisons est équipé d'un

.....

système d'analyse E.D.X. L'analyse par dispersion en énergie des rayons X permet d'identifier les éléments constituant l'échantillon. C'est une méthode quantitative. La répartition en surface des éléments dans la couche peut également être déterminée.

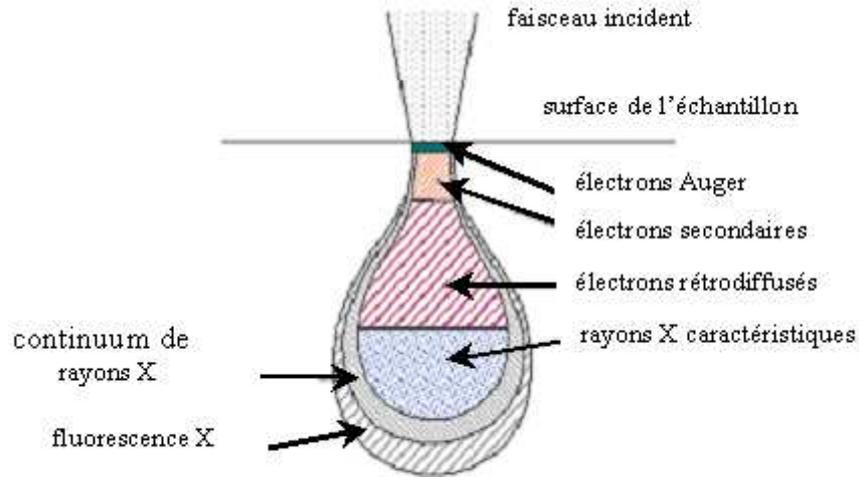


Figure II-8 : Poire de diffusion

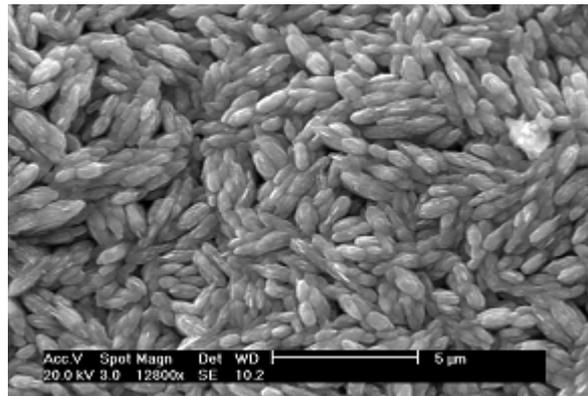


Figure II-9 : Image topographique d'un dépôt observé au M.E.B.

II.3.1.1.1 Emission d'électrons secondaires

Ils proviennent de l'arrachement d'électrons par ionisation. Sous l'effet du bombardement, certains électrons de faible énergie (< 50 eV) sont éjectés de l'échantillon. Comme seuls les électrons secondaires produits près de la surface sont détectés, ils forment des images avec une haute résolution (3-5 nm). Le contraste de l'image est surtout donné par le relief de l'échantillon mais on peut également observer un contraste chimique qui est lié au facteur de diffusion de l'atome donc au numéro atomique. En effet, plus le numéro atomique croît, plus le nombre d'électrons secondaires augmente, et plus la zone sera brillante.

II.3.1.1.2 Emission d'électrons rétrodiffusés

Ils sont dus aux électrons accélérés dans la colonne du microscope pénétrant dans l'échantillon. Un parcours plus ou moins important dans la matière leur fait perdre une fraction de leur énergie. La trajectoire suivie est aléatoire et ils peuvent revenir vers la surface. Ils sont alors détectés après leur sortie de l'échantillon. Du fait de leur plus grande énergie, les électrons rétrodiffusés peuvent provenir d'une profondeur plus importante et la résolution de l'image sera moins bonne qu'avec les électrons secondaires (6-10 nm). Suivant le type de détecteur utilisé, les électrons rétrodiffusés fournissent une image topographique (contraste fonction du relief) ou une image de composition (contraste fonction du numéro atomique).

II.3.1.1.3 Emission des rayons X

Suite à l'excitation des atomes présents dans le matériau par interaction avec les électrons incidents, des photons X sont émis (processus de désexcitation). L'analyse chimique par E.D.X consiste en une détection de ces photons en utilisant un détecteur solide Si-Li. L'énergie de ces photons X est caractéristique des atomes dont ils sont issus, d'où la possibilité de réaliser des analyses élémentaires. De plus, le signal sous chaque pic de l'élément A étant proportionnel au nombre d'atomes de type A, cette analyse peut être quantitative.

La **figure II.10** donne un exemple de spectre E.D.X obtenu sur une pastille de ferrite de baryum.

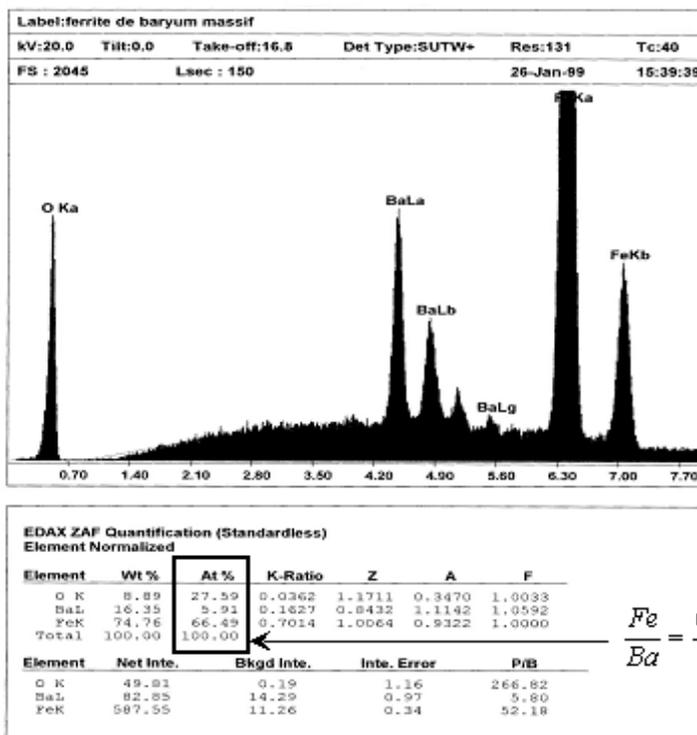


Figure II-10 : Exemple de spectre E.D.X.

II.3.1.2. Préparation des échantillons

L'échantillon, placé dans la chambre du microscope, reçoit un flux d'électrons très important. Si les électrons ne sont pas écoulés, ils donnent lieu à des phénomènes de charge induisant des déplacements d'images ou des zébrures sur l'image dus à des décharges soudaines de la surface. Si la surface est conductrice, les charges électriques sont écoulées par l'intermédiaire du porte-échantillon. L'observation d'échantillons électriquement isolants se fait grâce à une métallisation de surface que l'on réalise dans un évaporateur à vide (dépôt d'une couche d'or-palladium pour l'observation de surface ou de carbone pour l'analyse de composition) d'épaisseur environ 22 nm.

II.3.2. Analyse structurale ⁽¹⁾

II.3.2.1. Montage de type Bragg-Brentano

La structure cristallographique des couches est obtenue par diffraction des rayons X (XRD) au moyen d'un diffractomètre SIEMENS D5000. Il s'agit d'un montage de type Bragg-Brentano θ - 2θ dont le schéma de principe est donné sur la **figure II.11** suivante.

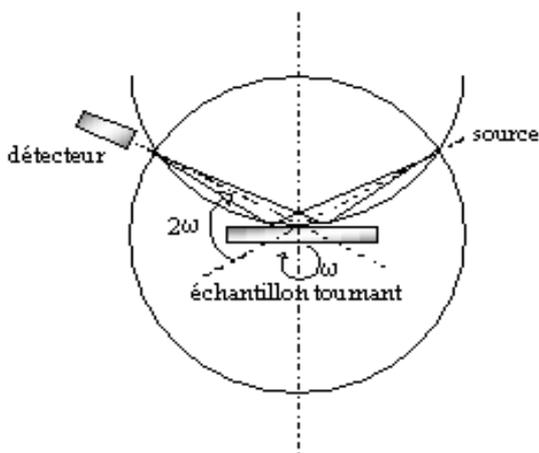


Figure II-11 : Montage Bragg Brentano θ - 2θ

Dans ce montage la source est fixe, l'échantillon tourne sur lui-même avec une vitesse ω tandis que le détecteur se déplace à la vitesse 2ω sur un cercle, centré sur l'échantillon, appelé cercle goniométrique. Le détecteur, placé en 2θ , enregistre à tout instant les raies de diffraction correspondant à l'angle θ . Ici les plans qui diffractent sont ceux parallèles à la surface du dépôt.

⁽¹⁾ GUINEBRETIERE René, **Radiocristallographie sur échantillons polycristallins**, cours de DEA, Ecole Nationale Supérieure de Céramiques Industrielles (E.N.S.C.I.) de Limoges, 2002, pp 62-69.

Les plans sont repérés par les indices de Miller (hkl). A chaque plan correspond une distance inter-réticulaire vérifiant la condition de Bragg suivante :

$$2 d_{hkl} \sin\theta = n \lambda$$

avec : θ : angle de diffraction,

λ : longueur d'onde du faisceau X ($\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$),

n : nombre entier,

d_{hkl} : espacement des plans réticulaires appartenant à une même famille.

L'identification de la phase, ou des phases cristallines présentes dans le matériau, se fait en comparant les angles 2θ et les intensité relatives obtenus pour chaque raie à partir du diagramme expérimental, avec un fichier de référence. Un premier fichier a été établi par l'American Society for Testing Materials (ASTM) dès 1942, plusieurs modifications ont ensuite eu lieu. En 1969, le Joint Committee on Powder Diffraction Standards (JCPDS) fut chargé de la mise à jour continue de ce fichier. Depuis 1977, ce comité a pris le nom d'International Center for Diffraction Data (ICDD).

Ainsi, à chaque phase connue on associe une fiche qui constitue une sorte de carte d'identité de cette phase. A titre d'exemple la fiche JCPDS de l'hexaferrite de baryum est donnée sur la **figure II.12**.

Pattern : 39-1433		Radiation : 1.540600		Quality : High	
Ba Fe ₁₂ O ₁₉		(1) → 2θ	h	k	l
Barium Iron Oxide		17.766	7	1	0
		18.973	14	1	0
		22.973	18	0	0
		30.296	55	1	1
		30.800	32	0	0
		31.262	9	1	1
		32.149	100	1	0
		34.090	98	1	1
		35.121	11	2	0
		35.572	10	1	0
		37.047	60	2	0
		38.746	1	0	0
		39.086	4	1	0
		40.279	29	2	0
		42.388	18	2	0
		42.759	3	1	0
		46.542	9	1	0
		46.952	1	0	0
		49.093	6	1	1
		50.253	10	2	0
		53.284	3	2	0
		53.841	8	3	0
		54.443	5	3	0
		55.006	53	2	1
		55.361	8	0	0
		56.295	30	3	0
		56.537	56	2	0
		58.888	10	1	1
		57.310	7	2	1
		59.455	3	1	0
		59.775	2	2	1
		59.962	3	2	0
		62.550	2	2	1
		62.680	6	1	0
		63.024	63	2	2
		63.545	5	2	0
		64.122	1	0	0
		65.505	9	2	1
		67.292	13	2	0
		68.027	4	2	2
		71.791	9	2	2
		72.006	4	2	1
		72.522	15	3	1
		74.158	3	3	0
		75.446	6	4	0
		76.060	4	1	0
		77.381	3	3	0
		78.937	3	4	0
		79.289	3	2	1
		79.857	3	2	0
		81.386	7	1	1
		82.233	6	3	2

Lattice : Hexagonal S.G. : P63/mmc (194) a = 5.89450 c = 23.21500 Z = 2	Mol. weight = 1111.48 Volume [CD] = 698.54 Dx = 5.284
---	---

SAMPLE PREPARATION : Stoichiometric amounts of Ba C O3 and Fe2 O3 were heated at 850 C overnight and at 1400 C overnight and for 5 more hours with intermittent regrinding.
 COLOR : Black
 STRUCTURE : The structure was determined by Townes et al. (1).
 TEMP. OF DATA COLLECTION : The approximate temperature of data collection was 25 C.
 ADDITIONAL PATTERN : See 27-1029 and 43-0002.
 DATA COLLECTION FLAG : Ambient.

CAS: 12047-11-9
 *ICDD Grant-In-Aid, (1988) primary reference :

Figure II-12 :
Fiche JCPDS
de la phase
BaFe₁₂O₁₉

Cette fiche comporte pour chaque raie caractéristique, les valeurs des angles 2θ (1), des intensités intégrées (2) et des indices de Miller (3).

Ce type de montage est celui qui est le plus souvent rencontré. Cependant, il présente un inconvénient important. En effet, dans un tel montage l'échantillon est en rotation et lorsqu'il est pulvérulent, il peut tomber quand l'angle de rotation devient trop important.

Durant nos différentes études, les diagrammes de diffraction ont été réalisés sur une plage angulaire 2θ variant entre 12 et 80° avec un pas de $0,02^\circ$ car c'est dans ce domaine angulaire que sont situés les pics caractéristiques du ferrite massif.

II.3.2.2. Chambres à focalisation : chambre de Guinier

Dans un premier temps nous allons décrire le principe de fonctionnement des chambres à focalisation de Seemann et Bohlin. H. Seemann et H. Bohlin ont imaginé un montage de diffraction des rayons X pour des échantillons polycristallins avec lequel, pour une famille de plans donnée, les faisceaux diffractés par les différents cristaux en position de Bragg sont détectés là où ils convergent (**figure II.13**).

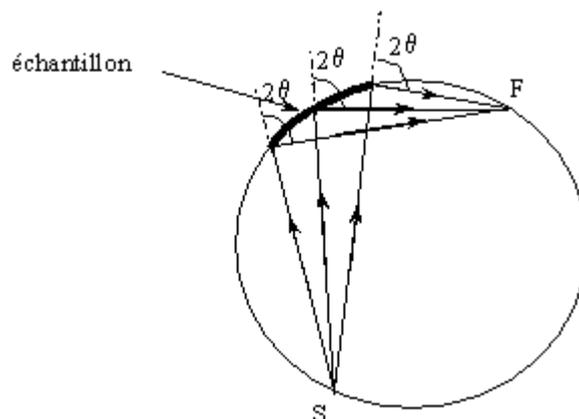


Figure II-13 : Schéma de principe d'une chambre de Seemann-Bohlin

Les rayons X divergents issus de la source, placée en S, viennent frapper l'échantillon. Si l'on considère une famille de plans donnée correspondant à un certain angle de diffraction, tous les faisceaux diffractés par les grains cristallins ayant cette famille de plans en position de Bragg, convergent en un point F, situé sur le cercle auquel est tangent l'échantillon et qui passe par S. Dans la pratique, la source est linéaire et correspond à un segment de droite. Le lieu de focalisation est alors aussi un segment de droite parallèle à la source.

Afin d'obtenir un faisceau parfaitement monochromatique, les chambres de Seemann-Bohlin sont souvent associées à un monochromateur de type Guinier. Le trajet optique du

faisceau est donné sur la **figure II.14**. Ce monochromateur permet de résoudre le doublet $K\alpha_1 - K\alpha_2$.

Durant nos différentes études nous avons utilisé un montage en transmission.

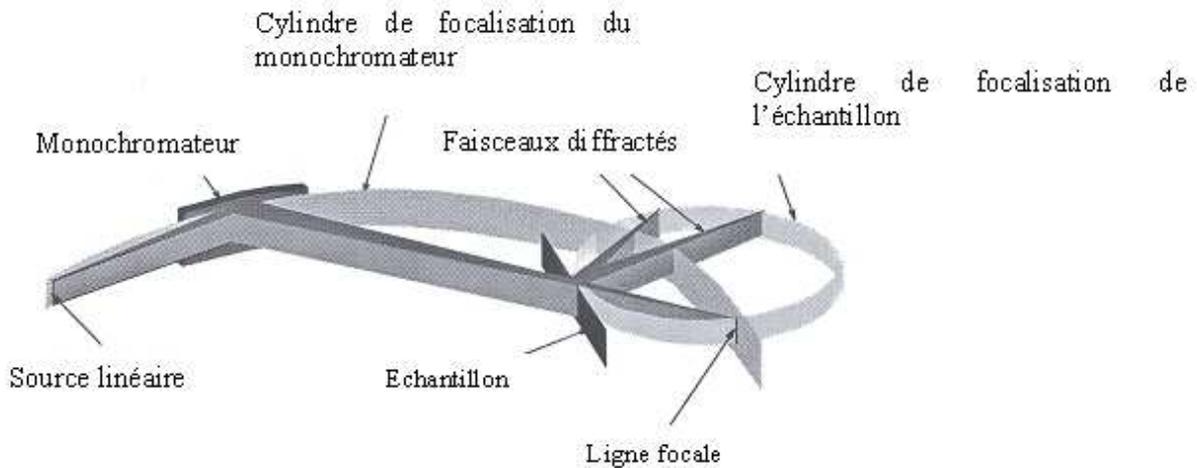


Figure II-14 : Montage de Guinier

Pour réaliser ce type d'analyses nous devons préalablement décoller le dépôt du substrat et le réduire sous forme de poudre très fine. Le montage permet d'étudier simultanément plusieurs échantillons. Ces différentes poudres sont placées les unes au-dessus des autres (**figure II.15 (b)**) et diffractent pour une portion du faisceau différente. La **figure II.15 (a)** donne un exemple de film obtenu par cette technique.

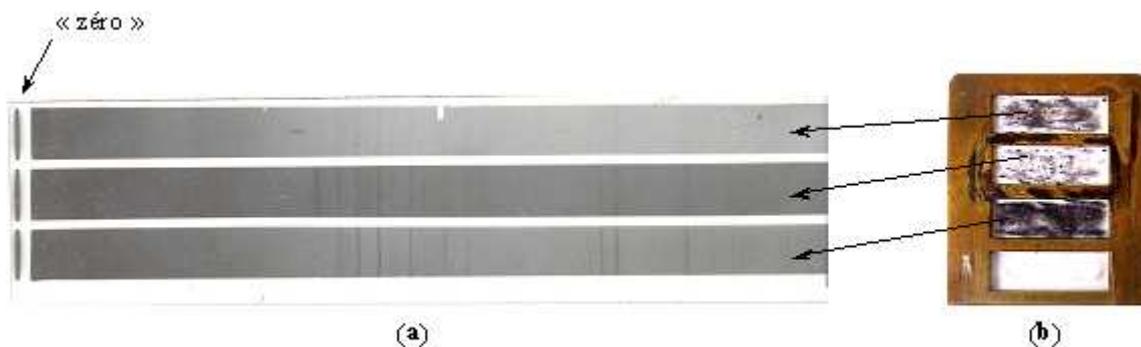


Figure II-15 : Film obtenu lors de l'étude simultanée de plusieurs échantillons

Le « zéro » sert de référence pour comparer les films obtenus avec des fiches théoriques. Cela permet d'identifier les phases présentes.

Les chambres de Guinier sont des diffractomètres qui présentent une très bonne résolution angulaire. Le principal inconvénient pour nous est que ces analyses ne permettent pas d'observer les orientations sur les couches. Elles indiquent seulement la présence de

phases mais doivent être couplées à un diffractomètre de type Bragg-Brentano pour observer les éventuelles orientations préférentielles.

II.3.3. Mesure des propriétés magnétiques ⁽¹⁾

Les propriétés magnétiques des couches sont mesurées à l'aide d'un hystérésismètre M2100. Les échantillons sont soumis à un champ appliqué à la fréquence industrielle de 50 Hz, produit par un bobinage primaire approprié. Le principe général alors utilisé est basé sur la loi de l'induction électromagnétique : toute variation du flux ϕ coupé par une bobine produit dans celle-ci une tension induite proportionnelle à $d\phi/dt$. Si l'on sait mesurer cette tension en fonction de l'excitation qui produit la variation de flux, on peut remonter par intégration à la valeur de l'aimantation et donc tracer le cycle d'hystérésis. Une description succincte de l'hystérésismètre utilisé est donnée sur la **figure II.16**.

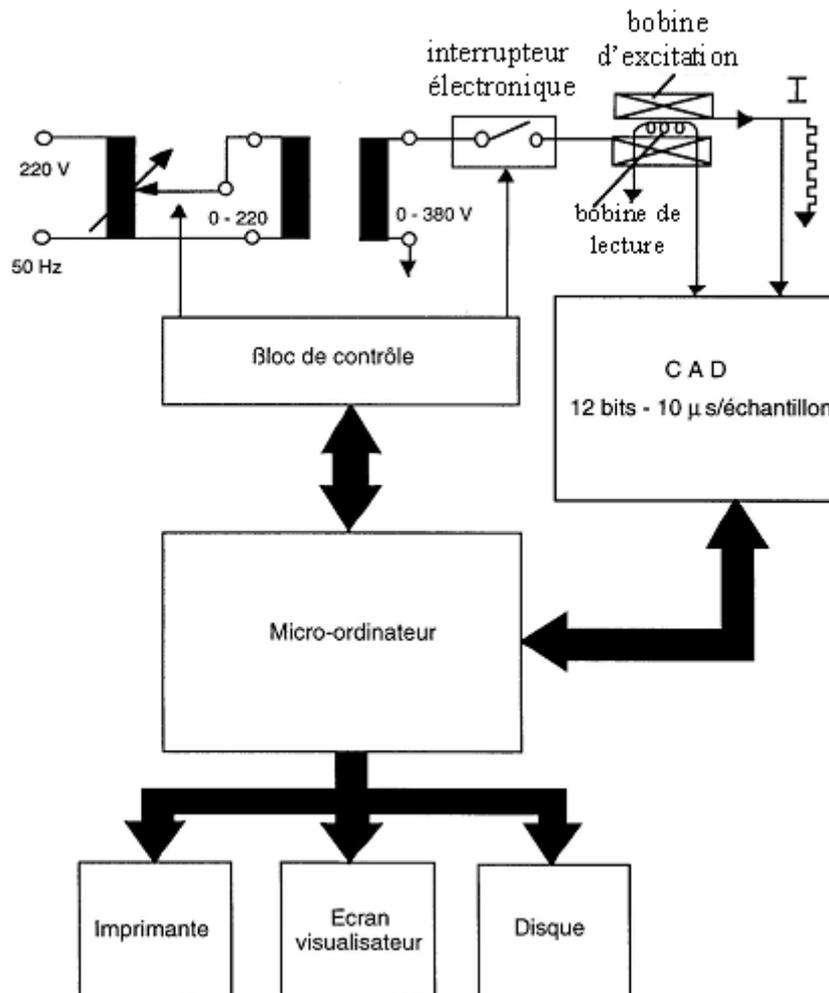


Figure II-16 : Hystérésismètre M2100

⁽¹⁾ CAGAN Vladimir, **Mesures des paramètres magnétiques fondamentaux des matériaux ferromagnétiques ou ferrimagnétiques**, Versailles, Laboratoire de Magnétisme et d'optique de Versailles, 1997, pp 117-126.

L'excitation est appliquée en mode dit pulsé. Ce mode correspond, en fait, à l'application de l'excitation durant trois périodes du secteur avec coupure aux zéros du courant. Cela permet de surcharger le conducteur dont est constitué la bobine d'aimantation, de façon à obtenir une excitation élevée tout en limitant l'échauffement par effet Joule.

Cet appareil est muni de deux capteurs qui permettent d'appliquer un champ soit parallèle soit perpendiculaire à la surface des couches. Ceci permet de juger de l'anisotropie des dépôts effectués. Ces capteurs sont tous les deux réalisés suivant le même principe général. Ils comportent :

une bobine d'aimantation,

une bobine de lecture placée à l'intérieur, autour de l'échantillon,

une bobine de compensation,

et des capteurs de température qui jouent le rôle de sécurité thermique tout en pilotant le cycle de mesure s'il y a lieu.

Un exemple de tracé de cycle d'hystérésis est donné sur la **figure II.17** suivante.

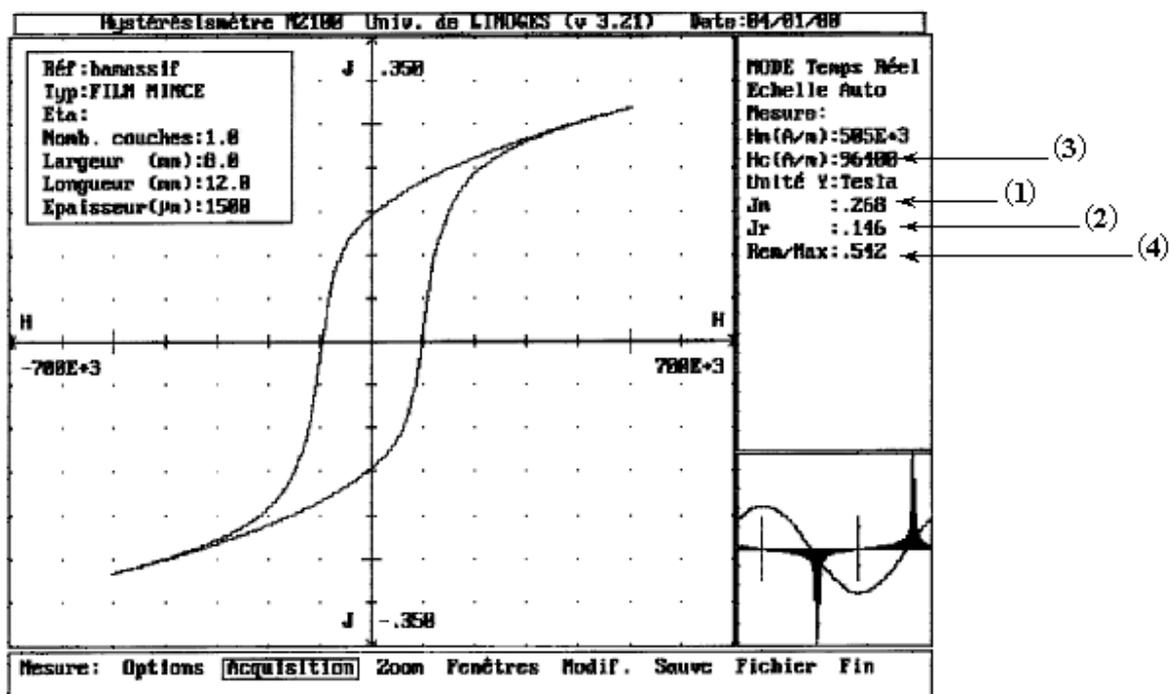


Figure II-17 : Exemple de tracé de cycle d'hystérésis

A partir de ce cycle, il est possible de lire les valeurs de l'intensité d'aimantation à saturation J_S (1) (notée J_m sur la **figure II.17**), de l'intensité d'aimantation rémanente J_r (2), du champ coercitif H_C (3) et du rapport de rémanence $RR = J_r / J_s$ (4).

II.3.4. Mesure de l'épaisseur

L'épaisseur des couches est mesurée à l'aide d'un profilomètre DEKTAK IIA. Cet appareil permet de mesurer avec une très grande précision des hauteurs de relief inférieures à 50 Å. L'échantillon se déplace sous un stylet à pointe diamantée dont les variations verticales traduisant le profil du dépôt sont transformées en tensions électriques à l'aide d'un transformateur différentiel. Un convertisseur analogique / numérique stocke alors les résultats sous forme numérique, puis les informations sont visualisées sur l'écran vidéo et peuvent être tracées sur papier thermique.

Avant la phase de dépôt, un substrat en verre est placé sur le porte-échantillons de telle sorte que la moitié de sa surface soit protégée (**figure II.18 (a)**). L'épaisseur de ferrite déposée est donc évaluée en mesurant la hauteur de la marche obtenue après dépôt (**figure II.18 (b)**).

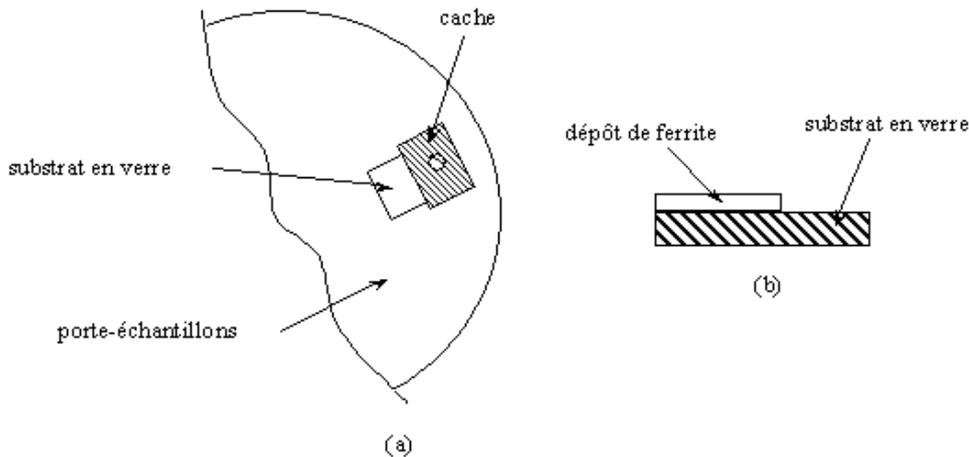


Figure II-18 : Dispositif de mesure de l'épaisseur des couches

A titre d'exemple un profil d'épaisseur est donné sur la **figure II.19** ci-dessous. Ici l'épaisseur mesurée est peu différente de 12,6 µm.

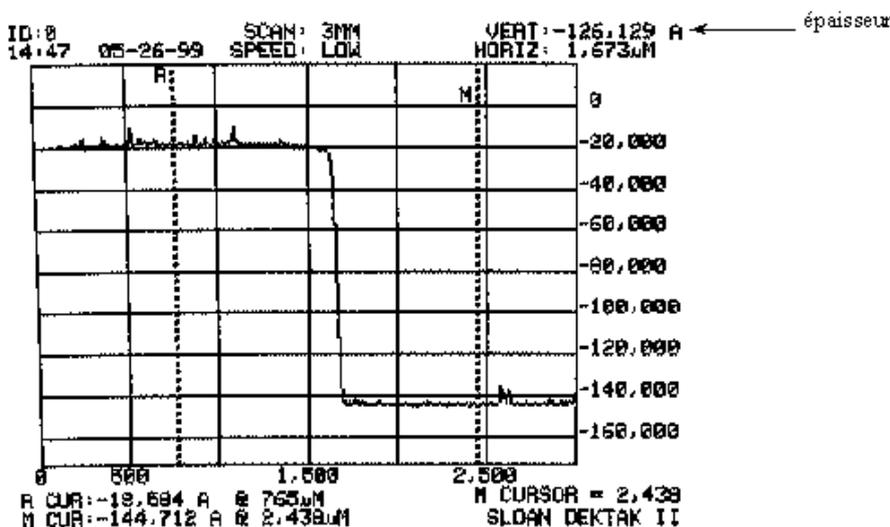


Figure II-19 :
Exemple de mesure
d'épaisseur

II.3.5. Analyses SIMS

La Spectrométrie de Masse des Ions Secondaires (SIMS) est une technique d'analyse physico-chimique à très grande sensibilité. Le principe de cette analyse consiste à bombarder la surface de l'échantillon avec un faisceau d'ions, appelés ions primaires, de quelques keV. Sous l'effet de ce bombardement, il y a pulvérisation de la matière (érosion ionique) et diverses particules secondaires sont alors émises de la surface : électrons, photons, atomes et molécules neutres, atomes et molécules excités, ions. La **figure II.20**, donne une représentation schématique du phénomène.

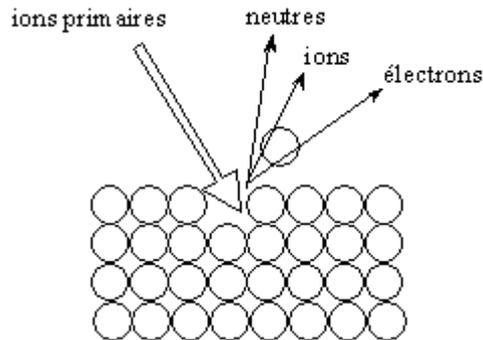


Figure II-20 : Emission ionique secondaire

La technique SIMS analyse alors, par spectrométrie de masse, les ions secondaires issus de la pulvérisation.

En ce qui nous concerne, nous avons utilisé cette technique pour effectuer des profils de concentration en fonction de la profondeur. A titre d'exemple, un profil de concentration est donné sur la **figure II.21** ci-dessous.

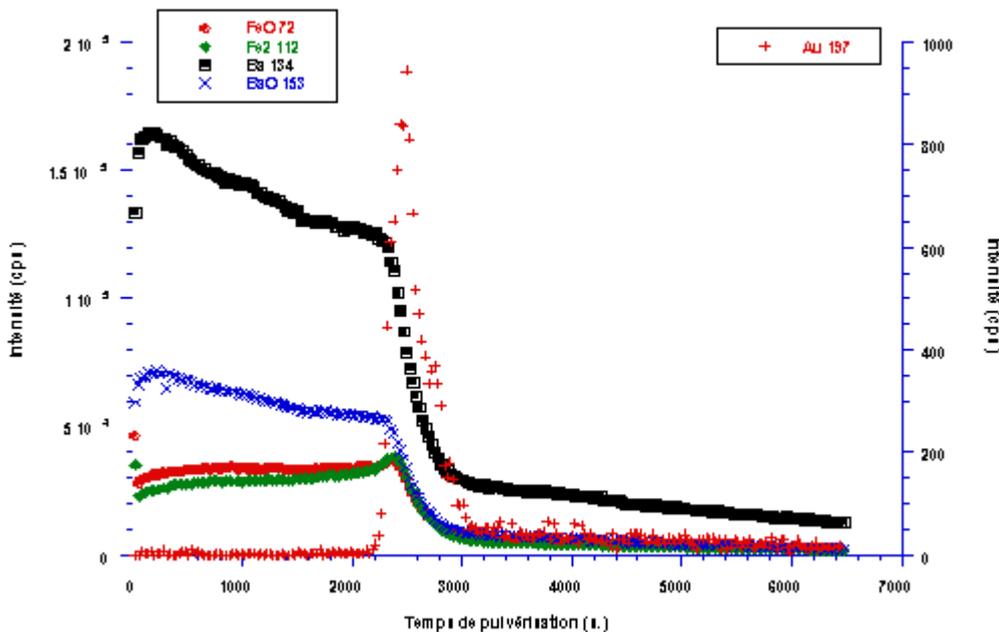


Figure II-21 : Profil de concentration en profondeur

La densité des ions primaires étant variable, cela permet d'obtenir une large gamme en profondeur d'analyse (de 1 nm à 20 μm). Ces analyses ont été réalisées au laboratoire de recherches sur la réactivité des solides à Dijon.

Dans ce chapitre, nous avons présenté la technique de dépôt et les différents moyens de caractérisation que nous avons utilisés. Nous allons maintenant exposer dans le chapitre III, les résultats expérimentaux que nous avons obtenus concernant l'hexaferrite de baryum.

Bibliographie du chapitre II

[1] WANE Ibrahima

Etude, réalisation et caractérisation de couches de ferrites destinées à des dispositifs intégrés micro-ondes non réciproques, pp 46-61, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, 05 juillet 2000, n° d'ordre 30.2000.

[2] JI Z. G.

Copper phthalocyanine film grown by vacuum deposition under magnetic field, Thin Solid Films, 2002, 402, pp 79 – 82.

[3] EBERHART Jean-Pierre

Analyse structurale et chimique des matériaux, Paris, éditions Dunod, 1997, pp 513-538.

CHAPITRE III :
L'hexaferrite de baryum :
résultats expérimentaux

III.1. Introduction

L'objectif de cette étude est la réalisation d'un circulateur intégré fonctionnant aux alentours de 70 GHz. En effet, la transmission locale des informations par ondes radio s'est vue attribuer une bande de fréquence autour de 60 GHz. De même, un autre domaine d'application pourrait être les radars anticollision pour l'automobile, avec un fonctionnement à 77 GHz.

Comme nous l'avons dit au chapitre I, à de telles fréquences, pour minimiser les pertes au niveau du circulateur il est nécessaire de réaliser des couches épaisses de ferrites ⁽¹⁾. Cependant, à l'heure actuelle, peu d'études ont été publiées sur ce thème de recherche. Afin de fixer les objectifs à atteindre, nous nous sommes appuyés sur un rapport interne au Naval Research Laboratory ⁽¹⁾, publié par Denis C. WEBB, aux Etats Unis. Les grandes lignes de ce rapport sont reportées dans le **tableau III.1** suivant.

	objectif	acceptable
<u>Propriétés physiques</u>		
Epaisseur	100 μm	50 μm
Adhérence (Test du scotch)	100 %	50 %
Fissures	aucune	fissures entraînant une réduction maximale de 20% de l'intensité d'aimantation
<u>Paramètres de dépôt</u>		
Température des substrats	300°C	600°C
Température de recuit	pas de recuit	recuit rapide < 850°C
<u>Paramètres du matériau</u>		
Intensité d'aimantation à saturation	0,25 – 0,5 T	0,15 – 0,5 T
Largeur de raie de gyrorésonance	16 kA/m	40 kA/m
Tangente de pertes magnétiques	0,001	0,01

Tableau III-1 : Objectifs à atteindre pour la réalisation d'un circulateur intégré

Ce chapitre présente les résultats expérimentaux obtenus lors de la réalisation de couches d'hexaferrite de baryum. Nous avons choisi ce matériau car c'est un ferrite qui après avoir été

⁽¹⁾ WEBB D. C., **Design and fabrication of low-cost ferrite circulators**, Naval Research Laboratory, Washington DC

placé dans un champ magnétique, conserve son aimantation (ferrite dur). Donc, ce ferrite à forte anisotropie, peut à la fois remplir la fonction circulation et la fonction polarisation magnétique, au sein du circulateur.

Une étude systématique de tous les paramètres de dépôt a été réalisée, et nous avons observé leurs influences respectives sur les différentes propriétés des couches.

Ce chapitre se subdivise en trois grandes parties distinctes. Tout d'abord, nous allons dresser un rapide bilan des travaux sur le sujet, déjà effectués au sein de l'équipe. En effet, les premiers résultats ont fait l'objet de la thèse d'Ibrahima WANE, soutenue en juillet 2000. Ensuite, nous allons décrire et interpréter les résultats obtenus lors de l'étude des paramètres de dépôt : température des substrats, vitesse de dépôt, épaisseur déposée ... Enfin, nous concluons et présenterons les perspectives.

III.2. Etude de l'hexaferrite de baryum massif

Ce matériau fourni par la société TEKELEC TEMEX se présente sous la forme de pastilles cylindriques d'une quinzaine de grammes. Ce sont ces pastilles que nous avons analysées à l'aide des différents moyens de caractérisation qui ont été décrits au chapitre II.

III.2.1. Diagrammes de diffraction

La **figure III.1** représente le diagramme de diffraction du ferrite massif obtenu au diffractomètre SIEMENS D5000.

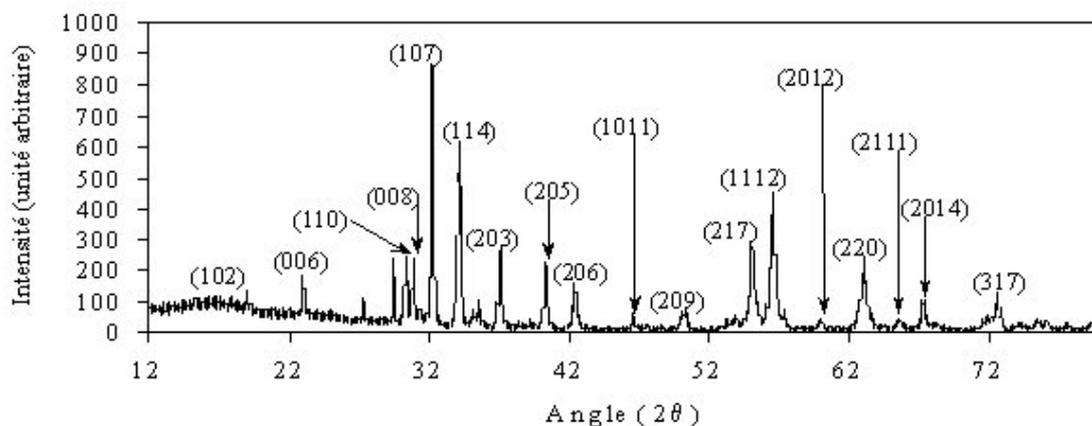


Figure III-1 : Diagramme de diffraction du ferrite de baryum massif

Ce diagramme montre clairement que le ferrite massif que nous utilisons pour la réalisation des couches n'est pas orienté. De plus, on remarque qu'il ne possède que deux pics présentant l'orientation souhaitée (00ℓ) : (006) et (008).

Ce même ferrite a été analysé à l'aide d'une chambre de Guinier. Le résultat est reporté sur la **figure III.2**. Si l'on superpose le film obtenu avec la fiche théorique correspondant à la phase $BaFe_{12}O_{19}$, nous constatons qu'il y a concordance entre les deux. Cela montre bien la présence d'une phase unique : $BaFe_{12}O_{19}$.

De plus, ce film nous servira de référence pour montrer l'existence de mélanges biphasés dans certaines des couches réalisées.

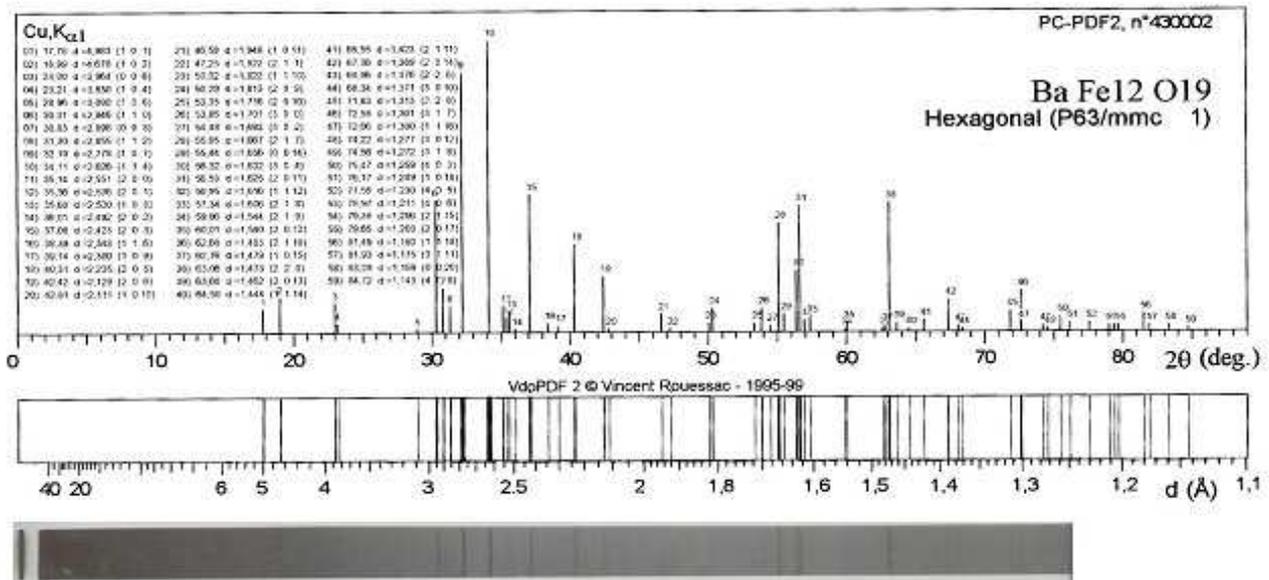


Figure III-2 : Guinier du ferrite massif

III.2.2. Propriétés magnétiques

Les propriétés magnétiques de l'hexaferrite de baryum que nous utilisons au laboratoire ont été mesurées à l'aide de l'hystérésismètre M2100 décrit dans le chapitre précédent. Pour cela nous avons fait usiner à la société TEKELEC TEMEX des échantillons aux dimensions des capteurs de l'appareil. Nous avons alors obtenu les résultats consignés dans le **tableau III.2** :

J_s (Tesla)	$H_{c//}$ (kA/m)	$H_{c\perp}$ (kA/m)	$(J_r/J_s)_{//}$	$(J_r/J_s)_{\perp}$
0,39	102	102	0,54	0,36

Tableau III-2 : Propriétés magnétiques mesurées à l'hystérésismètre

Toutes ces grandeurs ont été évaluées à partir des cycles de la **figure III.3**. Dans ce tableau, il est important de remarquer que les valeurs du champ coercitif mesurées par application d'un champ parallèle ou perpendiculaire à la surface sont identiques. Cela traduit

bien le fait qu'à l'état massif le matériau est isotrope et ne possède donc pas d'orientation préférentielle. Ces résultats sont en accord avec le diagramme de diffraction obtenu au paragraphe III.2.1.

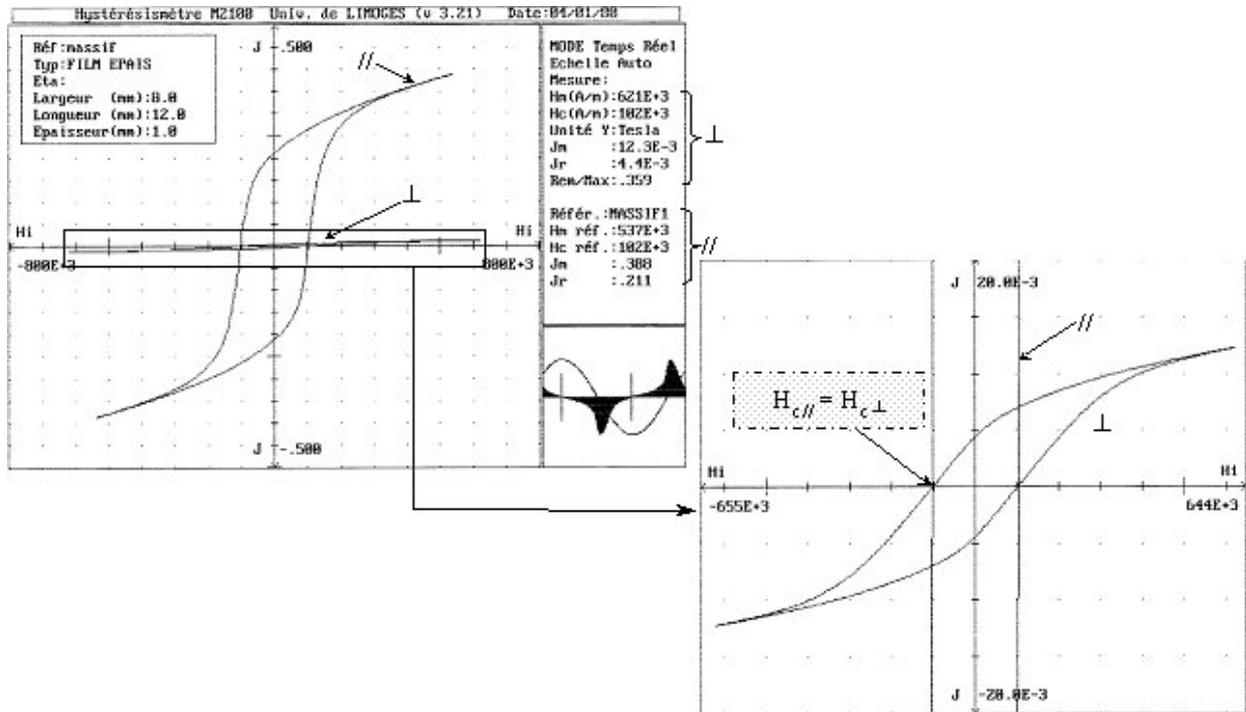


Figure III-3 : Cycles d'hystérésis du ferrite de baryum massif mesurés en champ parallèle et en champ perpendiculaire

III.2.3. Analyses de composition

Des analyses E.D.X ont été réalisées sur trois pastilles et à deux endroits différents sur chacune d'elles, en appliquant une tension d'accélération de 20 kV. Nous avons alors obtenu les valeurs suivantes :

pastille	Fe/Ba	Fe/Ba
1	10,81	10,54
2	11,13	11,10
3	11,34	11,14

Tableau 0-3 : Analyses de composition

En moyenne nous mesurons donc un rapport Fer / Baryum proche de 11. Compte tenu des imprécisions sur les mesures ($\approx 10\%$), nous pouvons dire que ces résultats sont en accord avec la formule théorique qui conduit à un rapport molaire de 12. Afin de vérifier ce résultat

nous avons fait procéder à une analyse chimique d'une pastille au service central d'analyse du CNRS de Vernaison. Les résultats obtenus sont regroupés dans le **tableau III.4**.

Ba %	Fe %
11,47	57,06

Tableau III-4 : Analyse chimique d'une pastille ('%' = grammes pour 100 grammes)

Ici, les mesures sont réalisées après avoir réduit la pastille sous forme de poudre. Donc, contrairement aux analyses EDX, ce type d'analyses permet d'obtenir une composition chimique sur la totalité de la pastille. A partir de là nous pouvons déduire le rapport molaire

entre le fer et le baryum de la façon suivante : $\left(\frac{Fe}{Ba}\right)_{molaire} = \frac{57,06/56}{11,47/138} = 12,26$. Ce résultat

confirme bien ceux obtenus par EDX et montre que le rapport Fer / Baryum mesuré est très voisin du rapport théorique (Fe/Ba \approx 12).

III.3. Bilan des résultats obtenus durant la thèse d'Ibrahima WANE [1]

III.3.1. Résultats généraux

Les travaux d'Ibrahima Wane ont débuté par l'étude d'un autre ferrite « dur » : l'hexaferrite de strontium (SrFe₁₂O₁₉). Les résultats ont montré que les dépôts possèdent une grande intensité d'aimantation à saturation (jusqu'à 0,6 Tesla) et un rapport de rémanence proche de 0,5, et ceci, sans recuit thermique. Cependant, les valeurs du champ coercitif restent faibles, puisqu'il est au maximum égal à 40 kA/m. De plus, les couches réalisées sont très largement déficitaires en strontium. Cela implique que, malgré une étude systématique de l'influence de tous les paramètres de dépôt, la phase de l'hexaferrite de strontium n'est pas formée ; ce qui explique pourquoi les couches possèdent des propriétés magnétiques différentes de celles du ferrite massif (**tableau III.5**).

J _s (Tesla)	H _{c//} (kA/m)	H _{c⊥} (kA/m)	(J _r /J _s) _{//}	(J _r /J _s) _⊥
0,367	245	297	0,28	0,9

Tableau III-5 : Propriétés magnétiques du ferrite de strontium massif

Dans un second temps, une étude a été menée sur un autre ferrite « dur » : l'hexaferrite de baryum (BaFe₁₂O₁₉). Les tout premiers dépôts d'hexaferrite de baryum réalisés **sous vide** (\approx 0,2 Pa) et à une température de substrats de 400°C ont montré qu'aux faibles vitesses de

dépôt ($\leq 7 \mu\text{m/h}$) les couches sont amorphes. Lorsque la vitesse de dépôt devient plus importante nous observons une cristallisation suivant la phase de la wüstite (FeO). Cela est dû à la présence du fer divalent résultant de la réduction du fer trivalent aux basses pressions [2], ainsi qu'au manque d'oxygène dans les couches [3]. Par la suite, tous les dépôts ont donc été réalisés sous atmosphère pure d'oxygène.

Il est apparu qu'en modifiant les paramètres de dépôt (notamment la vitesse d'évaporation), nous pouvons faire varier le rapport Fer / Baryum et ainsi obtenir la bonne stoechiométrie ($\text{Fe/Ba} \approx 12$).

De plus, lorsque la température des substrats est inférieure à 700°C , les couches sont amorphes ou mal cristallisées. Par contre, à 700°C , les dépôts cristallisent majoritairement suivant la phase de l'hexaferrite de baryum massif et présentent une orientation préférentielle dans le plan $(hk0)$.

Durant cette thèse, les valeurs du champ coercitif mesurées sur les couches ont été comprises entre 75 et 350 kA/m. En ce qui concerne l'intensité d'aimantation à saturation, elle a varié entre 0,13 et 0,24 Tesla. Il faut noter que ces valeurs restent inférieures à celle mesurée sur le ferrite massif (0,39 Tesla) mais sont acceptables compte tenu de l'application visée.

Enfin, il est apparu que la composition du lingot variait d'un dépôt à l'autre et qu'il était donc difficile de comparer les résultats obtenus. Dans ces conditions, l'influence des différents paramètres de dépôt sur les propriétés des films n'a pu être étudiée durant la thèse d'Ibrahima Wane.

III.3.2. Choix de la sous-couche d'accrochage

La thèse d'Ibrahima Wane a mis en évidence qu'une couche intermédiaire entre le substrat en silicium et le ferrite permettait d'améliorer considérablement l'adhérence sans pour autant modifier les propriétés magnétiques et la composition chimique des couches. Plusieurs types de sous-couches ont été étudiés et il est apparu qu'une couche intermédiaire de Titane / Or est la mieux adaptée [4] [5]. La configuration des substrats avant dépôt est donc la suivante :

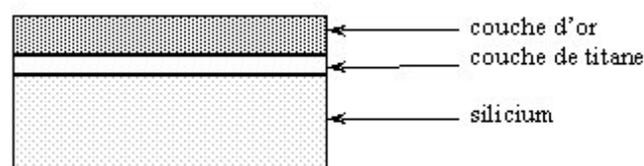


Figure III-4 : Configuration du substrat avant dépôt

Le ferrite de baryum est déposé au-dessus de cette couche d'or. Ces sous-couches sont réalisées par pulvérisation cathodique magnétron au sein du laboratoire, et font l'objet d'une partie de la thèse d'Emmanuel Briney.

La couche de titane de 200 nm d'épaisseur sert à améliorer l'adhérence entre la sous-couche métallique et le substrat. Elle joue aussi le rôle de barrière anti-diffusion entre l'or et le silicium. Quant à la couche d'or (800 nm), elle permet de réduire les contraintes au sein de la couche de ferrite.

Cependant, de nombreuses fissures restent visibles sur la surface des dépôts. Elles sont dues aux contraintes thermiques résultant de la différence de coefficients de dilatation thermique entre le ferrite et le substrat, ainsi que l'illustre le **tableau III.6** qui regroupe les coefficients pour différents matériaux massifs [6].

éléments	coefficients de dilatation thermique ($10^{-6} / ^\circ\text{C}$)
Si	3,6
Ti	9,5
Au	14,2
BaFe ₁₂ O ₁₉	7

Tableau III-6 : Coefficients de dilatation thermique

La couche d'or servira aussi de plan de masse inférieur au niveau du circulateur intégré. En effet, l'or possède une grande conductivité ($0,452 \cdot 10^8$ S/m) ce qui en fait le candidat idéal pour l'application visée. Le schéma de principe d'un circulateur intégré est donné ci-après :

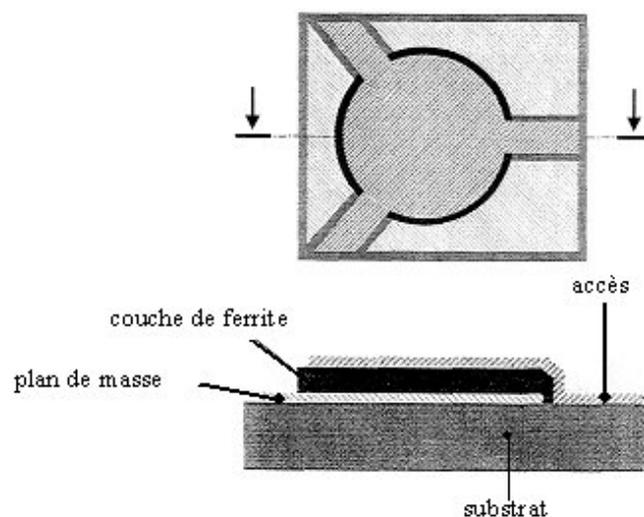


Figure III-5 : Schéma de principe d'un circulateur intégré avec des accès en technologie coplanaire

Toutes nos études ont donc été menées sur des dépôts réalisés sur une sous-couche de Titane / Or.

En s'appuyant sur les premiers résultats obtenus par Ibrahima Wane, mes travaux de thèse ont porté sur l'étude systématique de l'influence de tous les paramètres de dépôt (température des substrats, vitesse de dépôt, épaisseur des couches...) sur les propriétés des films d'hexaferrite de baryum. Ce sont ces différents résultats que nous allons présenter maintenant.

III.4. Influence de la température des substrats

Durant cette étude nous avons fait varier la température des substrats entre 100°C et 700°C tout en maintenant une pression constante (0,46 Pa) dans la partie haute de l'enceinte. En effet, comme nous l'avons dit précédemment (chapitre II, **figure II.1**), la pression dans l'enceinte de dépôt ne doit pas être trop faible pour éviter la réduction du fer trivalent en fer divalent. Dans un même temps, il existe une pression limite supérieure (0,46 Pa) qui est imposée par la pression limite de fonctionnement du canon à électrons ($P_{\text{canon limite}} \approx 2.10^{-2}$ Pa). Dans ce chapitre, tous les dépôts ont donc été réalisés sous une atmosphère pure d'oxygène à une pression de 0,46 Pa. Dans cette partie, les films ont tous une épaisseur proche de 20 μm .

Toutes les couches ainsi obtenues ont ensuite été recuites. Les recuits post-dépôt sont réalisés dans les conditions suivantes :

- rampe de montée : 600°C / heure,
- température du palier : 850°C,
- durée du palier : 2 heures,
- rampe de descente : 600°C / heure,
- pression d'oxygène : 0,1 Pa.

Dans cette partie, nous présentons les résultats obtenus pour deux vitesses de dépôt : 10 $\mu\text{m/h}$ et 20 $\mu\text{m/h}$. Les couches qui sont réalisées à une température de 100°C ne sont pas adhérentes et n'ont donc pas pu être caractérisées. Cela est visible sur la **figure III.6** qui montre l'état de surface d'un dépôt non recuit, obtenu dans les conditions suivantes :

- vitesse de dépôt : 10 $\mu\text{m/h}$,
- température des substrats : 100°C,
- épaisseur du dépôt : 20 μm ,
- pression dans la partie haute de l'enceinte : 0,46 Pa.

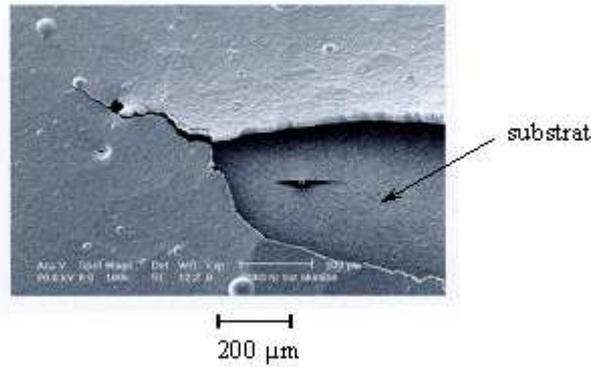


Figure III-6 : Photographie de la surface d'un dépôt réalisé à 100°C

III.4.1. Résultats cristallographiques

La **figure III.7** présente les diagrammes de diffraction obtenus sur des couches réalisées à une vitesse de **10 µm/h** avec différentes températures de substrats.

Il apparaît que les dépôts effectués à des températures inférieures à 700°C sont amorphes ou très mal cristallisés. En effet, sur les différents diagrammes seuls sont présents les pics caractéristiques du silicium ($2\theta = 69,132^\circ$) et de la sous-couche d'or. Cependant, sur les diagrammes que nous présentons ici nous n'avons pas visualisé le pic du silicium afin d'éviter de saturer le détecteur. Nous constatons aussi la présence de la phase spinelle $BaFe_2O_4$ qui est non magnétique. La présence de cette phase a été confirmée à l'aide d'analyses réalisées dans une chambre de Guinier. D'après la littérature, l'apparition de cette phase est liée au fait que les couches ne présentent pas la composition du ferrite massif ($Fe/Ba \approx 12$). Ce phénomène a été mis en évidence dans le cas de poudres [7]. Les travaux de M. Koleva et al. ont aussi montré la présence de cette phase secondaire pour des couches réalisées par laser pulsé et ne possédant pas la bonne composition [8]. Cela peut s'expliquer à l'aide du diagramme de phases (**figure III.8**) qui montre qu'hors stœchiométrie ($Fe/Ba \neq 12$), il y a apparition de mélanges biphasés. Cependant, ce diagramme à lui seul ne permet pas d'expliquer pourquoi ce mélange de phases n'est présent que sur certains dépôts alors que le rapport Fer / Baryum est quasiment toujours différent de 12.

Enfin, tous ces dépôts étant amorphes ou très mal cristallisés, ils ne sont pas magnétiques à l'hystérésimètre.

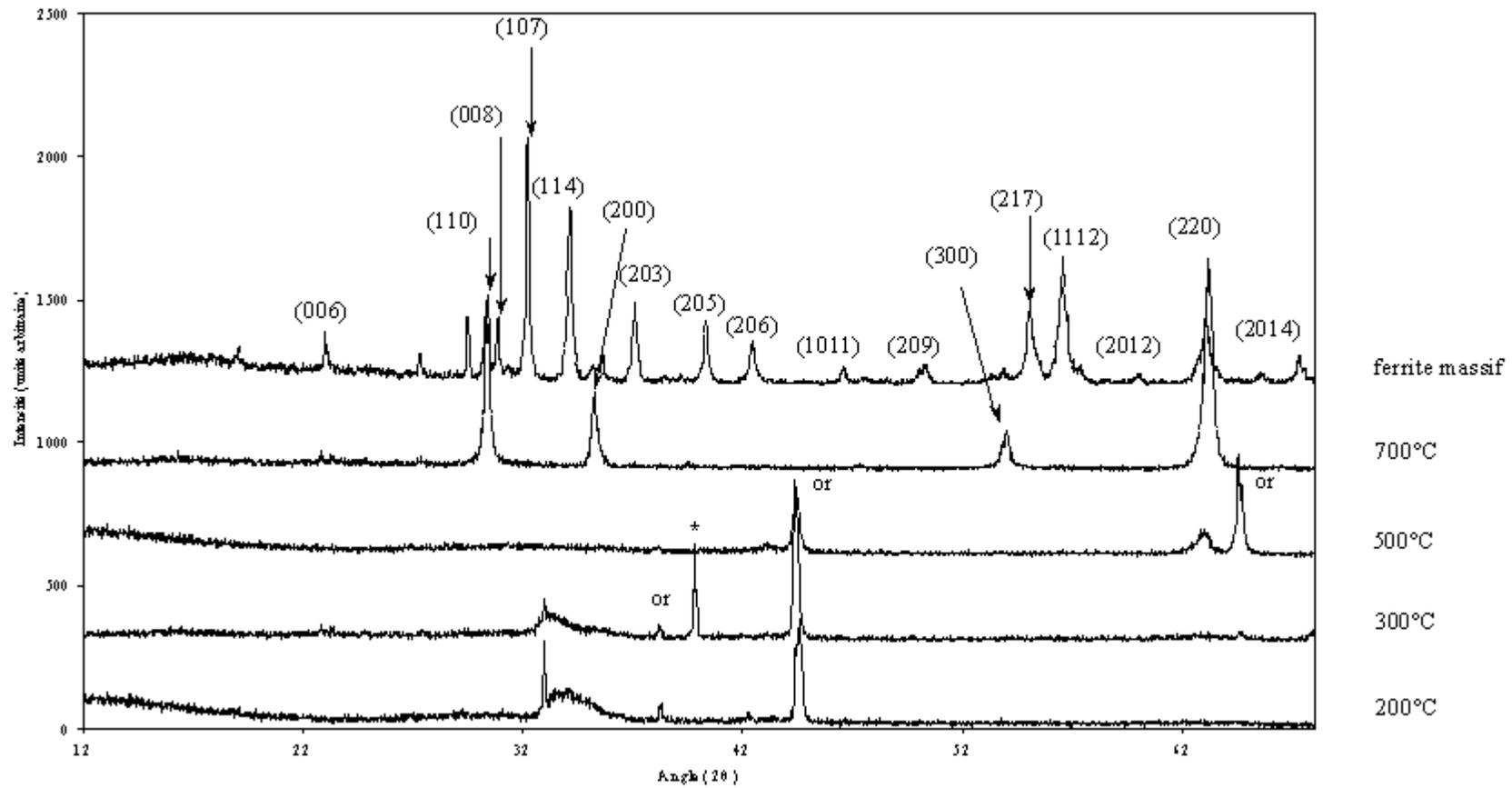


Figure III-7 : Diagrammes de diffraction de dépôts réalisés à 10 $\mu\text{m/h}$ et à différentes températures

* Phase BaFe_2O_4

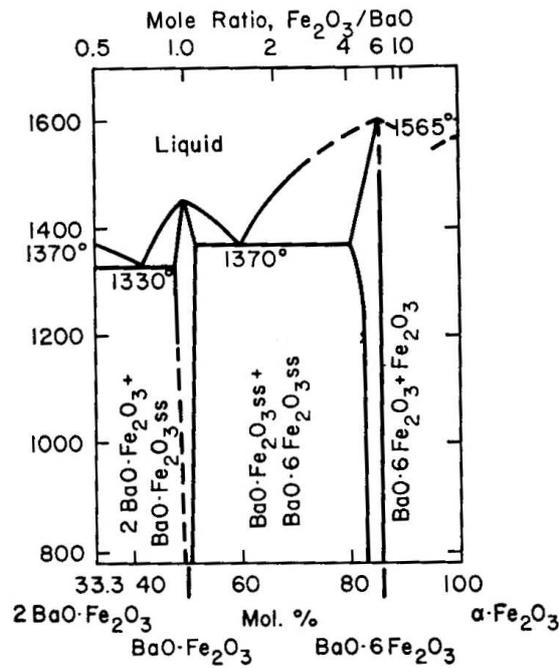


Figure III-8 : Diagramme de phases

Comme l'indique la **figure III.7**, à 700°C, les dépôts sont cristallisés et nous observons une orientation préférentielle dans le plan. En effet, les pics présents sur le diagramme sont les suivants : (110), (200), (300) et (220).

Lorsque la vitesse de dépôt vaut **20 µm/h**, nous observons exactement les mêmes phénomènes. En effet, seules les couches réalisées à 700°C sont cristallisées, et elles présentent toujours une orientation préférentielle dans le plan.

Après recuit, pour une vitesse de dépôt de **10 µm/h**, quelle que soit la température des substrats, les couches cristallisent majoritairement suivant la phase de l'hexaferrite de baryum massif. A 700°C, nous constatons qu'il existe toujours une orientation préférentielle dans le plan de la couche. La **figure III.9** représente le diagramme de diffraction d'un dépôt réalisé à 700°C et recuit.

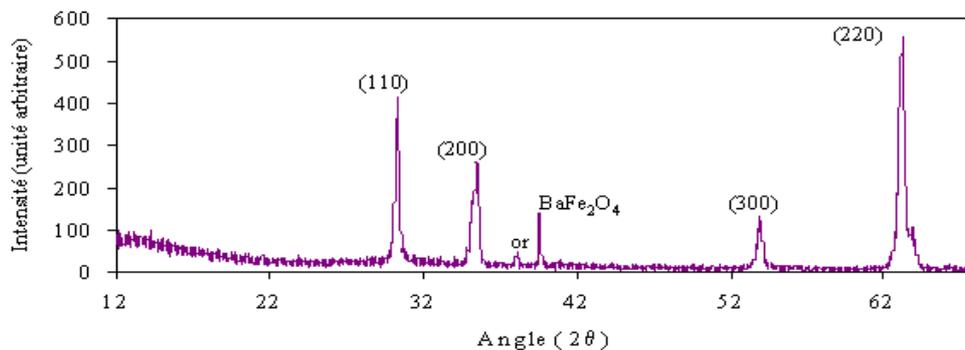


Figure III-9 : Diagramme de diffraction d'un dépôt réalisé à 700°C et recuit

De plus, un pic correspondant à la phase BaFe_2O_4 est présent sur ce diagramme. La présence d'un pic caractéristique de la phase spinelle (BaFe_2O_4) peut avoir une influence sur les propriétés magnétiques, notamment en réduisant la valeur de l'aimantation à saturation [9].

Si la température initiale des substrats est inférieure à 700°C , les couches sont cristallisées après recuit, mais ne possèdent pas d'orientation préférentielle. En effet, les plans qui diffractent sont aussi bien des plans parallèles (hk0) que des plans inclinés ((h0l) et (hkl)) par rapport à la surface de l'échantillon.

Lorsque la vitesse de dépôt est égale à **20 $\mu\text{m/h}$** , les résultats cristallographiques obtenus sur les couches recuites sont identiques à ceux observés à plus faible vitesse. A titre d'exemple, nous avons reporté sur la **figure III.10** les diagrammes de diffraction de dépôts recuits, réalisés à $20 \mu\text{m/h}$ et à trois températures différentes.

Nous allons maintenant nous attacher à présenter les différents résultats concernant les propriétés magnétiques.

III.4.2. Propriétés magnétiques

D'après les résultats obtenus précédemment, seules les couches réalisées à une température de 700°C sont cristallisées avant recuit. Celles-ci sont donc magnétiques et nous avons pu mesurer les propriétés magnétiques regroupées dans le **tableau III.7**.

	J_s (Tesla)	H_c (kA/m)	J_r/J_s
$V_d \approx 10 \mu\text{m/h}$	0,249	88,4	0,587
$V_d \approx 20 \mu\text{m/h}$	0,244	73,8	0,549

Tableau III-7 : Propriétés magnétiques de dépôts réalisés à 700°C

Nous constatons que la valeur de l'intensité d'aimantation à saturation est satisfaisante pour l'application visée (réalisation d'un circulateur intégré ⁽¹⁾). Cependant, afin de permettre une cristallisation des dépôts effectués au-dessous de 700°C , nous les avons systématiquement recuits. De plus, le recuit des films réalisés à 700°C ne modifie pas la valeur de l'aimantation à saturation (voir **tableau III.9**), mais permet d'augmenter légèrement celle du champ coercitif (voir **tableau III.8**).

Dans ce qui suit, toutes les valeurs mesurées ont donc été obtenues sur des dépôts recuits. De plus, les propriétés magnétiques sont évaluées en appliquant un champ parallèle à la surface des couches.

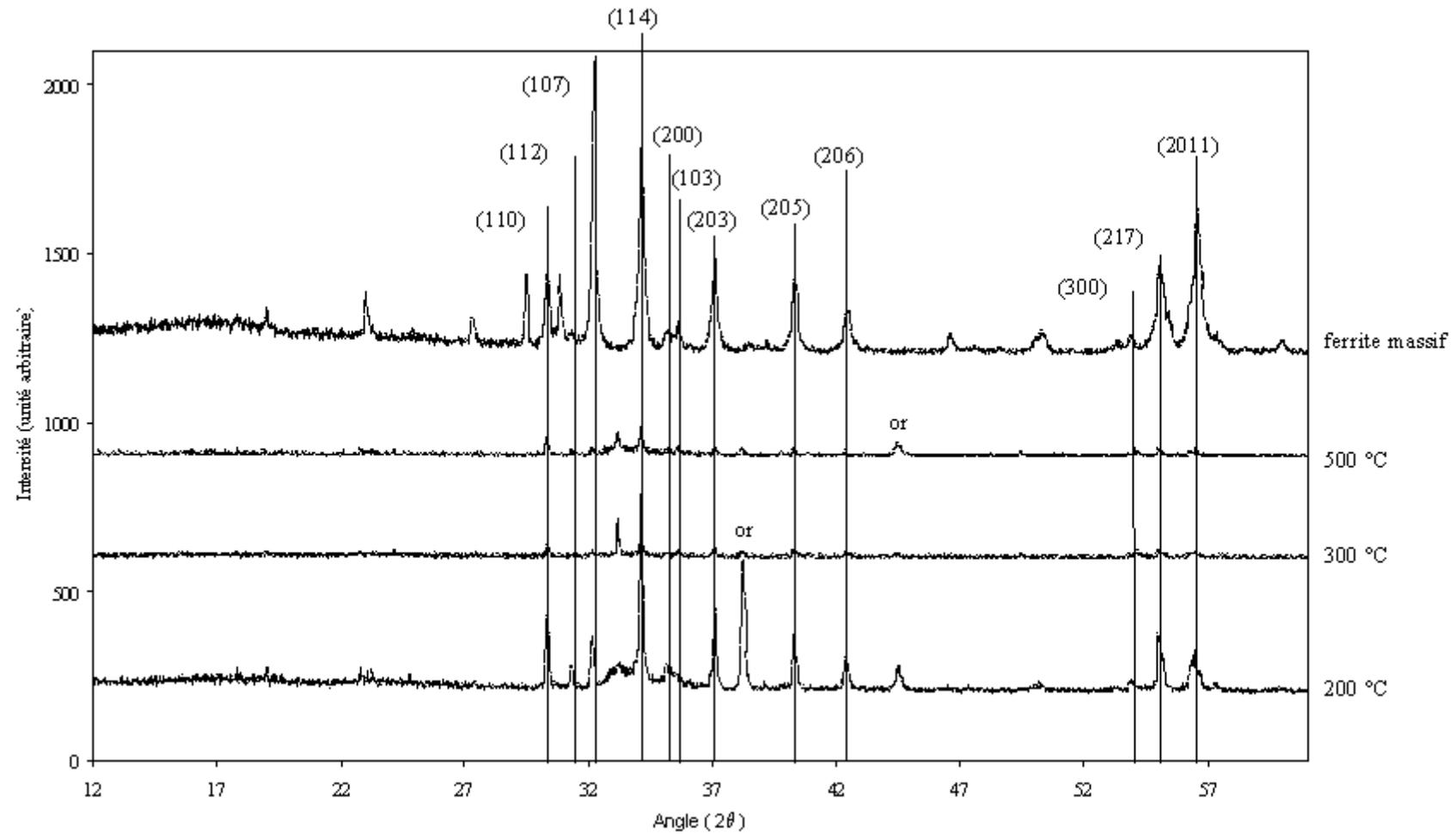


Figure III-10 : Diagrammes de diffraction de dépôts recuits, réalisés à 20 $\mu\text{m/h}$ et à différentes températures de substrats

III.4.2.1. Evolution du champ coercitif

La **figure III.11** ci-après représente l'évolution du champ coercitif en fonction de la température des substrats (T_s). Ici, le champ coercitif a été mesuré sur des dépôts réalisés à une vitesse de **10 $\mu\text{m/h}$** .

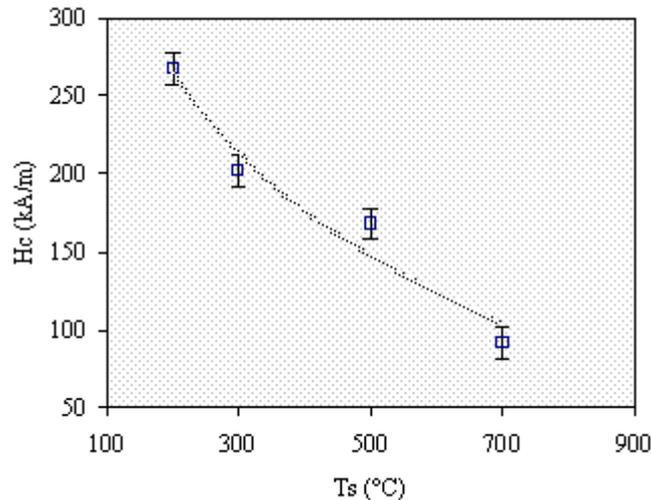


Figure III-11 : Evolution de H_c en fonction de la température ($V_d \approx 10 \mu\text{m/h}$)

Sur ce graphe, nous constatons que le champ coercitif décroît lorsque la température augmente. Sa valeur varie entre 92 kA/m et 267 kA/m. Cela est en accord avec la littérature. En effet, d'après le diagramme de Movchan et Demchishin (**figure III.12**) [10] nous savons que lors de la réalisation de couches plus la température est importante et plus les grains sont gros. Or le champ coercitif est lié à la taille de ces grains [11][12][13]. En effet, comme nous l'avons dit au chapitre I, afin de minimiser l'énergie magnétostatique la matière se subdivise naturellement en domaines. Dès lors, comme le montre la **figure III.13**, il existe trois configurations magnétiques possibles :

- les particules les plus fines sont superparamagnétiques, c'est à dire que les forces d'échange maintenant les spins alignés suivant une direction cristallographique peuvent être inférieures aux forces résultant de l'agitation thermique,
- les grains les plus gros sont constitués de plusieurs domaines magnétiques. Comme nous l'avons dit dans le premier chapitre, ces domaines sont séparés par des parois qu'une énergie relativement faible va pouvoir déplacer, entraînant ainsi le renversement de l'aimantation pour des valeurs de champ appliqué peu élevées,

- enfin, étant donné qu'une paroi de Bloch a une dimension finie, les particules de tailles intermédiaires sont monodomaines (c'est notamment le cas des poudres ferromagnétiques qui ont un cycle d'hystérésis rectangulaire avec un champ coercitif important). C'est cette configuration qui est la plus intéressante pour nous.

Les tailles limites inférieures et supérieures des particules monodomaines sont difficiles à préciser, mais il est admis qu'elles se situent respectivement à 15 nm et 1 µm environ. Les couches que nous réalisons possèdent des grains de taille supérieure. En effet, dans tous les cas les tailles de grains mesurées sont comprises entre 1 et 3,5 µm. Nous nous trouvons donc dans la configuration multidomaines et dans ce cas le champ coercitif est d'autant plus important que les grains sont petits. Il s'agit bien du phénomène traduit par la courbe de la **figure III.11**.

De plus, lorsque l'on augmente la température des substrats on améliore la qualité des couches en réduisant la concentration des défauts. Or ces défauts peuvent causer l'immobilisation des parois des domaines et donc augmenter la valeur du champ coercitif [14].

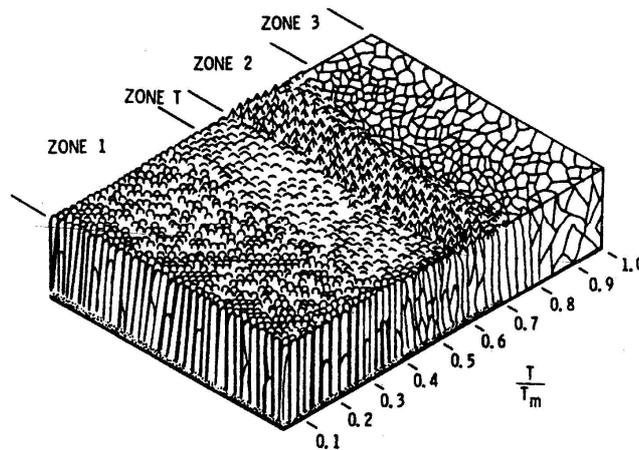


Figure III-12 : Diagramme M-D des zones structurales de matériaux condensés sous vide en fonction de la température de dépôt (T) et du point de fusion (T_m) du condensat (en degrés absolus)

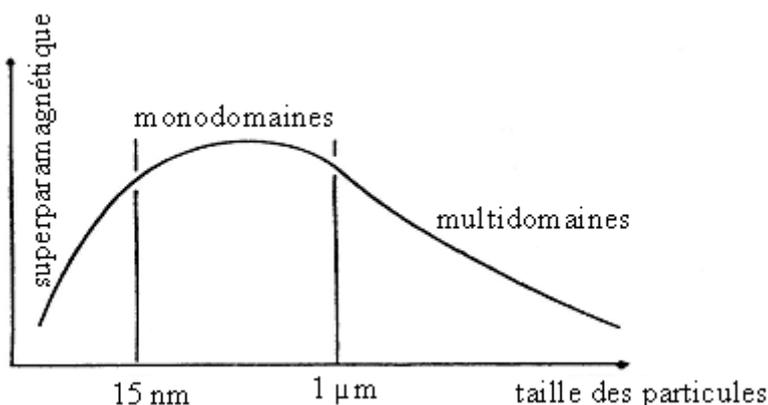


Figure 0-13 : Variation du champ coercitif avec la dimension moyenne des particules [13]

Si l'on augmente la vitesse de dépôt ($V_d \approx 20 \mu\text{m/h}$) et que l'on fait varier la température des substrats, les valeurs du champ coercitif mesurées sur les couches sont plus faibles. Les différents résultats sont regroupés dans le **tableau III.8**.

Température (°C)	200	300	500	700
H_c (kA/m) [$V_d \approx 10 \mu\text{m/h}$]	267	202	168	92
H_c (kA/m) [$V_d \approx 20 \mu\text{m/h}$]	164	129	100	85

Tableau III-8 : Valeurs du champ coercitif pour deux vitesses de dépôt

($V_d \approx 10 \mu\text{m/h}$ et $20 \mu\text{m/h}$)

Comme nous le montrerons au cours de l'étude portant sur l'influence de la vitesse de dépôt, cette diminution significative du champ coercitif est due au fait que la taille des grains mesurée à $10 \mu\text{m/h}$ est plus faible que celle mesurée à $20 \mu\text{m/h}$. Les plus faibles valeurs mesurées sont voisines de celle du ferrite de baryum massif ($H_c \approx 102 \text{ kA/m}$).

III.4.2.2. Evolution de l'aimantation à saturation

Sur le graphe ci-dessous est reportée l'évolution de l'aimantation à saturation en fonction de la température pour une vitesse de dépôt de **$10 \mu\text{m/h}$** .

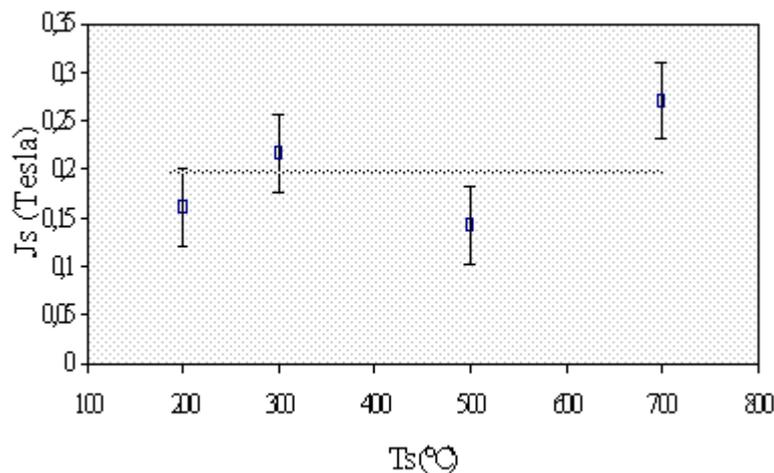


Figure III-14 : Représentation de J_s en fonction de T_s pour $V_d \approx 10 \mu\text{m/h}$

Compte tenu des imprécisions sur les mesures, nous pouvons dire que l'intensité d'aimantation à saturation est indépendante de la température à laquelle sont chauffés les substrats. En effet, quelle que soit la température, J_s a une valeur proche de 0,2 Tesla. Cette

valeur est acceptable pour l'application visée (0,15 Tesla). Cependant elle reste inférieure à celle mesurée sur le ferrite massif (0,39 Tesla). Il existe au moins deux causes à cela :

tout d'abord, durant la procédure de recuit à haute température, des éléments de la sous-couche diffusent dans le ferrite et inversement du fer et du baryum diffusent dans la sous-couche. Ce phénomène d'interdiffusion entraîne la formation d'une couche tampon non magnétique à l'interface ferrite-substrat et donc une réduction de la valeur de J_s [15]. Ce phénomène peut également se produire pendant la phase de dépôt.

ensuite, comme nous l'avons vu au paragraphe III.4.1., la présence de la phase spinelle non magnétique ($BaFe_2O_4$) peut aussi faire chuter la valeur de l'aimantation à saturation.

Pour une vitesse plus importante ($V_d \approx 20 \mu\text{m/h}$), les valeurs de l'intensité d'aimantation à saturation mesurées sur les couches, sont voisines de celles obtenues à $10 \mu\text{m/h}$. Ces différents résultats sont regroupés dans le **tableau III.9** :

Température (°C)	200	300	500	700
J_s (Tesla) [$10 \mu\text{m/h}$]	0,161	0,216	0,142	0,271
J_s (Tesla) [$20 \mu\text{m/h}$]	0,19	0,185	0,106	0,204

Tableau III-9 : Evolution des valeurs de J_s en fonction de la température

($V_d \approx 10 \mu\text{m/h}$ et $20 \mu\text{m/h}$)

III.4.3. Etude morphologique

Les différentes photographies réalisées au M.E.B. montrent que plus la température des substrats est élevée et plus les couches sont adhérentes et cela quelle que soit la vitesse de dépôt.

De plus, les dépôts présentent des morphologies très différentes lorsque l'on modifie la température. A titre d'exemple, la **figure III.15** représente deux photographies correspondant à deux dépôts réalisés dans les conditions suivantes :

- vitesse de dépôt : $10 \mu\text{m/h}$,
- épaisseur de la couche : $20 \mu\text{m}$,
- température des substrats : **photo (a)** : 500°C , **photo (b)** : 700°C .

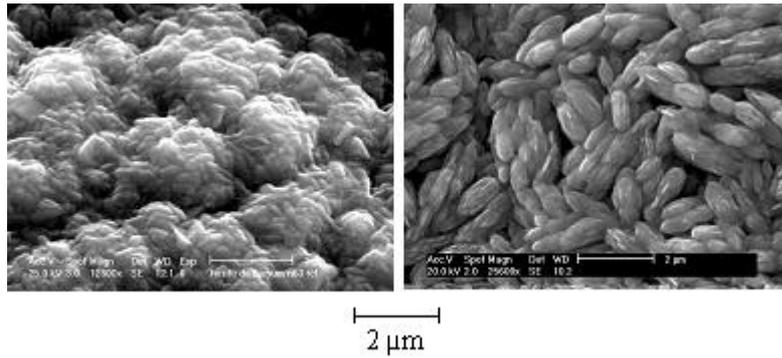


Figure III-15 : Photos M.E.B. de deux dépôts, l'un réalisé à une température de 500°C (a) et le second à 700°C (b)

La photographie (b) obtenue sur un dépôt réalisé à 700°C est bien en accord avec les résultats cristallographiques précédents. En effet, la forme et la disposition des grains que l'on observe sont typiques d'une orientation cristallographique dans le plan de la couche [16]. Autrement dit, cette photographie montre bien des hexagones « couchés ». La longueur des grains observés est voisine de 1,3 μm.

Si la vitesse de dépôt est de l'ordre de **20 μm/h**, la morphologie des couches est totalement différente de celle observée à 10 μm/h. Ce phénomène que nous ne pouvons actuellement expliquer, est mis en évidence sur la **figure III.16** ci-dessous.

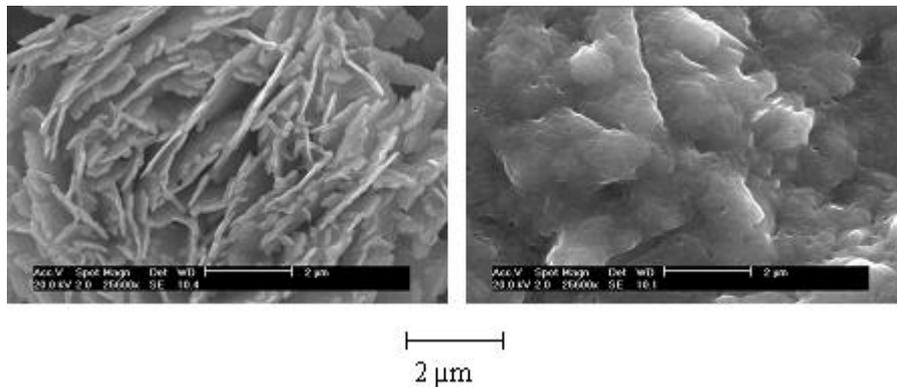


Figure III-16 : Photos M.E.B. de deux dépôts, l'un réalisé à une température de 500°C (a), et le second à 700°C (b) ($V_d \approx 20 \mu\text{m/h}$)

III.4.4. Composition chimique

Le **tableau III.10** regroupe les valeurs du rapport Fer / Baryum mesurées sur des dépôts réalisés à différentes températures. Ces mesures ont été obtenues pour deux vitesses de dépôt différentes.

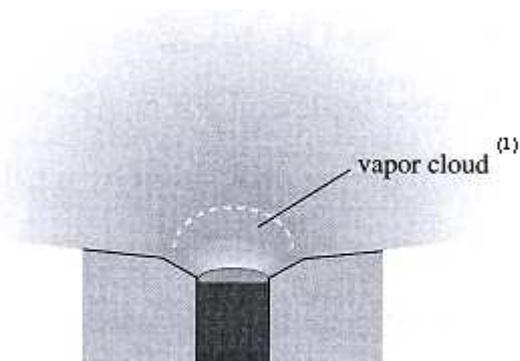
Température (°C)	200	300	500	700
Fe/Ba ($V_d \approx 10 \mu\text{m/h}$)	7,6	7,7	10,6	12,6
Fe/Ba ($V_d \approx 20 \mu\text{m/h}$)	11,1	26,7	17,8	14,6

Tableau III-10 : Evolution du rapport Fer / Baryum en fonction de la température des substrats pour deux vitesses différentes

A faible vitesse de dépôt ($V_d \approx 10 \mu\text{m/h}$), le rapport Fe / Ba augmente avec la température. Pour une vitesse de dépôt supérieure ($V_d \approx 20 \mu\text{m/h}$), il est difficile de déduire une quelconque évolution du rapport Fer / Baryum en fonction de la température des substrats. Dans tous les cas, les dépôts par bombardement électronique ne permettent pas un transfert stœchiométrique de la composition du lingot au substrat contrairement à certaines techniques (laser pulsé notamment). En effet, il se produit des phénomènes d'évaporation préférentielle au cours d'un dépôt. Nous examinerons plus en détail ces phénomènes ultérieurement.

Les valeurs obtenues ici sont supérieures à celles qui ont été mesurées durant la thèse d'Ibrahima WANE. Cela peut venir du fait que, dans notre cas, chaque dépôt a été réalisé à partir d'un lingot neuf.

Enfin, nous constatons que lorsque l'on accroît la vitesse de dépôt ($V_d \approx 20 \mu\text{m/h}$), les valeurs du rapport Fer / Baryum augmentent systématiquement. Ce phénomène peut être dû au fait, qu'aux fortes vitesses d'évaporation, il se forme une zone (nuage de vapeur dense) où le nombre d'atomes évaporés est tel qu'ils subissent entre eux de nombreuses collisions avant d'être éjectés dans le volume de transfert (**figure III.17**) [17]. Il en résulte donc une modification de la composition chimique au niveau de la couche qui peut éventuellement masquer une évolution identique à celle observée à $10 \mu\text{m/h}$ (Fe / Ba \nearrow quand $T_s \nearrow$).



(1) nuage de vapeur dense

Figure III-17 : Répartition dans l'espace des atomes évaporés dans le cas de vitesses importantes

III.4.5. Conclusion

Durant cette étude, nous avons montré que les couches cristallisent à partir d'une température de substrats de 700°C. Cela permet d'éliminer la nécessité d'un recuit post-dépôt engendrant des fissures à la surface qui entraînent une augmentation des pertes au niveau du circulateur intégré. De plus, c'est à cette température que les couches sont les plus adhérentes et présentent le moins de fissures.

Cependant, les valeurs de champ coercitif obtenues sur les couches recuites, sont meilleures lorsque les dépôts sont réalisés à plus faibles températures de substrats.

Dans la suite de nos travaux, nous nous sommes donc placés à une température de 700°C, et nous avons optimisé les autres paramètres de dépôt afin d'essayer d'améliorer les valeurs de l'intensité d'aimantation à saturation et du champ coercitif.

Dans ce qui va suivre, nous allons présenter les résultats obtenus lorsque nous avons fait varier la vitesse de dépôt. En effet, durant l'étude précédente il est apparu que ce paramètre avait une influence sur les propriétés magnétiques des couches.

III.5. Influence de la vitesse de dépôt

Durant cette étude nous avons fait varier la vitesse de dépôt entre 6,3 $\mu\text{m/h}$ et 37,1 $\mu\text{m/h}$, tout en maintenant les autres paramètres constants. La limite supérieure de la vitesse est imposée par des problèmes d'adhérence entre la sous-couche et le ferrite. Nous nous sommes placés dans les conditions suivantes :

température des substrats : 700°C,

épaisseur des couches : $\sim 12 \mu\text{m}$,

pression dans la partie haute de l'enceinte : 0,46 Pa.

Nous avons aussi observé l'influence du recuit, celui-ci étant réalisé dans les mêmes conditions que durant l'étude précédente.

III.5.1. Résultats cristallographiques

Comme observé précédemment, quelle que soit la vitesse de dépôt, avant recuit, les couches sont cristallisées suivant la phase de l'hexaferrite de baryum. De plus, elles présentent toutes une orientation préférentielle dans le plan (hk0). Cela est visible sur la **figure III.18** qui représente les diagrammes de diffraction de deux dépôts non recuits, l'un réalisé à une vitesse de 6,3 $\mu\text{m/h}$, et l'autre à 37,1 $\mu\text{m/h}$.

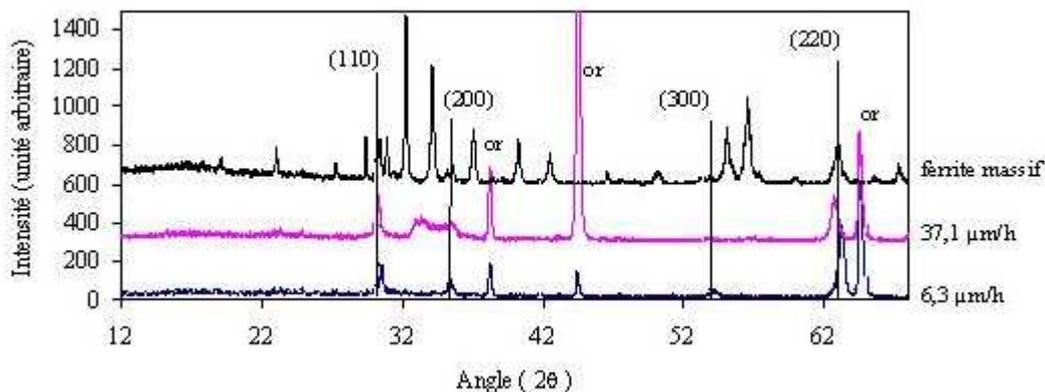


Figure III-18 : Diagrammes de diffraction de deux dépôts non recuits réalisés à 6,3 µm/h et 37,1 µm/h

Ici, les pics de diffraction les plus intenses sont les pics (110) et (220). Il faut noter que les deux pics correspondant à l'orientation recherchée (00ℓ) ne sont pas présents sur les différentes couches. En conclusion, nous pouvons dire que la vitesse de dépôt n'est pas un paramètre qui permet de modifier la cristallisation.

La **figure III.19** page suivante, représente les diagrammes de diffraction de dépôts recuits. Sur cette figure, nous constatons que les couches recuites ne présentent pas d'orientation préférentielle puisque les pics correspondant aux plans (107), (114), (108), (203), (109), (217) et (2011) sont alors visibles sur les diagrammes. Ce phénomène semble s'accroître lorsque la vitesse de dépôt est importante. De plus, nous pouvons observer que le recuit fait apparaître la phase spinelle $BaFe_2O_4$. Comme nous l'avons dit au paragraphe III.5.1., l'apparition de cette phase est principalement due au fait que les couches ne présentent pas la composition du ferrite de baryum massif. Cependant, il existe certainement d'autres phénomènes qui entrent en jeu puisque cette phase secondaire n'est pas systématiquement présente bien que la grande majorité des couches ne possède pas un rapport Fer / Baryum de 12.

III.5.2. Propriétés magnétiques

Dans ce paragraphe, nous allons présenter les différents résultats concernant les propriétés magnétiques obtenus sur les couches, avant et après recuit. Les valeurs sont toutes mesurées en appliquant un champ parallèle à la surface des dépôts.

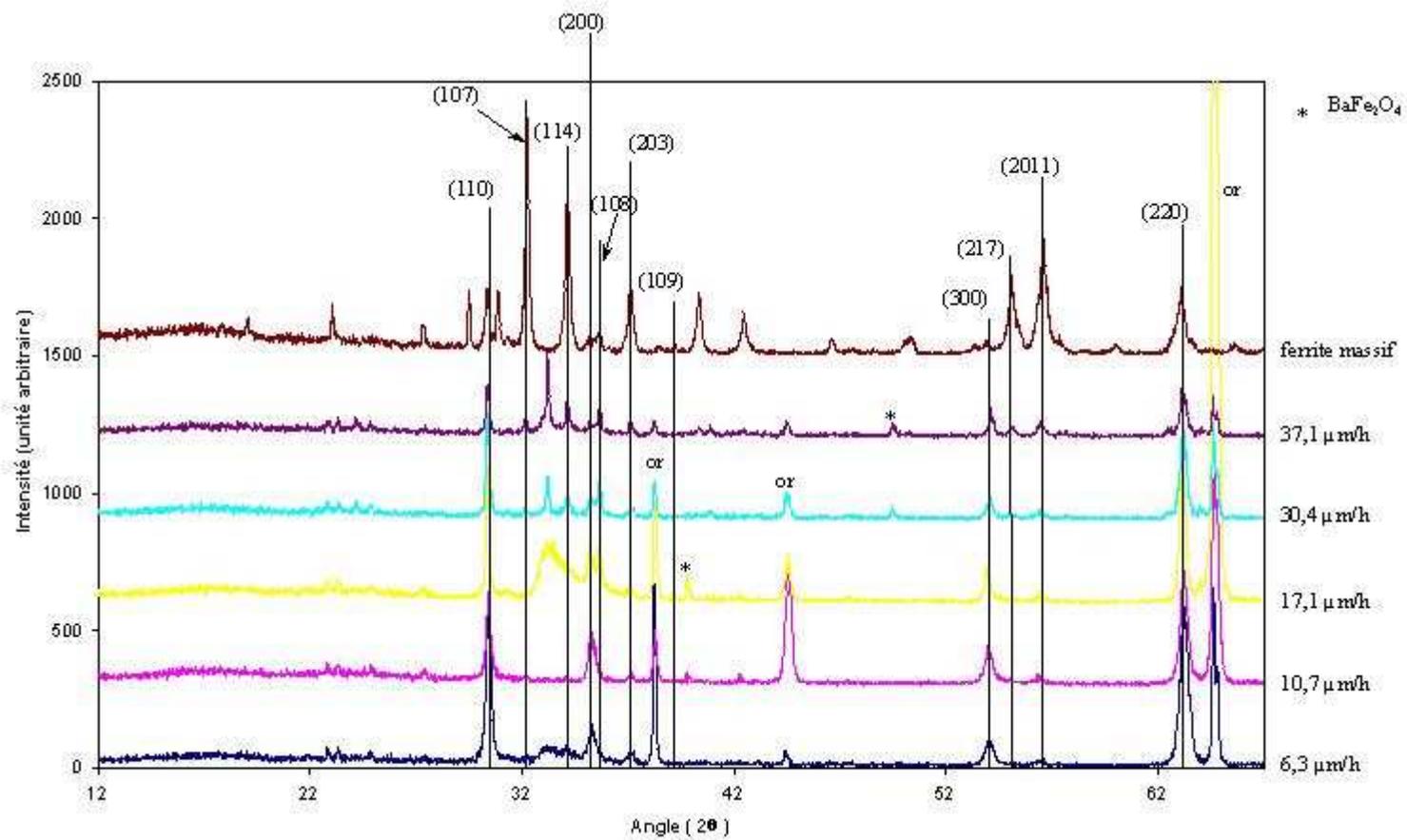


Figure III-19 : Diagrammes de diffraction de couches recuites réalisées à différentes vitesses de dépôt

III.5.2.1. Evolution du champ coercitif

La **figure III.20** représente l'évolution du champ coercitif en fonction de la vitesse de dépôt.

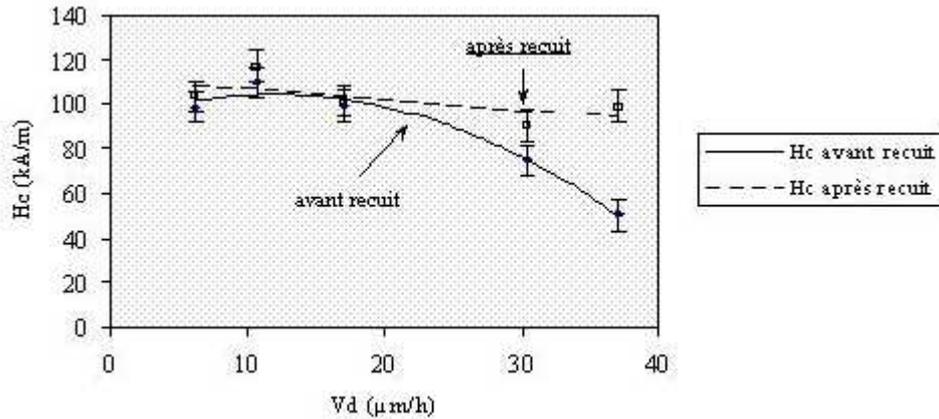


Figure III-20 : Evolution du champ coercitif en fonction de la vitesse de dépôt avant et après recuit

Avant recuit, nous constatons que le champ coercitif a tendance à diminuer lorsque la vitesse de dépôt augmente. Les valeurs de celui-ci sont comprises entre 110 et 50 kA/m. Ce résultat peut s'expliquer par le fait que la taille des grains varie en fonction de la vitesse de dépôt. En effet, comme nous l'avons montré précédemment le champ coercitif et la dimension des grains sont étroitement liés. Le graphique ci-dessous représente l'évolution du champ coercitif en fonction de la taille des grains (T_g) mesurée sur les couches.

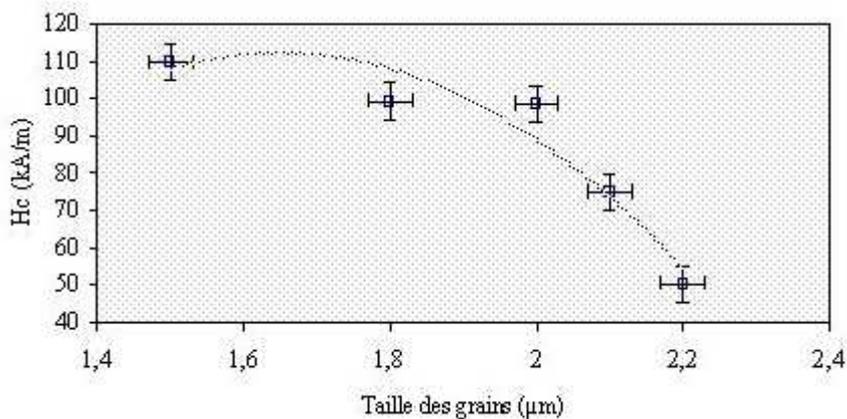


Figure III-21 : Evolution du champ coercitif en fonction de la taille des grains

Si l'on se réfère à la **figure III.13**, nous constatons que nous nous trouvons bien ici dans la configuration multidomaines ($T_g \geq 1 \mu\text{m}$). Dans cette configuration le champ coercitif décroît lorsque la taille des grains augmente. Cela est en accord avec les résultats obtenus puisque plus la vitesse est importante et plus les grains observés sont gros. Ce dernier point n'ayant pas pu être expliqué.

De plus, à partir de la **figure III.20**, nous observons que si la vitesse de dépôt est inférieure à $17 \mu\text{m/h}$, le recuit ne modifie pas les valeurs du champ coercitif mesurées sur les couches. Par contre, au delà de cette vitesse, le recuit post-dépôt permet d'augmenter le champ coercitif. Cela est dû au fait que le recuit modifie la morphologie aux fortes vitesses de dépôt. Ce phénomène est mis en évidence sur la **figure III.22**. Les deux photographies représentent la morphologie d'un même dépôt avant (**figure III.22 (a)**) et après recuit (**figure III.22 (b)**). Ce dépôt a été réalisé à une vitesse de $30 \mu\text{m/h}$.

La taille des grains étant plus faible après recuit, les valeurs de H_c sont plus importantes. Après recuit, les valeurs obtenues sont quasiment constantes et sont comprises entre 91 et 117 kA/m.

En conclusion, nous pouvons dire que les valeurs obtenues sur les dépôts recuits sont acceptables pour la réalisation d'un circulateur intégré. Par contre, avant recuit, à fortes vitesses, elles sont trop faibles. Cela peut être un facteur limitatif. En effet, compte tenu des épaisseurs visées ($\approx 50 \mu\text{m}$), il semble nécessaire de se placer à fortes vitesses de dépôt.

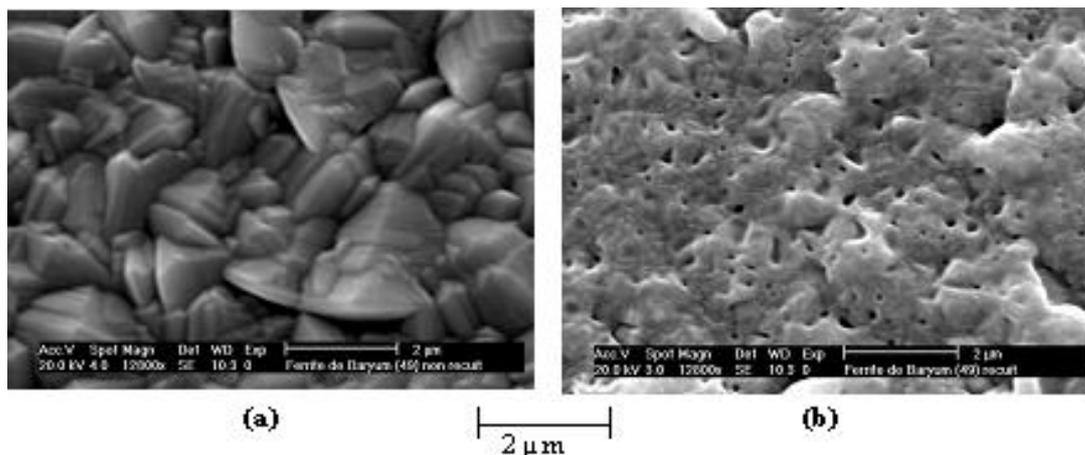


Figure III-22 : Photographies d'un dépôt réalisé à $30 \mu\text{m/h}$, avant (a) et après (b) recuit

III.5.2.2. Evolution de l'aimantation à saturation

La **figure III.23** représente l'évolution de l'intensité d'aimantation à saturation en fonction de la vitesse de dépôt. Ces valeurs ont été mesurées sur des couches non recuites.

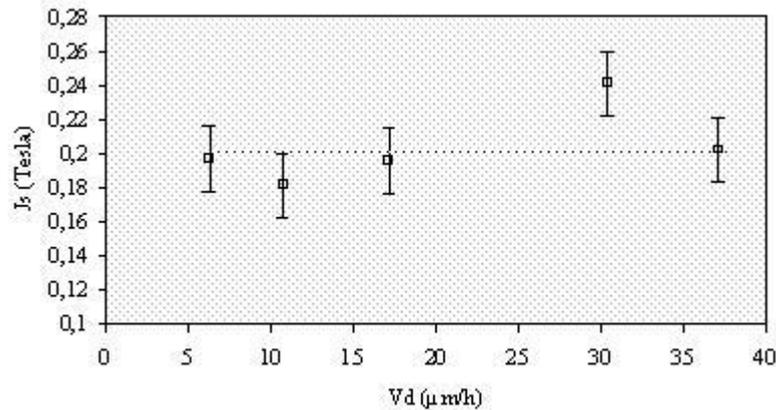


Figure III-23 : Evolution de J_s en fonction de la vitesse de dépôt avant recuit

Compte tenu des imprécisions sur les mesures, nous pouvons dire que J_s est indépendant de ce paramètre de dépôt. En effet, les valeurs mesurées oscillent autour d'une valeur moyenne qui vaut 0,2 Tesla. Les résultats obtenus sur les couches recuites sont identiques. Comme l'indique le **tableau III.11**, elles sont, elles aussi, proches de 0,2 Tesla.

Vitesse (μm/h)	6,3	10,7	17,1	30,4	37,1
J_s (Tesla)	0,197	0,181	0,196	0,241	0,202

Tableau III-11 : Valeurs de l'intensité d'aimantation à saturation mesurées sur des couches recuites

Toutes ces valeurs sont inférieures à celle mesurée sur le ferrite massif. Comme nous l'avons dit précédemment, cela est dû entre autres, d'une part, à la formation d'une couche tampon non magnétique, et, d'autre part, à la présence de la phase spinelle $BaFe_2O_4$.

III.5.3. Etude morphologique

A titre d'exemple, nous avons reporté sur la **figure III.24**, deux photographies représentant deux dépôts recuits réalisés à deux vitesses différentes. La couche obtenue à faible vitesse (**figure III.24 (a)**) présente des grains dont la forme et l'agencement sont typiques d'une orientation dans le plan. Par contre, nous constatons que si la vitesse est plus

importante (**figure III.24 (b)**) la morphologie des dépôts est totalement différente. Cela est en accord avec les résultats cristallographiques, qui ont montré :

- qu'à faibles vitesses, les dépôts recuits possèdent une orientation préférentielle dans le plan (hk0),
- que lorsque cette vitesse augmente il apparaît une désorientation.

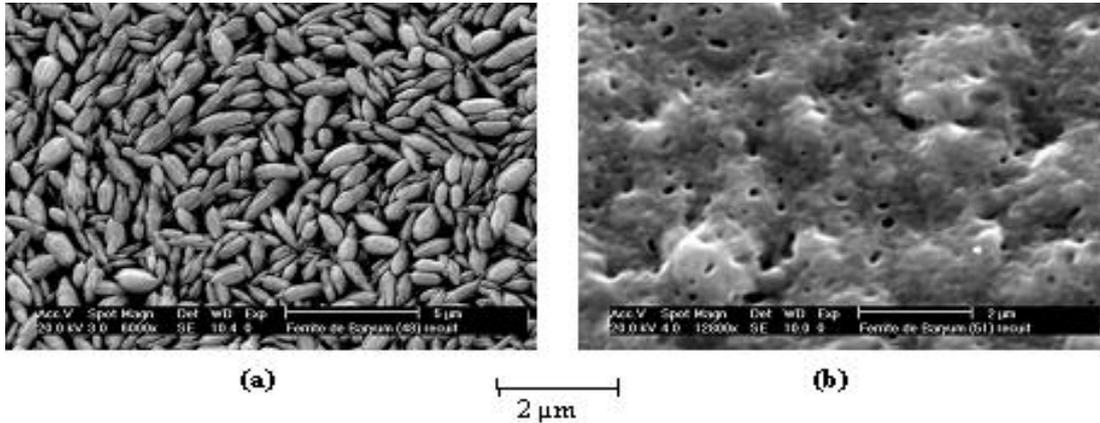


Figure III-24 : Photos de deux dépôts recuits réalisés à deux vitesses différentes :

(a) : $V_d \approx 10,7 \mu\text{m/h}$

(b) : $V_d \approx 37,1 \mu\text{m/h}$

De plus, une étude systématique de l'état de surface des couches a montré que plus la vitesse de dépôt est importante, plus la surface est craquelée.

III.5.4. Composition chimique

Le graphique de la **figure III.25** présente les résultats obtenus par analyse E.D.X sur des échantillons réalisés à différentes vitesses de dépôt, avant et après recuit. Ces analyses E.D.X ont été réalisées avec une énergie égale à 20 keV ce qui correspond à une profondeur d'analyse de l'ordre de 2,2 μm .

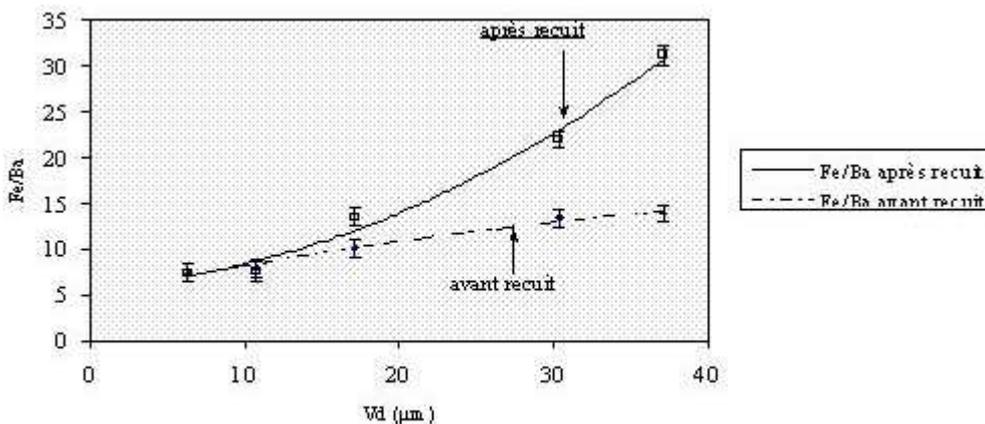


Figure III-25 :

Evolution du rapport Fer / Baryum en fonction de la vitesse de dépôt

Avant recuit, nous constatons que le rapport Fer / Baryum augmente lorsque la vitesse de dépôt croît. En effet, celui-ci varie entre 7,4 et 13,9 pour des vitesses allant de 6,3 à 37,1 $\mu\text{m/h}$. Cela vient du fait, comme nous l'avons dit au paragraphe III.4.4., que les atomes évaporés ne proviennent pas de la surface du lingot, mais du nuage de vapeur dense. Or, la composition de ce nuage varie en fonction du nombre d'atomes évaporés et donc en fonction de la vitesse.

Après recuit, le rapport Fer / Baryum obtenu est identique à celui mesuré sur les couches non recuites lorsque la vitesse de dépôt est inférieure à 17,1 $\mu\text{m/h}$. Si cette vitesse est supérieure, nous observons une augmentation du rapport Fe / Ba par rapport aux valeurs obtenues sur les mêmes couches non recuites. Cela peut être dû à des phénomènes de diffusion qui se produisent lors de la phase de recuit à haute température (voir paragraphe III.5.5.2.). Le rapport Fer / Baryum varie alors entre 7,4 et 31,2.

De plus, il est important de remarquer, sans toutefois pouvoir donner d'explications, que la composition du ferrite de baryum massif est obtenue, avant recuit, sur des couches réalisées à une vitesse proche de 30 $\mu\text{m/h}$.

Enfin, nous constatons que le rapport Fer / Baryum mesuré ici, à **vitesse et température des substrats identiques**, est différent de celui obtenu lors de l'étude portant sur l'influence de la température des substrats (**tableau III.12**).

	rapport Fer / Baryum	
	$V_d \approx 10 \mu\text{m/h}$	$V_d \approx 20 \mu\text{m/h}$
étude température	10,8	9,4
étude vitesse de dépôt	7,9	10,1

Tableau III-12 : Comparaison des rapports Fe / Ba mesurés lors des deux études

Cela peut être dû au fait que les épaisseurs déposées sont différentes d'une étude à l'autre. En effet, lors de l'étude portant sur l'influence de la température des substrats les épaisseurs réalisées étaient de l'ordre de 20 μm alors que durant cette étude elles sont voisines de 10 μm . Cela tend à montrer que lorsque l'on modifie la durée du dépôt les quantités d'atomes évaporés pour chaque espèce varient. Il se produit donc des phénomènes d'évaporation préférentielle durant la phase de dépôt. Cela vient du fait que les températures de fusion de l'oxyde de fer et de l'oxyde de baryum sont différentes. Ces différentes températures sont reportées dans le **tableau III.13**.

éléments	point de fusion (°C)
BaO	1923
Fe ₂ O ₃	1565

Tableau III-13 : Températures de fusion de l'oxyde de fer et de l'oxyde de baryum à pression atmosphérique

D'après ce tableau, nous pouvons dire que l'oxyde de fer a tendance à s'évaporer de façon préférentielle par rapport à l'oxyde de baryum. Afin de confirmer cette hypothèse, nous avons donc étudié la répartition en profondeur des différents éléments constituant la couche. Pour cela nous avons réalisé des analyses E.D.X sur la tranche des dépôts, et des analyses S.I.M.S. Dans le paragraphe suivant nous allons présenter les résultats obtenus par ces deux techniques.

III.5.5. Etude de la répartition en profondeur des différents constituants

III.5.5.1. Analyses E.D.X

Dans ce cas, les analyses par dispersion en énergie des rayons X sont réalisées sur la tranche des dépôts. On réalise une tranche en cassant la couche à l'aide d'une pointe diamantée. Cette façon de procéder implique que la surface de la tranche n'est pas parfaitement plane. Cela peut engendrer une certaine imprécision sur les résultats obtenus (notamment due à des effets d'ombre). La **figure III.26** représente la photographie obtenue au M.E.B. de la tranche d'une couche.

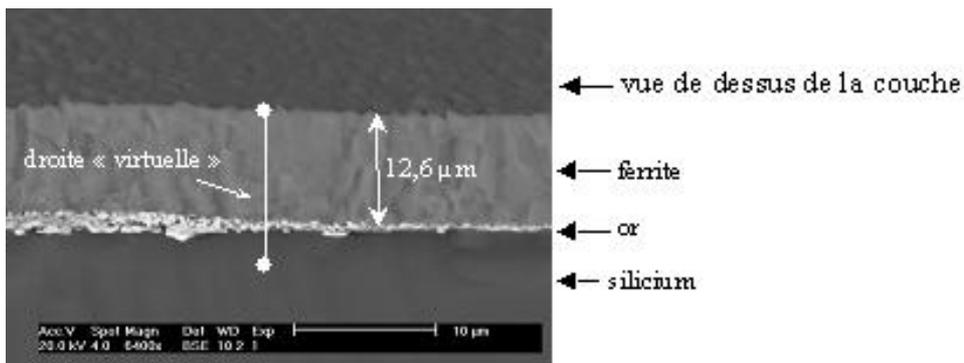


Figure III-26 : Photographie de la tranche d'un dépôt

Le principe de l'analyse consiste à tracer une droite « virtuelle » allant de la surface de la couche au substrat en silicium, puis à discrétiser cette droite en un nombre suffisant de points. Il ne reste alors plus qu'à réaliser des analyses E.D.X en chaque point de la droite.

Dans notre cas, nous avons tracé les profils de concentration pour une couche réalisée à 30,1 $\mu\text{m/h}$, avant et après recuit. De plus, nous avons fixé le nombre de points de discrétisation à 128. Les résultats obtenus sont reportés sur les **figures III.27** et **III.28**.

Nous constatons sur ces graphes que les concentrations en fer et en baryum sont constantes quelle que soit la profondeur d'analyse. Il semblerait donc que les dépôts soient homogènes en profondeur, ce qui remet en cause l'hypothèse précédente. Il est possible que l'épaisseur étudiée ici (12,6 μm) et la précision sur les mesures ne permettent pas d'observer le phénomène d'évaporation préférentielle.

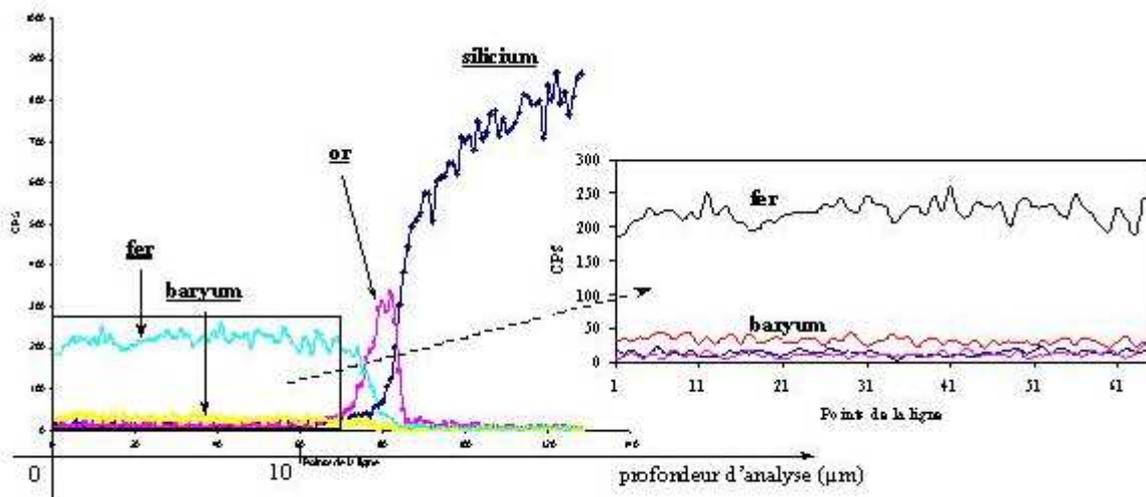


Figure III-27 : Répartition en profondeur des différents éléments pour une couche non recuite

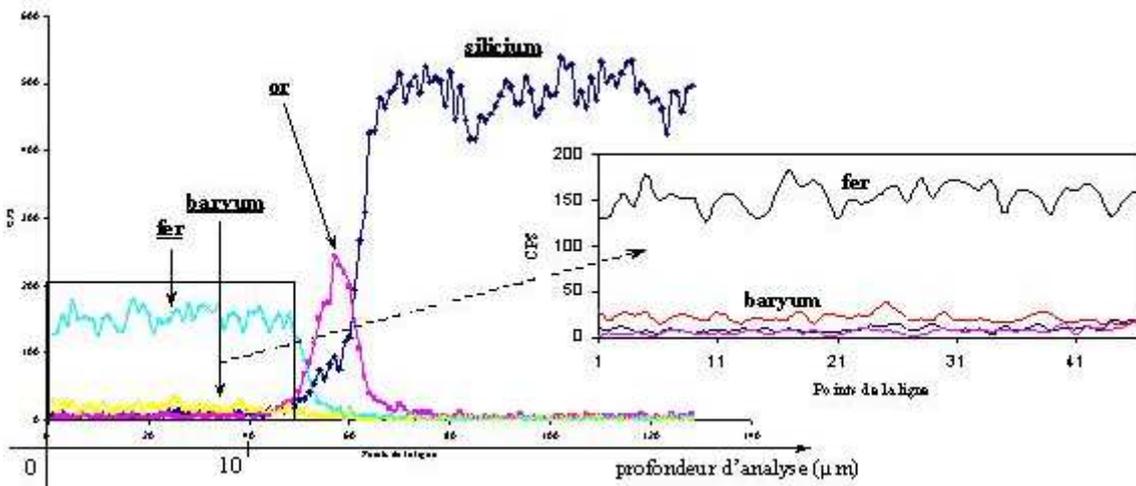


Figure III-28 : Répartition en profondeur des différents éléments pour une couche recuite

De plus, ces courbes ne mettent pas en évidence une diffusion du baryum qui permettrait d'expliquer pourquoi le rapport Fer / Baryum mesuré augmente à la suite de la procédure de recuit à haute température. Afin de confirmer ces résultats, nous avons fait réaliser des analyses S.I.M.S au laboratoire de recherches sur la réactivité des solides de Dijon, sur des dépôts obtenus dans les mêmes conditions expérimentales que précédemment.

III.5.5.2. Analyses SIMS

Les conditions d'acquisition utilisées lors de la réalisation des profils sont les suivantes :

- ions primaires : O^{2+} ,
- énergie primaire : $E_0 = 13 \text{ keV}$,
- courant primaire : $I_p = 200 \text{ nA}$,
- surface balayée : $S = 75 \times 100 \mu\text{m}^2$,
- angle d'incidence : $\theta = 45^\circ$.

Le profil alors obtenu sur le dépôt non recuit est représenté sur la **figure III.29**.

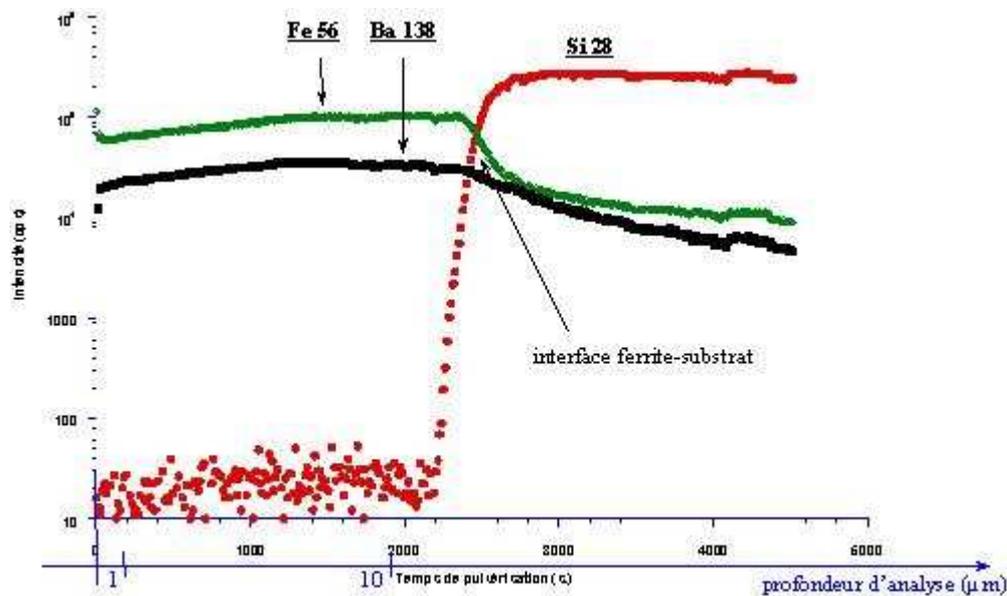


Figure III-29 : Profil SIMS d'un dépôt non recuit

Compte tenu de l'épaisseur importante de la couche à pulvériser (12,6 μm) pour ce type d'analyses, nous avons dû travailler à fort courant primaire et sur une petite surface de façon à obtenir une forte densité de courant. Dans ces conditions « violentes », la résolution

en profondeur n'est pas optimale et les bords des cratères sont loin d'être abrupts. Cela peut expliquer une interface couche-substrat large et des signaux après l'interface encore intenses.

De plus, nous constatons que le film est relativement homogène en profondeur, avec une légère augmentation des signaux caractéristiques du fer et du baryum de la surface vers l'interface. Cependant, ces variations ne semblent pas significatives. En effet, compte tenu des conditions d'acquisition, si l'expérience dure trop longtemps, il est possible d'observer de faibles fluctuations de signaux, que l'on retrouve sur les deux éléments. En conclusion, en ce qui concerne le dépôt non recuit, nous pouvons dire que les résultats obtenus par analyses E.D.X et S.I.M.S. concordent, et tendent à prouver que les couches réalisées sont homogènes en composition sur l'épaisseur.

Nous allons maintenant présenter le profil SIMS obtenu sur le même dépôt après recuit (**figure III.30**).

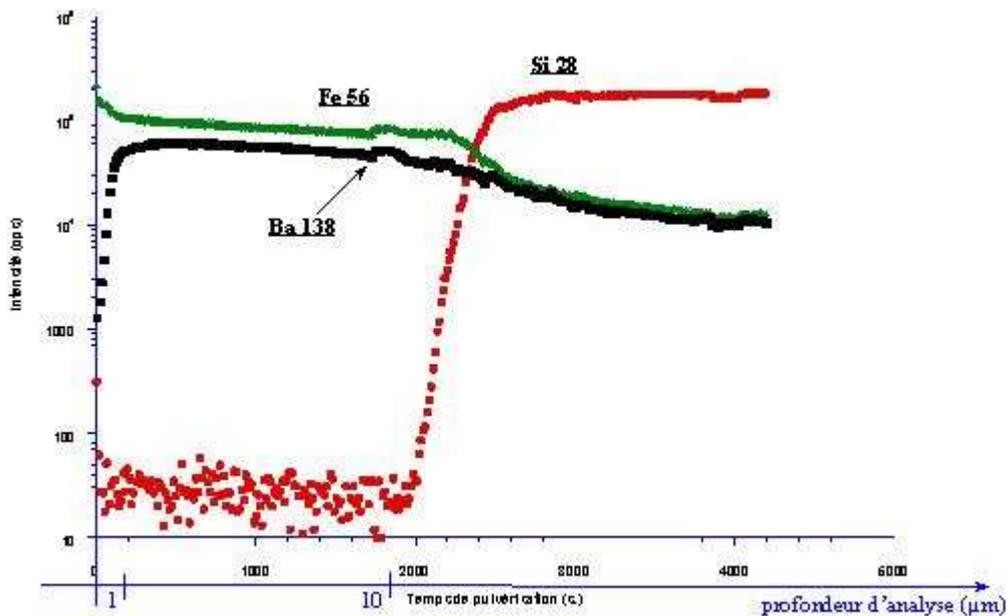


Figure III-30 : Profil SIMS d'un dépôt recuit

Ce profil met en évidence des hétérogénéités de surface probablement dues à une diffusion du baryum au sein de la couche de ferrite qui a lieu lors du recuit post-dépôt. Ce phénomène permet d'expliquer pourquoi le rapport Fer / Baryum augmente après recuit (voir **figure III.25**). En effet, il faut garder à l'esprit que l'analyse par dispersion en énergie des rayons X est une analyse de surface.

De plus, des analyses chimiques effectuées au Service Central d'Analyse du CNRS sur une couche recuite réalisée à 37 $\mu\text{m/h}$, à une température de 700°C et ayant une épaisseur de 13,9 μm , ont donné les résultats suivants :

Ba %	Fe %	$\left(\frac{Fe}{Ba}\right)_{molaire}$
3,08	9,59	$\frac{\left(\frac{9,59}{56}\right)}{\left(\frac{3,08}{138}\right)} = 7,7$

Tableau III-14 : Composition chimique d'une couche ('%' = grammes pour 100 grammes)

Ces analyses, réalisées après avoir réduit la couche sous forme de poudre, permettent de mesurer un rapport molaire global sur l'ensemble du dépôt et ne prennent pas en compte les éventuelles hétérogénéités. Or les mesures E.D.X effectuées sur ce même dépôt ont permis d'obtenir un rapport Fer / Baryum en surface voisin de 31. Cela va bien dans le sens des analyses S.I.M.S. qui mettent en évidence un phénomène de diffusion en surface.

En conclusion, les résultats obtenus par analyses E.D.X et S.I.M.S. concordent et tendent à prouver que les couches réalisées sont relativement homogènes en composition sur l'épaisseur mais que le rapport molaire Fe / Ba du matériau massif n'est pas conservé. De plus, les analyses S.I.M.S. étant plus précises, elles permettent de mettre en évidence un phénomène de diffusion du baryum lors de la phase de recuit.

III.5.6. Conclusion

Durant cette étude, réalisée à une température de 700 °C, nous avons obtenu des couches cristallisées majoritairement suivant la phase de l'hexaferrite de baryum, et ceci quelle que soit la vitesse de dépôt. De plus, elles possèdent toutes une orientation cristallographique préférentielle dans le plan.

Enfin, le rapport Fer / Baryum, qui est un indicateur de la composition chimique des couches, est différent de celui que nous avons obtenu lors de l'étude portant sur l'influence de la température des substrats. Or, tous les autres paramètres étant identiques, seule l'épaisseur de la couche a changé. Cela pourrait être dû à un phénomène d'évaporation préférentielle durant le dépôt. Cependant, les analyses E.D.X réalisées sur la tranche, ainsi que les analyses S.I.M.S., ne semblent pas mettre en évidence ce phénomène. En effet, elles montrent toutes les deux que les couches sont homogènes en profondeur.

Afin de tenter d'expliquer ce phénomène, nous avons donc étudié l'influence de l'épaisseur des couches en maintenant tous les autres paramètres de dépôt constants lors de l'évaporation. Ce sont ces résultats que nous allons présenter dans le paragraphe suivant.

III.6. Etude et caractérisation de films obtenus à différentes épaisseurs

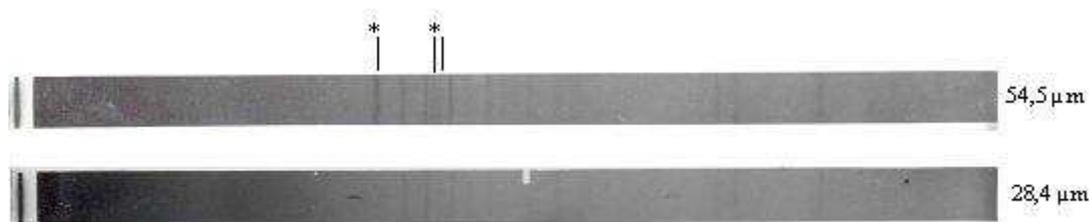
Dans un premier temps, nous nous sommes placés à une température de 700°C et à une vitesse proche de 30 µm/h. En effet, lors de l'étude précédente, c'est à cette vitesse et à cette température que nous avons obtenu sur les couches la composition du ferrite massif. Nous avons alors fait varier l'épaisseur des films entre 11,5 et 54,5 µm. Enfin, les conditions de recuit sont identiques à celles citées au paragraphe III.5.

III.6.1. Résultats cristallographiques

La **figure III.32**, présente les diagrammes de diffraction de dépôts non recuits, réalisés à différentes épaisseurs. Nous constatons sur ces diagrammes que les couches possédant une épaisseur inférieure ou égale à 37,8 µm cristallisent majoritairement suivant la phase de l'hexaferrite de baryum massif. De plus, elles présentent une orientation préférentielle dans le plan (hh0), puisque les pics les plus intenses sont les pics correspondant aux plans (110) et (220). Par contre, si l'épaisseur est plus importante, nous constatons la présence d'un mélange biphasé : $BaFe_{12}O_{19} + BaFe_2O_4$.

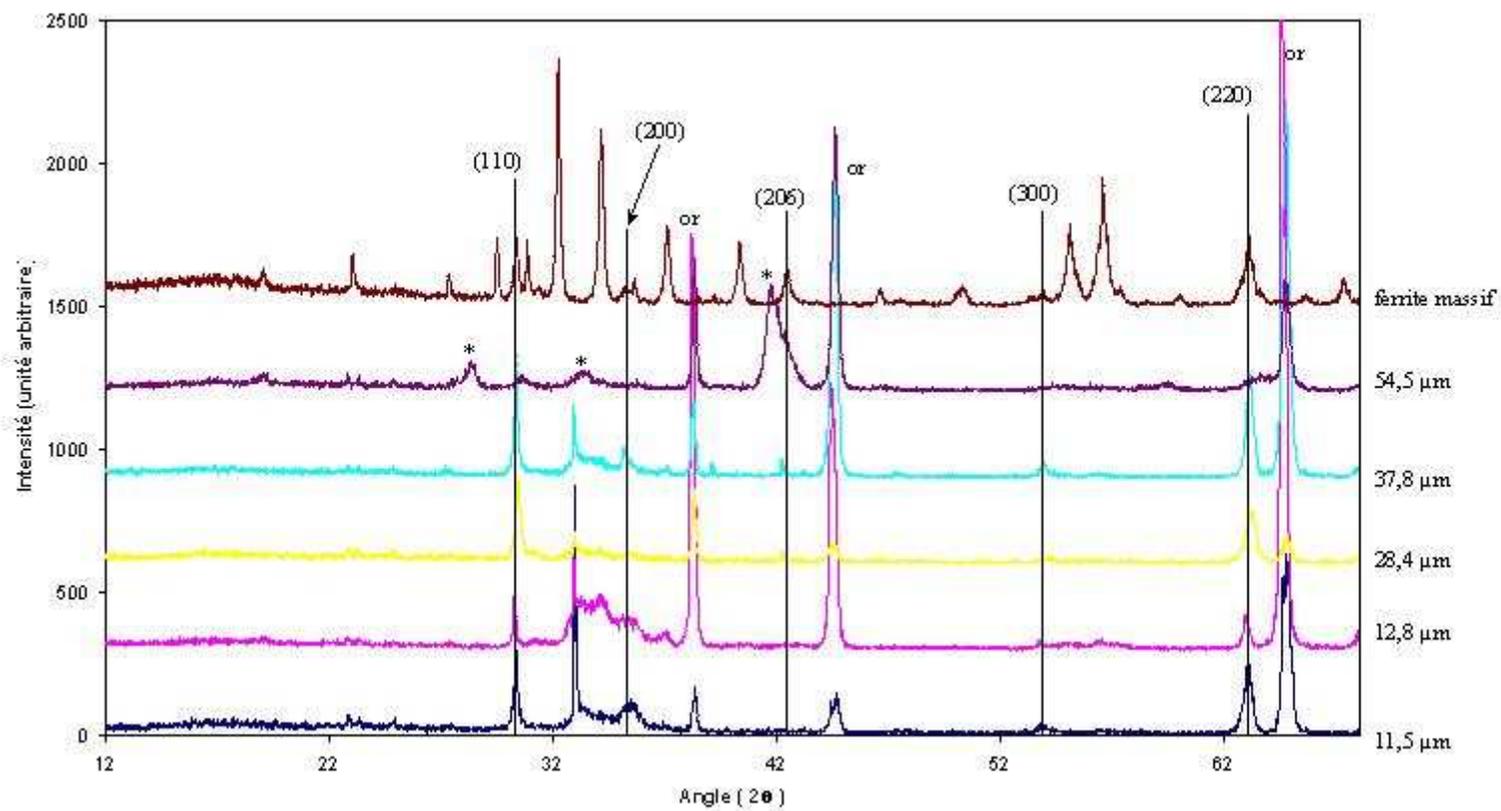
Après recuit, lorsque l'épaisseur est inférieure ou égale à 37,8 µm, les couches cristallisent toujours suivant la phase $BaFe_{12}O_{19}$. Cependant, comme nous l'avons observé durant l'étude précédente, les dépôts présentent maintenant une légère désorientation par rapport au plan (hk0).

Pour une épaisseur de 54,5 µm, il existe toujours la présence du mélange biphasé décelé précédemment. Ce phénomène a aussi été observé à partir des différents films obtenus lors de l'analyse des dépôts dans une chambre de Guinier. Les résultats sont reportés sur la **figure III.31**.



* phase $BaFe_2O_4$

Figure III-31 : Analyses Guinier de deux dépôts recuits, réalisés à deux épaisseurs différentes



* phase BaFe_2O_4

Figure III-32 : Diagrammes de diffraction de dépôts non recuits, réalisés à différentes épaisseurs

L'apparition de ce mélange de phases, aux fortes épaisseurs, risque d'avoir une influence sur les propriétés magnétiques des dépôts. Cela peut être un facteur limitatif pour la réalisation du circulateur intégré. En effet, afin de réduire les pertes d'insertion au niveau du dispositif, nous devons concevoir des couches possédant des épaisseurs importantes ($E_d \geq 50 \mu\text{m}$).

Dans le paragraphe suivant, nous allons présenter les résultats obtenus concernant les propriétés magnétiques que nous avons mesurées lors de cette étude.

III.6.2. Propriétés magnétiques

III.6.2.1. Evolution du champ coercitif

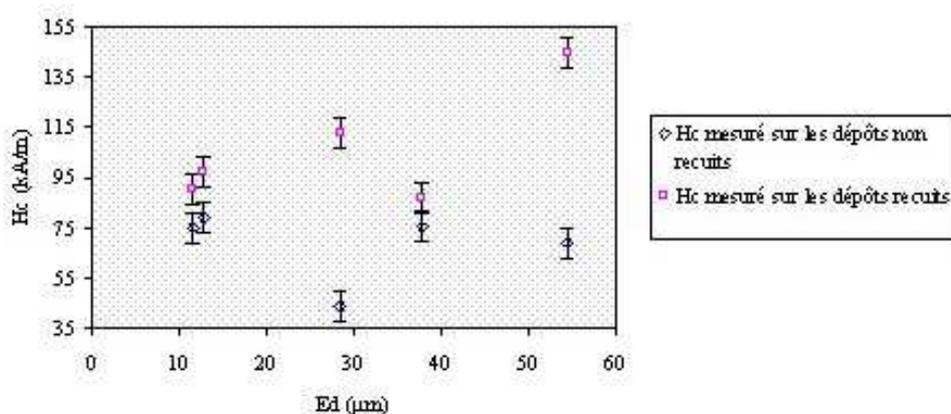


Figure III-33 : Evolution du champ coercitif en fonction de l'épaisseur du dépôt

Sur le graphique de la **figure III.33** est représentée l'évolution du champ coercitif, avant et après recuit, en fonction de l'épaisseur de la couche (E_d).

Nous constatons, avant recuit, que les grandeurs mesurées sont quasiment constantes quelle que soit l'épaisseur déposée. En effet, elles oscillent autour d'une valeur moyenne valant 69 kA/m.

Cette évolution a déjà été observée lors des travaux de S. Nakagawa, sur des couches minces (**figure III.34**). Ici, la technique de dépôt utilisée est la pulvérisation FTS (**F**acing **T**argets **S**puttering), et les films sont réalisés sur une sous-couche de platine orientée (111), elle-même déposée sur un wafer en silicium. La température des substrats a été fixée à 500°C. Enfin, durant cette étude, l'épaisseur des couches a varié entre 8 et 100 nm.

Les différents résultats obtenus concernant le champ coercitif sont reportés sur la **figure III.34**.

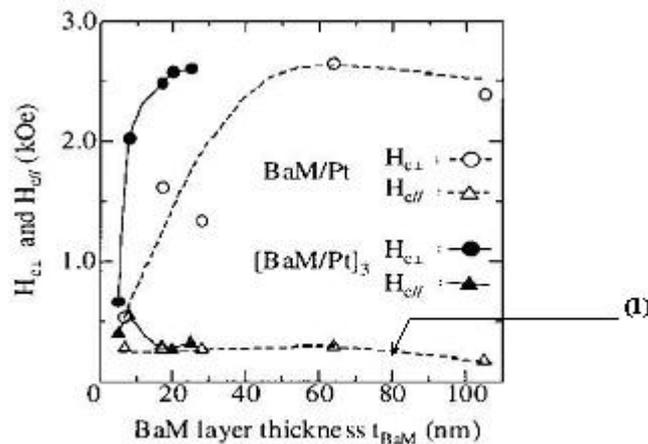


Figure III-34 : Evolution de H_c en fonction de l'épaisseur [18]

La courbe qui nous intéresse ici, est la courbe (1). Nous constatons que le champ coercitif reste constant lorsque l'épaisseur déposée augmente. Cela est bien en accord avec les résultats expérimentaux que nous avons obtenus durant notre étude. Cependant, les valeurs du champ coercitif mesurées ici sont plus faibles. En effet, elles sont voisines de 24 kA/m. Cela est probablement dû au fait que la technique de dépôt utilisée et les épaisseurs visées sont différentes.

Le fait que H_c soit indépendant de l'épaisseur déposée n'est pas surprenant puisque cette grandeur est une grandeur intrinsèque au matériau.

Après recuit, les valeurs du champ coercitif mesurées sont plus importantes qu'avant recuit. En effet, celles-ci varient alors entre 87 et 144 kA/m. Comme précédemment, cela peut s'expliquer par le fait que les grains que nous observons dans ce cas sont plus petits après recuit.

III.6.2.2. Evolution de l'aimantation à saturation

La **figure III.35** donne l'évolution de l'intensité d'aimantation à saturation en fonction de l'épaisseur de la couche (E_d). A partir des valeurs obtenues, il est difficile de déduire une quelconque évolution. En effet, nous pouvons seulement constater que l'intensité d'aimantation à saturation mesurée sur les dépôts non recuits, varie entre 0,11 et 0,257 Tesla. Il est important de noter que la borne inférieure de cet intervalle est trop faible pour la réalisation d'un circulateur intégré, la valeur minimale à atteindre étant de 0,15 Tesla. Enfin,

toutes les grandeurs mesurées sont inférieures à celle du ferrite massif pour les mêmes raisons que lors des études précédentes.

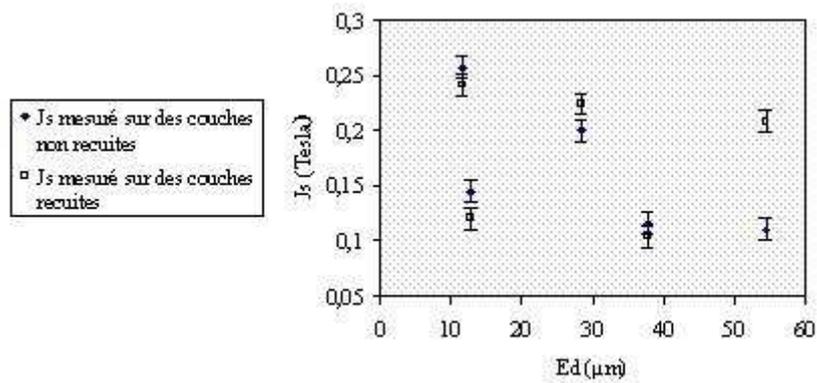


Figure III-35 : Evolution de J_s en fonction de l'épaisseur (E_d), avant et après recuit

Après recuit, l'intensité d'aimantation à saturation ne varie quasiment pas lorsque l'épaisseur de la couche est inférieure à 54,5 μm. Par contre, à cette épaisseur, J_s augmente après recuit. Sa valeur avoisine alors les 0,2 Tesla, au lieu des 0,1 Tesla obtenus précédemment.

III.6.3. Etude morphologique

La **figure III.36** représente l'état de surface de deux dépôts réalisés à la même vitesse mais avec deux épaisseurs différentes. Nous constatons que lorsque l'on augmente l'épaisseur déposée, la surface semble d'avantage fissurée. Cela risque d'être un problème lors de la conception du circulateur intégré. En effet, ces fissures engendrent des pertes.

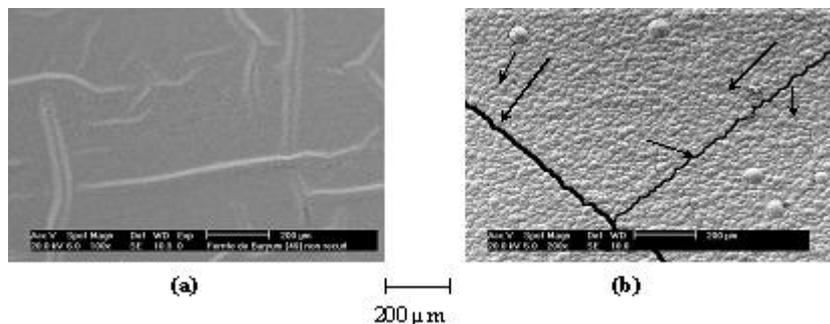


Figure III-36 : Photos M.E.B. de deux dépôts réalisés à la même vitesse mais à deux épaisseurs différentes :

(a) : 12,6 μm - (b) : 54,5 μm

L'augmentation du nombre des fissures est due au fait que les valeurs des coefficients de dilatation thermique sont modifiées lorsque l'épaisseur de la couche varie. Cela a été montré dans le cas de couches minces de titane déposées sur SiO₂. Il a été observé que les coefficients de dilatation thermique des couches de titane variaient entre 21,21.10⁻⁶ /°C et 9,04.10⁻⁶ /°C pour des épaisseurs comprises entre 0,1 et 0,3 μm, ce que représente le schéma de la **figure III.37**.

Ces variations augmentent les contraintes au niveau de la couche et entraînent donc l'apparition de nombreuses fissures.

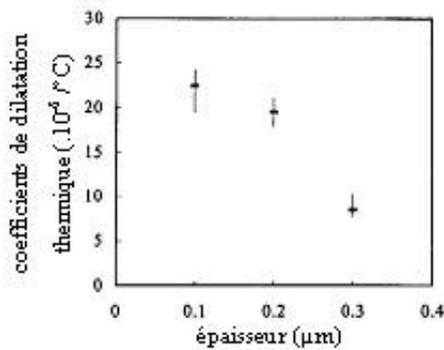


Figure III-37 : Evolution des coefficients de dilatation thermique en fonction de l'épaisseur pour des couches minces de Titane [6]

III.6.4. Composition chimique

Sur la figure ci-dessous, nous avons reporté l'évolution du rapport Fer / Baryum en fonction de l'épaisseur de la couche (E_d) obtenue sur des couches non recuites.

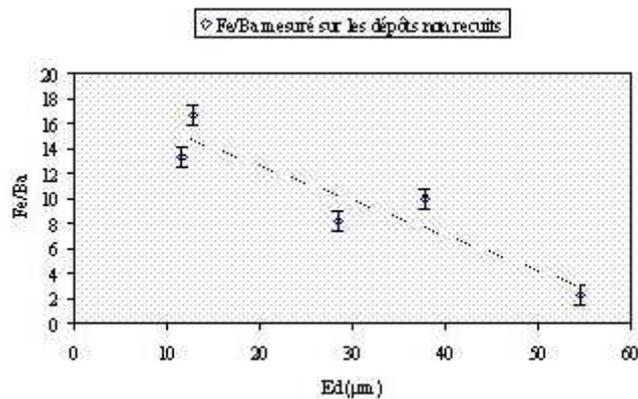


Figure III-38 : Evolution du rapport Fer / Baryum en fonction de l'épaisseur déposée

Avant recuit, nous constatons que le rapport Fer / Baryum décroît lorsque l'épaisseur de la couche augmente. Celui-ci varie entre 16,7 et 2,3. Cela tend à confirmer qu'il existe bien un

phénomène d'évaporation préférentielle durant la phase de dépôt. En effet, comme nous l'avons dit au paragraphe III.5.4., les températures de fusion de l'oxyde de fer et de l'oxyde de baryum sont différentes. Donc, au début du dépôt (aux faibles épaisseurs), les atomes de fer s'évaporent de façon préférentielle, ce qui conduit à un rapport Fer / Baryum important. Par contre, plus nous avançons dans le temps (aux fortes épaisseurs), moins il y a d'atomes de fer, et donc plus le rapport Fe / Ba devient faible.

Il faut noter que pour une épaisseur proche de 50 μm , nous mesurons un rapport Fer / Baryum de 2,3. Cela est en accord avec le diagramme de diffraction obtenu sur ce dépôt, qui, en effet, présentait la phase spinelle BaFe_2O_4 .

Le **tableau III.15** donne les valeurs du rapport Fer / Baryum mesurées sur les couches recuites.

épaisseur (μm)	11,5	12,8	37,8	54,5
Fe / Ba [avant recuit]	13,4	16,7	10	2,3
Fe / Ba [après recuit]	22	23,9	18,9	2,2

Tableau III-15 : Valeurs du rapport Fe / Ba mesurées sur les couches avant et après recuit

Après recuit, nous constatons que le rapport Fer / Baryum augmente lorsque l'épaisseur déposée est inférieure à 54,5 μm . Il varie alors entre 2,2 et 23,9. Comme nous l'avons montré au paragraphe III.5.5.2., ceci est dû à un phénomène de diffusion ayant lieu lors du recuit post-dépôt.

Afin de confirmer ou d'infirmer ces résultats, nous avons effectué des analyses S.I.M.S. et des analyses E.D.X sur la tranche des couches. Les différents résultats sont présentés au paragraphe suivant.

III.6.5. Etude de la répartition en profondeur des différents constituants

III.6.5.1. Analyses E.D.X

La **figure III.39**, donne les profils de concentrations obtenus à partir de deux dépôts non recuits, réalisés avec deux épaisseurs différentes : 28,4 et 54,5 μm . Ces analyses ont été effectuées dans les mêmes conditions que lors de l'étude portant sur l'influence de la vitesse de dépôt. Cependant, ici nous avons délibérément enlevé le profil correspondant au silicium afin de dilater l'échelle et ainsi de rendre les graphiques plus lisibles.

A partir de ces graphiques, nous constatons qu'il se produit bien un phénomène d'évaporation préférentielle durant le dépôt. Ce phénomène est particulièrement visible sur le profil de concentrations **(b)**. En effet, nous observons que les concentrations en baryum et en

fer tendent respectivement à croître et à décroître avec l'épaisseur déposée. Ce résultat est en accord avec les températures de fusion de ces deux oxydes, qui prévoient que les atomes de fer doivent s'évaporer en premier.

Enfin, compte tenu de l'épaisseur, le profil (a) ne permet d'observer que de faibles variations de concentrations en fonction du point de la tranche analysé.

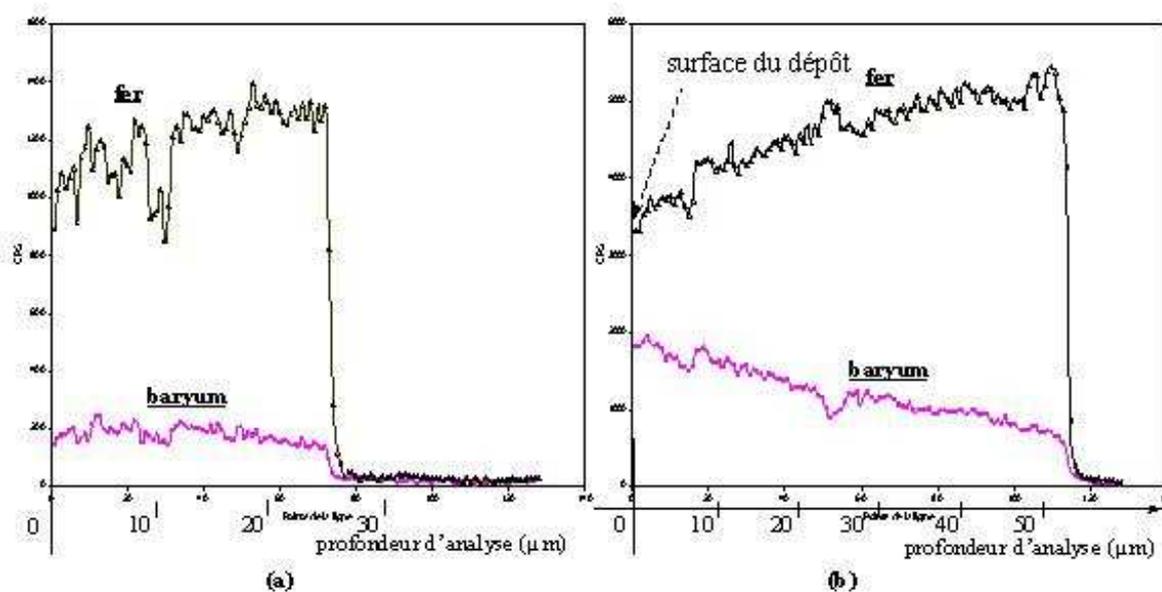


Figure III-39 : Répartitions en profondeur des différents constituants, obtenues à partir de dépôts non recuits
 (a) : $E_d \approx 28,4 \mu\text{m}$
 (b) : $E_d \approx 54,5 \mu\text{m}$

III.6.5.2. Analyses SIMS

La **figure III.40** présente le profil S.I.M.S. d'un dépôt non recuit ayant une épaisseur de $54,5 \mu\text{m}$.

Nous constatons ici que même après quatre heures de pulvérisation l'interface n'a pas pu être atteinte. Cependant cela est suffisant pour dire que la couche étudiée n'est pas complètement homogène en profondeur. En effet, la concentration en fer est pratiquement constante alors que celle en baryum augmente régulièrement avec l'épaisseur déposée. Cela est bien en accord avec les températures de fusion de ces deux oxydes qui prévoient que l'oxyde de fer doit s'évaporer de façon préférentielle. A la surface le phénomène s'inverse.

Probablement que pour de telles épaisseurs, en fin de dépôt, le lingot ne contient pratiquement plus de baryum, ce qui va à l'encontre des résultats obtenus par analyse E.D.X qui ont permis de calculer un rapport Fer / Baryum de 2,3. Nous ne pouvons pas expliquer ce phénomène mais nous devons juste garder à l'esprit que les analyses E.D.X sont effectuées sur une épaisseur de 2,5 µm.

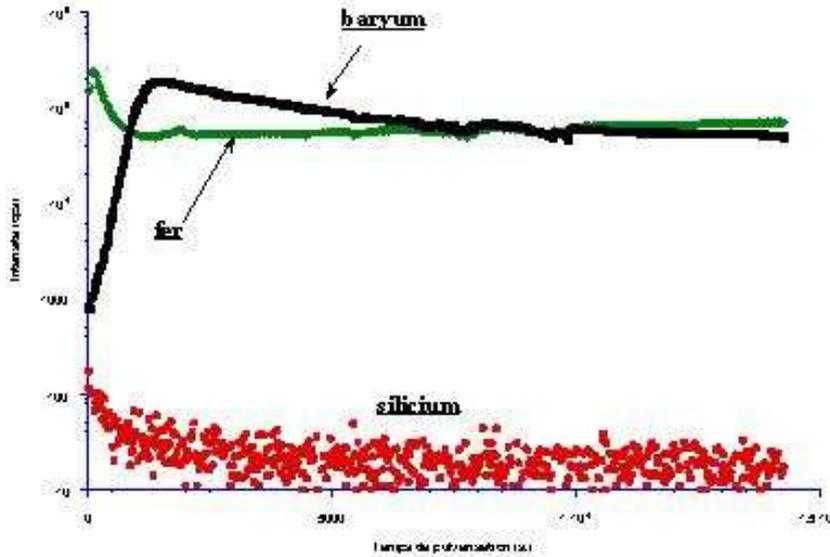


Figure III-40 : Profil SIMS d'un dépôt non recuit ayant une épaisseur de 54,5 µm

De même que précédemment nous avons fait réaliser une analyse chimique sur ce dépôt. Les résultats sont regroupés dans le **tableau III.16**.

Ba %	Fe %	$\left(\frac{Fe}{Ba}\right)_{molaire}$
0,48	3,10	15,9

Tableau III-16 : Analyse chimique réalisée sur une couche ('%' = grammes pour 100 grammes)

Le fait que le rapport molaire obtenu sur l'ensemble de la couche (15,9) soit supérieur à celui mesuré en surface (2,3) tend à prouver qu'en profondeur la quantité de baryum est moindre.

III.6.6. Conclusion

A partir de cette étude, nous sommes capable de tirer les conclusions suivantes :

- tout d'abord, l'intensité d'aimantation à saturation (J_s) est indépendante de l'épaisseur déposée. Le recuit post-dépôt ne semble pas améliorer sa valeur. Dans tous les cas, celle-ci est comprise entre 0,1 et 0,26 Tesla,
- ensuite, avant recuit, le champ coercitif varie entre 43,9 et 79,2 kA/m. Ici, le recuit améliore ces valeurs puisqu'elles sont alors comprises entre 87,1 et 144,5 kA/m,
- enfin, nous avons montré que pour des épaisseurs importantes il existe probablement un phénomène d'évaporation préférentielle durant la phase de dépôt.

Dans ce qui va suivre, nous allons présenter les résultats obtenus pour d'autres vitesses de dépôt (5 et 17 $\mu\text{m/h}$), lorsque nous avons fait varier l'épaisseur des couches.

III.7. Etude et caractérisation de couches ayant différentes épaisseurs, et réalisées à deux vitesses de dépôt distinctes

Afin d'observer si les résultats obtenus précédemment sont valables quelle que soit la vitesse de dépôt, nous avons réalisé une étude portant sur l'influence de l'épaisseur des couches pour deux autres vitesses de dépôt. Ces deux vitesses ont été fixées arbitrairement à 5 $\mu\text{m/h}$ et 17 $\mu\text{m/h}$. Les autres paramètres de dépôt ont été maintenus constants. Les couches ont donc été réalisées dans les conditions suivantes :

$$V_d \approx 5 \mu\text{m/h}$$

$$T_s = 700 \text{ }^\circ\text{C}$$

$$\text{Pression} \approx 0,46 \text{ Pa}$$

$$3,7 \mu\text{m} \leq E_d \leq 13,4 \mu\text{m}$$

$$V_d \approx 17 \mu\text{m/h}$$

$$T_s = 700 \text{ }^\circ\text{C}$$

$$\text{Pression} \approx 0,46 \text{ Pa}$$

$$7,1 \mu\text{m} \leq E_d \leq 36,2 \mu\text{m}$$

III.7.1. Résultats cristallographiques

Comme lors des études précédentes, les diagrammes de diffraction présentent une orientation préférentielle dans le plan (hh0). Cependant, pour une vitesse de 17 $\mu\text{m/h}$, l'apparition du mélange de phases ($\text{BaFe}_2\text{O}_4 + \text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$) se fait pour une épaisseur plus faible qu'à 30 $\mu\text{m/h}$.

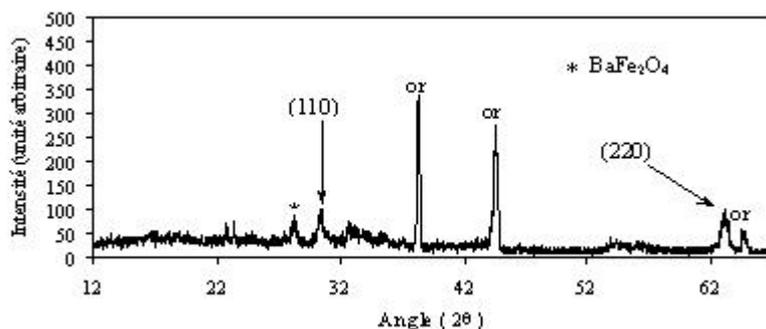


Figure III-41 :
Diagramme de diffraction d'un dépôt ayant une épaisseur de 36,2 μm

En effet, comme le montrent les **figures III.41** et **III.42**, la phase spinelle est déjà présente sur la couche possédant une épaisseur de 36,2 μm .



Figure III-42 : Guinier d'un dépôt ayant une épaisseur de 36,2 μm

Ce phénomène ne paraît pas gênant puisque, compte tenu des épaisseurs visées ($\sim 50 \mu\text{m}$), il semble nécessaire de réaliser les dépôts à de fortes vitesses de dépôt.

III.7.2. Propriétés magnétiques

Il faut noter que toutes les valeurs obtenues ici, l'ont été sur des dépôts non recuits, et en appliquant un champ parallèlement à la surface des couches.

III.7.2.1. Evolution du champ coercitif

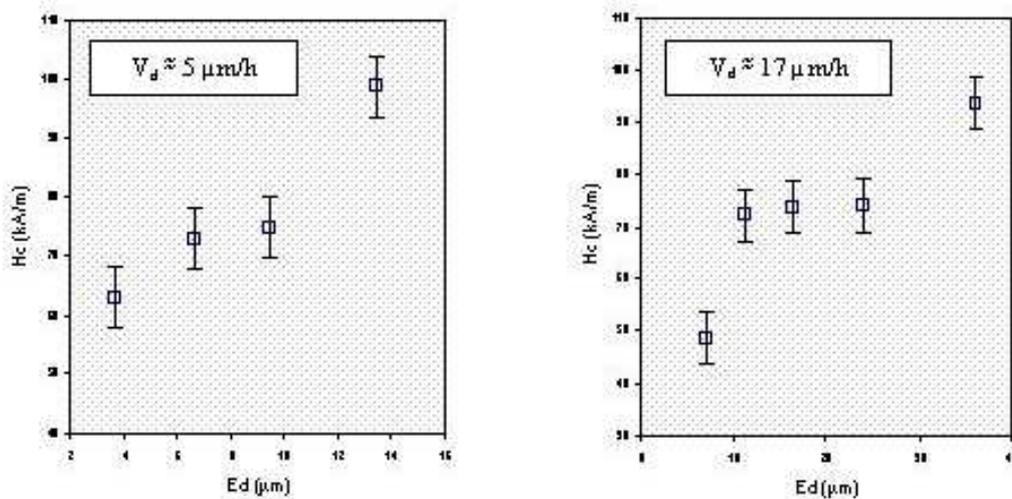


Figure III-43 : Evolution du champ coercitif en fonction de l'épaisseur pour deux vitesses de dépôt

La **figure III.43** donne l'évolution du champ coercitif en fonction de l'épaisseur des couches, pour les deux vitesses de dépôt. A partir de ces graphiques, nous constatons que la valeur de H_c a tendance à augmenter avec l'épaisseur des dépôts, et ceci pour les deux vitesses étudiées ici. Les valeurs mesurées sont comprises entre 48,6 et 98,6 kA/m. Ce résultat

est différent de ce que nous avons observé à 30 $\mu\text{m/h}$. En effet, à cette vitesse, les valeurs du champ coercitif ne varient quasiment pas en fonction de l'épaisseur des couches.

De plus, il faut noter que les grandeurs maximales obtenues ici ($H_c \approx 98 \text{ kA/m}$) sont supérieures à celles mesurées lors de l'étude précédente ($H_c \approx 80 \text{ kA/m}$). Les premières citées étant proches de celle du ferrite de baryum massif ($H_c = 102 \text{ kA/m}$).

Ces résultats sont toujours à comparer à la taille des grains que nous mesurons au M.E.B. En effet, comme précédemment, les grains les plus gros conduisent au champ coercitif le plus faible. A titre d'exemple, nous avons reporté sur la **figure III.44**, deux photographies obtenues sur deux dépôts réalisés à 17 $\mu\text{m/h}$.

Bien que la morphologie soit très différente d'un dépôt à l'autre, il apparaît clairement à partir de ces photos que les grains les plus petits (photographie **b**) conduisent au champ coercitif le plus grand ($H_c \approx 93,4 \text{ kA/m}$).

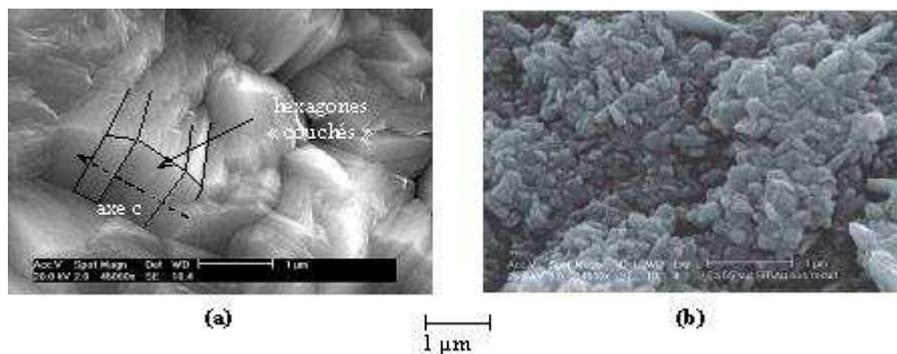


Figure III-44 : Photos M.E.B. de deux dépôts réalisés à 17 $\mu\text{m/h}$

(a) : $H_c \approx 73,8 \text{ kA/m}$

(b) : $H_c \approx 93,4 \text{ kA/m}$

III.7.2.2. Evolution de l'aimantation à saturation

La **figure III.45** donne l'évolution de l'intensité d'aimantation à saturation en fonction de l'épaisseur déposée, pour des vitesses de dépôt identiques aux précédentes.

A partir de ces graphiques, nous pouvons dire que les évolutions apparaissent différentes quand la vitesse de dépôt varie. En effet, lorsque la vitesse est faible ($V_d \approx 5 \mu\text{m/h}$), l'aimantation à saturation augmente, puis atteint un maximum pour une épaisseur proche de 10 μm , et enfin décroît. Par contre, si la vitesse est plus importante ($V_d \approx 17 \mu\text{m/h}$), l'intensité d'aimantation à saturation diminue lorsque l'épaisseur augmente. Cependant, il faut

garder à l'esprit que les domaines d'études, en ce qui concerne les épaisseurs, ne sont pas identiques pour les deux vitesses. Cela peut expliquer ces différences de résultats.

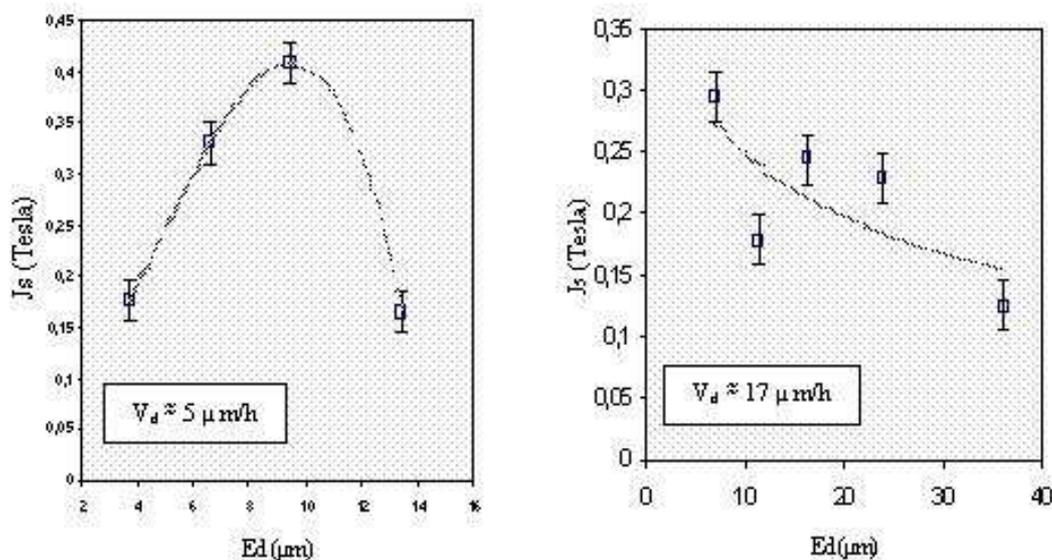


Figure III-45 : Evolution de l'intensité d'aimantation à saturation en fonction de l'épaisseur déposée pour deux vitesses d'évaporation différentes

Les valeurs maximales obtenues lors de cette étude, sont proches de celle du ferrite de baryum massif ($J_s = 0,39$ Tesla). Enfin, l'apparition du mélange de phase ($\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19} + \text{BaFe}_2\text{O}_4$) pour une épaisseur de $36,2 \mu\text{m}$ et une vitesse de dépôt de $17 \mu\text{m/h}$, entraîne une chute importante de l'aimantation à saturation. En effet, dans ces conditions J_s ne vaut plus que $0,12$ Tesla.

III.7.3. Composition chimique

L'évolution du rapport Fe / Ba en fonction de l'épaisseur des couches est représentée sur la **figure III.46**.

Nous constatons que, quelle que soit la vitesse de dépôt, le rapport Fer / Baryum décroît lorsque l'épaisseur de la couche augmente. Il varie entre $24,7$ et $7,4$ lorsque la vitesse vaut $5 \mu\text{m/h}$, et entre $17,9$ et $5,6$ à $17 \mu\text{m/h}$. Ces évolutions sont bien en accord avec les résultats obtenus lors de l'étude à $30 \mu\text{m/h}$. Ces graphiques confirment l'existence d'un phénomène d'évaporation préférentielle au cours de la phase de dépôt. Cela reste vrai quelles que soient les vitesses et les épaisseurs.

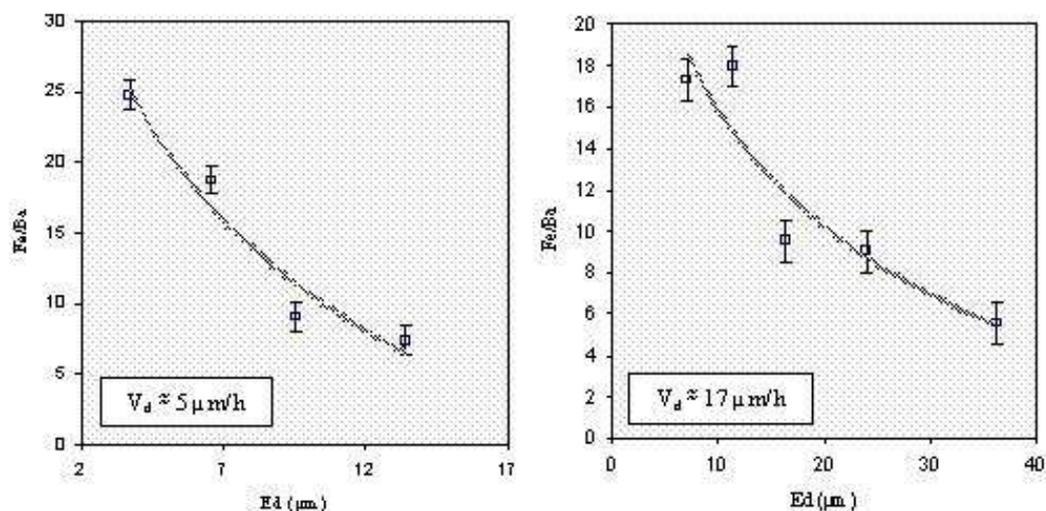


Figure III-46 : Evolution du rapport Fer / Baryum en fonction de l'épaisseur des couches pour deux vitesses différentes

III.7.4. Conclusion

La principale conclusion, que nous pouvons tirer de cette étude, est qu'il existe bien un phénomène d'évaporation préférentielle durant la phase de dépôt. De plus, celui-ci se produit quels que soient les paramètres choisis.

Afin de contourner ce problème, le laboratoire est en train d'acquérir un bâti d'évaporation équipé de trois sources différentes. Cet équipement permettra d'évaporer de façon séparée l'oxyde de fer et l'oxyde de baryum, de telle sorte que la composition chimique des couches sera contrôlée.

Cependant, comme le montre la **figure III.47**, l'utilisation de deux sources distinctes nécessite de prendre en compte certains phénomènes d'interaction.

Afin de simuler ces phénomènes, et ainsi d'optimiser la position des différents creusets dans l'enceinte, une thèse est actuellement en cours au sein du laboratoire. Ces travaux sont effectués par Pierre Aubreton.

Lors de notre étude, nous avons obtenu des propriétés magnétiques acceptables compte tenu de l'application visée. Cependant, un problème de taille subsiste. En effet, toutes les études réalisées jusqu'à présent ont mis en évidence une orientation cristallographique préférentielle dans le plan des couches. Or, comme nous l'avons montré au chapitre I, pour réaliser le circulateur, il faut que les dépôts possèdent une orientation selon l'axe c perpendiculaire à la surface. Pour ce faire, nous avons donc mis au point un porte-substrats

équipé d'un solénoïde permettant de réaliser des dépôts sous champ, et nous avons observé l'influence de la nature du substrat sur la cristallisation. Nous présentons ces travaux dans le paragraphe suivant.

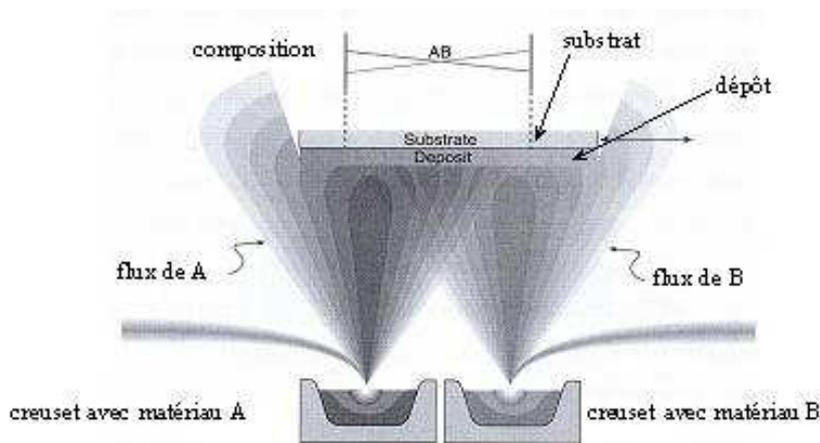


Figure III-47 : Interaction des atomes issues de deux sources distinctes [19]

III.8. Influence de la nature du substrat et réalisation de dépôts sous champ

III.8.1. Influence de la nature du substrat

Comme nous l'avons vu, quelles que soient les conditions de dépôt, toutes les couches présentent une orientation cristallographique préférentielle dans le plan du film. Cela étant en grande partie dû au substrat, nous avons essayé d'optimiser la nature de celui-ci, afin de favoriser une orientation cristallographique selon l'axe c perpendiculaire. La littérature montre qu'il est possible d'obtenir l'orientation souhaitée en réalisant les dépôts directement sur corindon ou sur silicium orienté (111) [20].

La structure corindon doit son nom à α - Al_2O_3 . Elle est caractérisée par un empilement hexagonal compact déformé d'anions oxygène, dans lequel les cations métalliques M^{3+} occupent les 2/3 des sites octaédriques (**figure III.48**).

Nous avons donc simulé, grâce au logiciel « **Diamond** », les mailles cristallines de l'hexaferrite de baryum et du corindon dans le plan (00ℓ) , puis celle du silicium dans le plan (111). Les différents résultats obtenus sont regroupés sur la **figure III.49**.

A partir de ces simulations, nous avons mesuré les distances entre les atomes (d) pour les différents substrats étudiés, et nous les avons comparées avec celles obtenues sur le ferrite de baryum massif. Tous les résultats sont regroupés dans le **tableau III.17**.

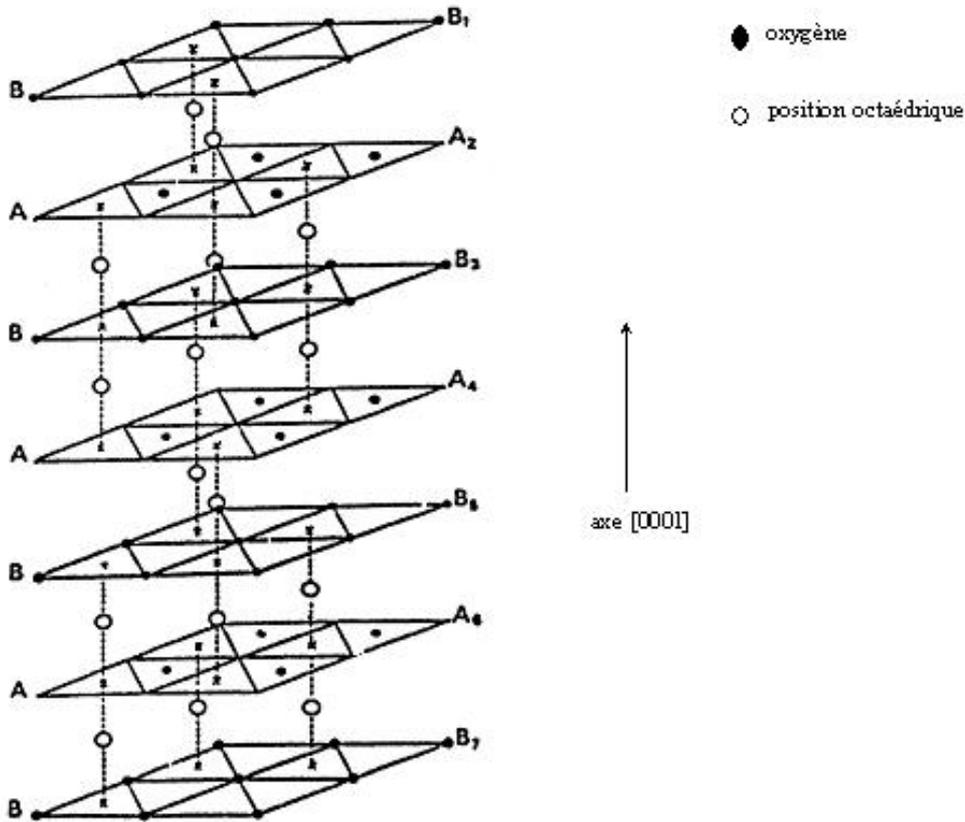


Figure III-48 : Structure corindon

	hexaferrite de baryum (00ℓ)	silicium (111)	corindon (000ℓ)
distances (d)	$d_{\text{Fe-Fe}} = 2,887 \text{ \AA}$ $d_{\text{O-O}} = 2,570 \text{ \AA}$	$d_{\text{Si-Si}} = 3,840 \text{ \AA}$	$d_{\text{O-O}} = 2,507 \text{ \AA}$ ou $2,875 \text{ \AA}$

Tableau III-17 : Tableau récapitulatif des résultats obtenus

Nous pouvons constater qu'il existe seulement un désaccord de 2,45 % entre $d_{\text{O-O}}$ de l'hexaferrite de baryum et $d_{\text{O-O}}$ du corindon(000ℓ). De plus, pour ce qui est du silicium (111), nous pouvons déduire la loi suivante : $3 \cdot d_{\text{O-O}} = 2 \cdot d_{\text{Si-Si}}$ à 0,39 % près. Il existe donc une concordance satisfaisante (à 10% près) entre les distances périodiques des substrats et celles du matériau déposé, qui permet de favoriser la croissance épitaxiale d'un film mono-orienté [21].

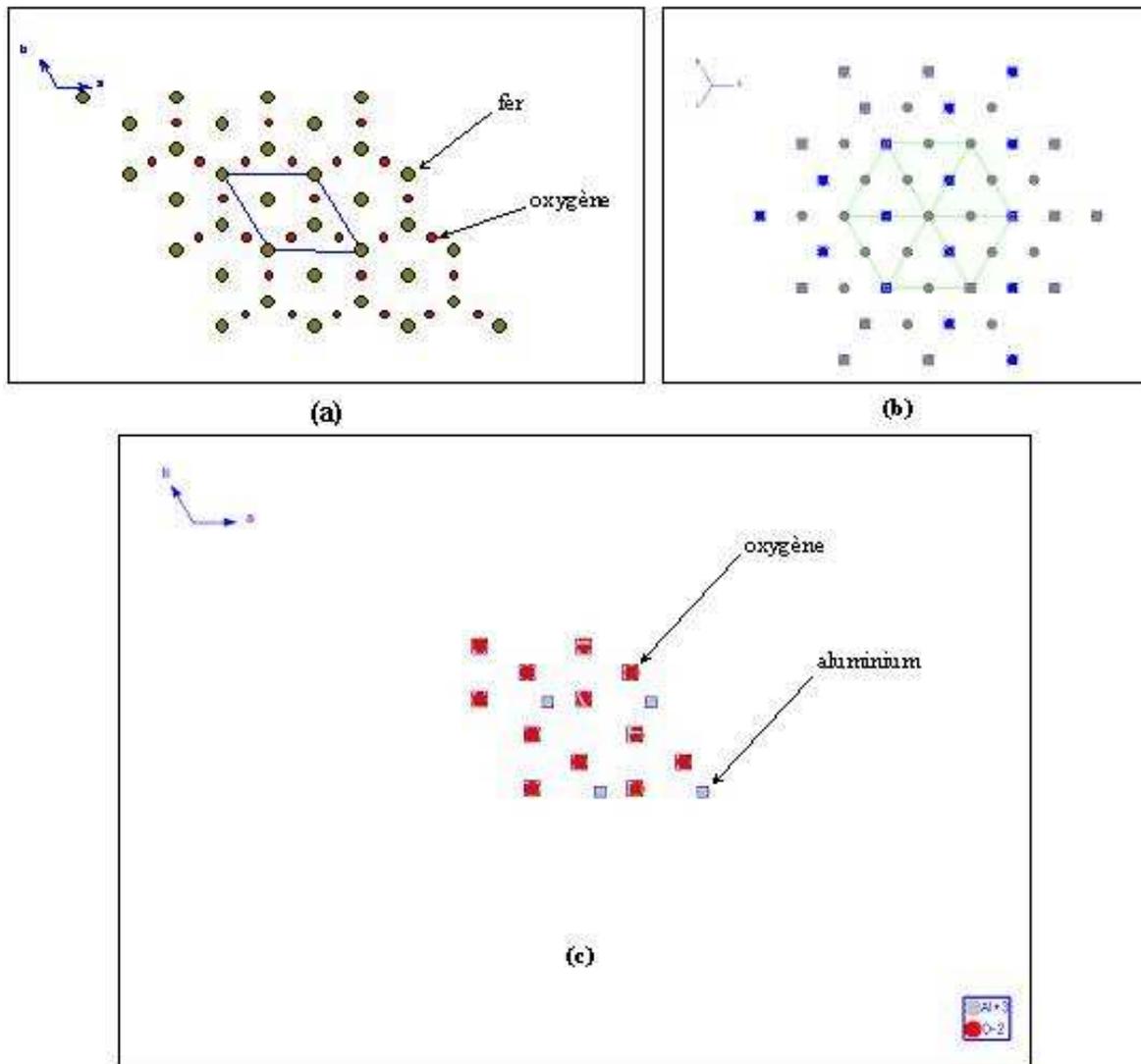


Figure III-49 : Simulation à l'aide du logiciel Diamond des mailles cristallines :

(a) : de l'hexaferrite de baryum (00ℓ),

(b) : du silicium (111)

(c) : du corindon (000ℓ)

Nous avons alors réalisé quelques dépôts dans diverses conditions (**tableau III.18**), afin de confronter les résultats expérimentaux aux résultats théoriques. Dans tous les cas, la température des substrats est de 700°C , et la pression dans la partie haute de l'enceinte vaut $0,46\text{ Pa}$.

	dépôt n°1	dépôt n°2	dépôt n°3
substrat	Si (111)	Al ₂ O ₃ (000ℓ)	Al ₂ O ₃ (000ℓ)
vitesse de dépôt (μm/h)	8,8	17,8	6,1
épaisseur du dépôt (μm)	5,1	22,9	4,1

Tableau III-18 : Tableau récapitulatif des paramètres de dépôt

Nous avons ainsi obtenu les diagrammes de diffraction reportés sur la **figure III.50**. Sur ces diagrammes, nous constatons que l'orientation recherchée (00ℓ) n'est pas obtenue, et ceci quelle que soit la nature du substrat utilisé.

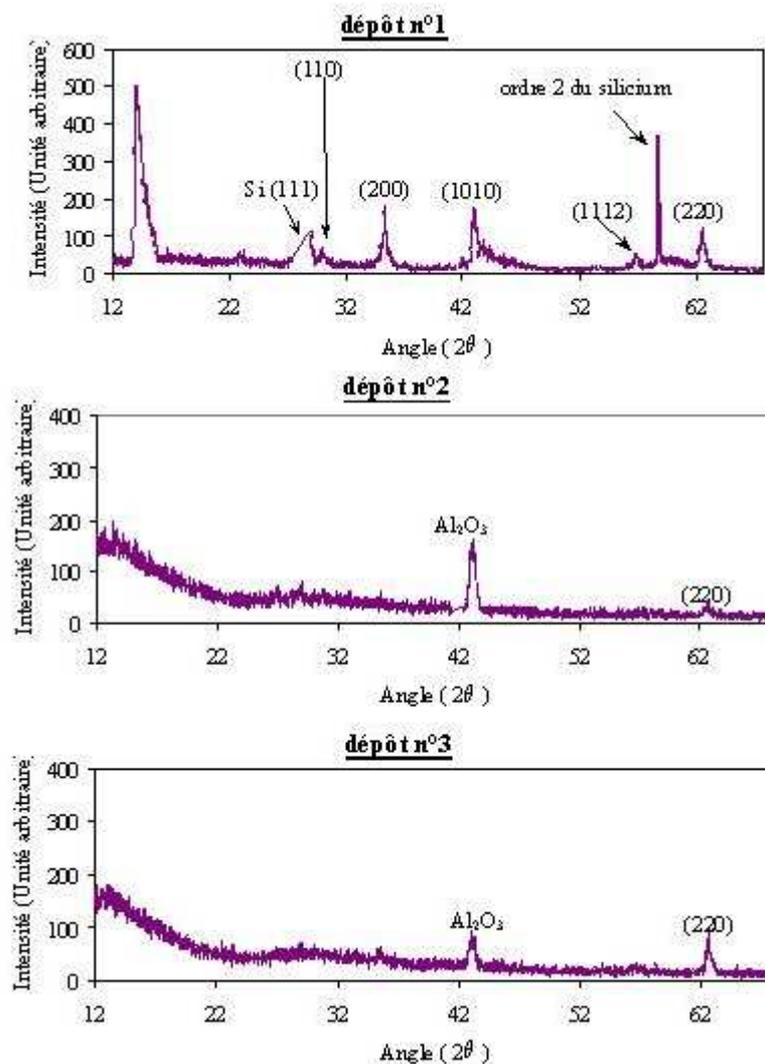


Figure III-50 : Diagrammes de diffraction

Sur silicium orienté (111), les couches cristallisent mais ne possèdent pas d'orientation préférentielle. En effet, les pics (110), (200), (1010), (1112) et (220) sont visibles. Cela présente une différence par rapport aux résultats obtenus précédemment, où nous observions uniquement une orientation préférentielle dans le plan de la couche.

De même, sur substrat corindon (000ℓ) les résultats obtenus ne sont pas ceux espérés. En effet, dans ce cas il apparaît une orientation préférentielle dans le plan de la couche (220).

Dans notre cas, il semble donc que les substrats testés ne sont pas les plus appropriés pour favoriser une orientation cristallographique perpendiculaire au plan de la couche. Cela peut venir du fait que les épaisseurs réalisées ici et la technique de dépôt employée sont différentes de celles que l'on rencontre habituellement dans la littérature. Enfin, cette dernière montre qu'il existe d'autres substrats qui permettent d'obtenir cette orientation : GGG (111), ZnO (001) [22]. Cependant, ils n'ont pas été testés durant notre étude.

Les couches effectuées sur corindon (000ℓ) ont été recuites dans les mêmes conditions que lors des études précédentes. La **figure III.51** donne le diagramme de diffraction obtenu à partir du dépôt n°3 recuit.

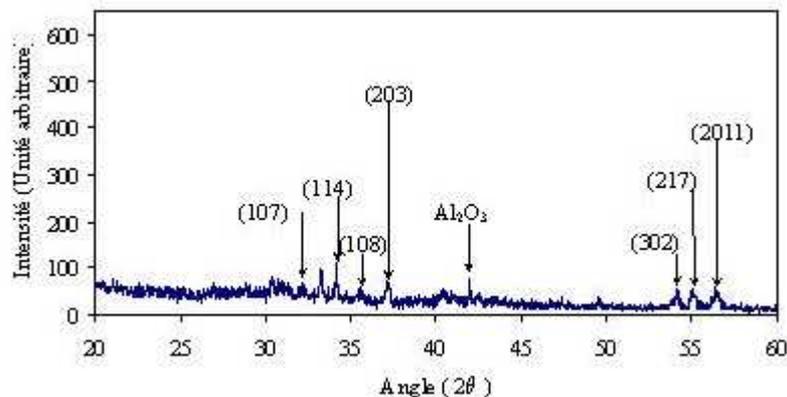


Figure III-51 : Diagramme de diffraction du dépôt n°3 recuit

Nous remarquons ici que le fait de recuire les dépôts entraîne une désorientation des couches qui ne présentent plus l'orientation préférentielle (hk0).

III.8.2. Réalisation de dépôts sous champ

Une autre solution pour tenter d'orienter les couches selon l'axe c perpendiculaire est de réaliser les dépôts sous champ. De nombreux travaux ont été publiés sur le sujet. En particulier, les résultats de Z. G. Ji montrent qu'il est possible de modifier l'orientation cristallographique par application d'un champ (6 mTesla) durant la phase de dépôt [23].

Nous avons donc utilisé le dispositif décrit au chapitre II et nous avons appliqué un champ magnétique de 0,04 Tesla durant le dépôt. De plus, toutes les couches ont été réalisées dans les conditions suivantes :

- vitesse de dépôt : $\sim 13,5 \mu\text{m/h}$,
- épaisseur des couches : $\sim 12 \mu\text{m}$.

Nous avons alors fait varier la température des substrats entre 600 et 700°C. Il est important de noter que contrairement au montage utilisé durant les études précédentes, ici, le chauffage se fait par conduction. La température lue grâce au thermocouple est donc la température réellement appliquée sur les substrats.

Nous avons alors obtenu les diagrammes de diffraction de la **figure III.52**.

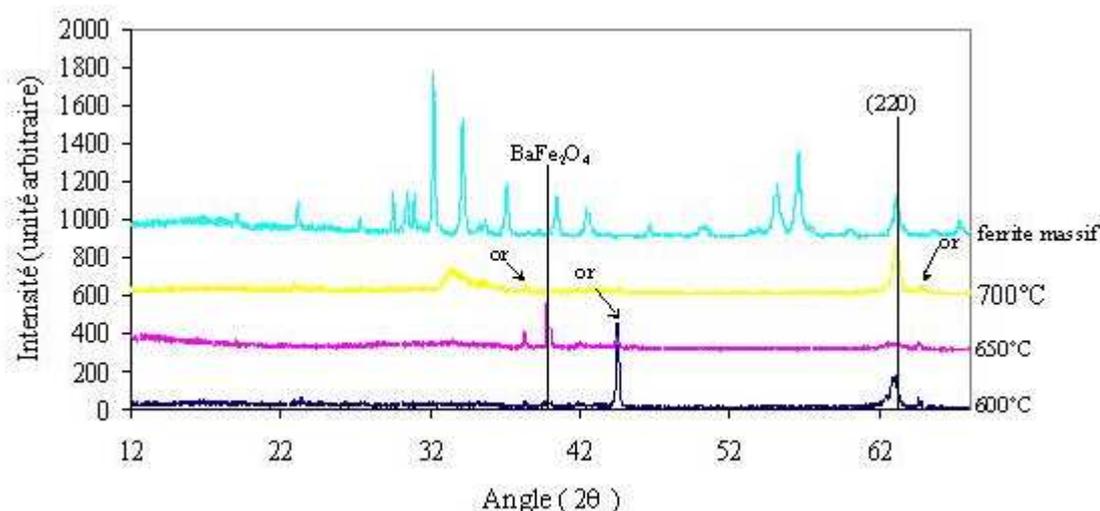


Figure III-52 : Diagrammes de diffraction de dépôts réalisés sous champ

A partir de ces diagrammes, nous constatons que les couches présentent soit la phase BaFe₁₂O₁₉, soit la phase BaFe₂O₄. De plus, nous n'obtenons pas l'orientation souhaitée (00 ℓ). En effet, les dépôts possèdent une orientation préférentielle dans le plan puisque seul est visible le pic de diffraction correspondant au plan (220) lorsque la couche est cristallisée selon la phase de l'hexaferrite.

En conclusion nous pouvons dire que le fait d'appliquer, dans ces conditions, un champ magnétique durant la phase de dépôt ne permet pas d'orienter les couches selon l'axe c perpendiculaire.

III.9. Conclusions et perspectives

Durant ces travaux, nous avons obtenu des couches épaisses d'hexaferrite de baryum possédant des propriétés magnétiques compatibles avec la réalisation d'un circulateur intégré fonctionnant autour de 70 GHz. En effet, dans la majorité des cas, l'intensité d'aimantation à saturation mesurée varie entre 0,15 et 0,24 Tesla et le champ coercitif est compris entre 44 et 267 kA/m. De plus, il est important de remarquer que les valeurs de ce dernier sont plus importantes après recuit.

Cependant, certains problèmes persistent. En effet, les couches obtenues après recuit présentent des fissures importantes à leur surface qui peuvent entraîner des pertes au niveau du circulateur. Celles-ci pourront être réduites ⁽¹⁾ grâce à l'utilisation d'un four de recuits rapides (RTA), qui est en cours de mise au point au sein de l'équipe.

De plus, nous avons montré qu'il existe probablement un phénomène d'évaporation préférentielle durant la phase de dépôt. Il est aussi possible que la composition initiale du lingot soit différente de celle du ferrite de baryum massif. En effet, comme nous l'avons indiqué au chapitre II, les pastilles de ferrite sont fondues avant la phase de dépôt de façon à obtenir un lingot possédant une surface homogène et légèrement convexe. La puissance canon nécessaire à la réalisation de ce lingot est relativement faible (≈ 2 kW) mais peut tout de même permettre une évaporation en surface. Pour confirmer ceci des analyses chimiques ont été réalisées sur un lingot n'ayant pas encore été utilisé et ont permis d'obtenir les résultats suivants :

Ba %	Fe %	$\frac{Fe}{Ba}$
17,29	58,81	8,38

Tableau III-19 : Analyse chimique d'un lingot avant dépôt ('%' = grammes pour 100 grammes)

Ceci montre bien que le fait de fondre les pastille a déjà entraîné une modification de la composition chimique du lingot que nous allons évaporer. Afin d'observer l'évolution du rapport Fer / Baryum sur le lingot, nous avons de nouveau analysé celui-ci après dépôt et la couche ainsi obtenue. Les résultats sont regroupés dans le **tableau III.20**.

Nous constatons ici que la composition du lingot a très légèrement varié après le dépôt puisque le rapport Fe / Ba passe de 8,38 à 7,57. De plus l'analyse chimique de la couche permet d'obtenir un rapport molaire de 7,67 proche de celui mesuré sur le lingot (7,57). Ceci

tendrait à prouver que dans ce cas, il s'est produit un transfert stœchiométrique du lingot aux substrats. Cependant, ces résultats sont à analyser avec précaution, puisque les analyses chimiques présentées ici ne concernent qu'un dépôt réalisé dans des conditions bien spécifiques. Nous ne pouvons donc pas généraliser ces résultats mais d'autres analyses du même type sont actuellement en cours de réalisation.

analyse chimique du lingot			analyse chimique de la couche		
Ba %	Fe %	$\frac{Fe}{Ba}$	Ba %	Fe %	$\frac{Fe}{Ba}$
17,13	52,65	7,57	3,08	9,59	7,67

Tableau III-20 : Analyses chimique d'un lingot après dépôt et de la couche correspondante

Nous espérons que tous ces problèmes seront éliminés grâce à l'acquisition d'un bâti d'évaporation comportant trois sources distinctes (voir annexe 2). En effet, nous pourrions alors évaporer séparément l'oxyde de fer et l'oxyde de baryum. Enfin, nous n'avons pas réussi à orienter les couches perpendiculairement à la surface des dépôts.

La réalisation d'un dépôt étant un processus relativement long, nous avons appliqué la méthode des plans d'expériences afin de réduire le nombre de manipulations à effectuer. En effet, il s'agit de méthodes mathématiques qui permettent de cibler les paramètres influents afin d'arriver au résultat plus rapidement.

Dans le chapitre suivant nous allons présenter les résultats obtenus lors de l'application de la méthode Taguchi à la réalisation de couches épaisses de ferrite de baryum.

Bibliographie du chapitre III

[1] WANE Ibrahima

Etude, réalisation et caractérisation de couches de ferrites destinées à des dispositifs intégrés microondes non réciproques, pp 36 – 38, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, juillet 2000, n° d'ordre 30.2000.

[2] BAILAR J. C., EMELEUS M. J., NYHOLM D., TROTMAN-DICKENSON A. F.

Comprehensive Inorganic Chemistry, Pergamon press, volume 3, 1973, pp 1009 – 1040.

[3] CHO H. S., KIHA S., KIM H. J.

Effects of oxygen partial pressure on the crystallographic structure of Mn-Zn ferrite thin films deposited by ion beam sputtering, Surface and Coatings Technology, 1994, vol. 68/69, pp 279 – 284.

[4] HYLTON T. L., PARKER M. A., HOWARD J. K.

Preparation and magnetic properties of epitaxial barium ferrite thin films on sapphire with in-plane, uniaxial anisotropy, Applied Physics Letter, 1992, Vol. 61, n°7, pp 867 – 869.

[5] MAISSEL L. I., GLANG R.

Hand Book of Thin Film Technology, McGraw-Hill Book Company, 1970, p 23.

[6] FANG W., LO C. Y.

On the thermal expansion coefficients of thin films, Sensors and actuators, 2000, vol. 84, pp 310 – 314.

[7] MENDOZA-SUAREZ G., CISNEROS-MORALES M. C., CISNEROS-GUERRERO M. M., JOHAL K. K., MANCHA-MOLINAR H., AYALA-VALENZUELA O. E., ESCALANTE-GARCIA J. I.

Influence of stoichiometry and heat treatment conditions on the magnetic properties and phase constitution of Ba-ferrite powders prepared by sol-gel, Materials chemistry and physics, 2002, 9454, pp 1 – 6.

[8] KOLEVA M. et al.

Pulsed laser deposition of barium hexaferrite ($\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$) thin films, Applied Surface Science, 2000, 154 – 155, pp 485 – 491.

[9] MENDOZA-SUAREZ G., MATUTES-AQUINO J. A., ESCALANTE-GARCIA J. I., MANCHA-MOLINAR H., RIOS-JARA D., JOHAL K. K.

Magnetic properties and microstructure of Ba-ferrite powders prepared by ball milling, Journal of magnetism and magnetic materials, 2001, 223, pp 55 – 62.

[10] RICHARDT A., DURAND A. M.

Le vide, Les couches minces, Les couches dures, éditions IN FINE, 1994, pp 280 – 281.

[11] HERZER G.

Grain size dependence of coercivity and permeability in nanocrystalline ferromagnets, IEEE Transaction on Magnetics, 26, n°5, 1990.

[12] HERZER G.

Nanocrystalline soft magnetic materials, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 1992, 112, pp 258-262.

[13] SARDA Christian

Contribution à l'étude de l'hexaferrite de baryum et des ferrites spinelles dopée au baryum. Application à l'enregistrement magnétique, pp 19, Thèse de doctorat en science des matériaux, Université Paul Sabatier de Toulouse, mai 1999.

[14] SHINDE S. R., LOFLAND S. E.

Realization of epitaxial barium ferrite films of high crystalline quality with small resonance losses, Journal of applied physics, 1999, 85-10, 7459.

[15] LIU Xiaoxi and Al.

The study of sputtered Barium ferrite thin films, Phys. Stat. Sol., 1999, 174, 389.

[16] ZHANG X. Y., ONG C. K., XU S. Y., YANG Z.

Barium ferrite films with in-plane orientation grown on silicon by pulsed laser deposition, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 1998, 190, pp 171-175.

[17] MALAURIE Agnès

Modélisation des mécanismes de transport de la vapeur métallique dans les techniques de dépôt physique en phase vapeur, pp 11-12, Thèse de doctorat en matériaux céramiques et traitements de surface, Université de Limoges, janvier 1995.

[18] NAKAGAWA S., MATSUSHITA N., NAOE M.

Perpendicular magnetic recording media using hexagonal ferrite thin films deposited on Pt underlayers and interlayers, Journal of Magnetism and Magnetic Materials, 2001, 235, pp 337-341.

[19] GROVES James F.

Directed Vapor Deposition, Ph. D. Dissertation, University of Virginia, 1998.

[20] LISFI A., LODDER J. C.

Microstructural and magnetic properties of pulsed laser deposited barium ferrite films grown on various substrates, Proceedings of the Third International Workshop on Materials Science, Hanoi, 1999, pp 218 – 225.

[21] WITTMANN Jean-Claude

Orientation de matériaux organiques sur un substrat de Téflon, de la physique à la technologie, pp 69 – 78.

[22] LACROIX E. et Al.

Substrate effects on the crystalline orientation of barium hexaferrite films, J. Appl. Phys., 1991, 69, pp 4770 – 4772.

[23] JI Z. G.

CHAPITRE IV :
Application de la méthode Taguchi
aux dépôts en couches minces

IV.1. Introduction

De nos jours, pour être compétitif au niveau international, le développement des produits doit être le plus rapide possible, avec un résultat de très bonne qualité et un prix de revient faible [1]. Il est donc rapidement apparu nécessaire, dans le monde industriel, de posséder et de maîtriser différentes techniques d'optimisation, afin d'améliorer ces critères.

C'est dans ce contexte que sont apparus les plans d'expériences. Ils permettent de modéliser, c'est à dire de représenter sous forme d'équations mathématiques, un système complexe. Le système étudié peut être quelconque, à partir du moment où il dépend de variables sur lesquelles on peut agir et que celui-ci donne des résultats expérimentaux mesurables.

La méthode des plans d'expériences se prête particulièrement bien à l'étude de systèmes très complexes, où de très nombreux paramètres interviennent. D'ailleurs, l'intérêt de la méthode réside dans le fait qu'il n'est pas nécessaire de rentrer dans le détail des mécanismes du système pour établir une relation acceptable entre les variables et les résultats. Le principe consiste à considérer qu'une relation entre les deux peut se traduire par un polynôme. Le problème revient alors à résoudre une équation à N inconnues (les N facteurs ou variables qui interviennent dans le système étudié), par une démarche expérimentale. On réalise un certain nombre d'expériences en fixant des valeurs bien précises aux variables et en mesurant les résultats.

Dans notre cas, le nombre de facteurs contrôlés étant important (vitesse de dépôt, température des substrats...) et la réalisation d'un dépôt étant un processus long à mettre en œuvre (formation du lingot + phase de dépôt) il semble tout à fait justifié d'appliquer ces méthodes d'optimisation afin de limiter le nombre des manipulations expérimentales.

Durant cette étude, nous avons utilisé une méthode d'optimisation particulière : **la méthode Taguchi**, qui a fait l'objet d'un stage de DESS au sein de l'équipe. Cela a été pour nous l'occasion d'aborder cette approche semi-empirique de l'optimisation des propriétés des couches réalisées. Il ne s'agit ici que d'une pré-étude qui est appliquée à un cas simple, afin de préparer le terrain à un usage plus large de la méthode au sein de l'équipe.

Dans un premier temps, nous présentons donc, en nous appuyant sur un exemple concret, cette méthode d'optimisation. Puis, nous allons l'appliquer à notre problème, qui porte sur l'optimisation de dépôts de couches épaisses de ferrite de baryum en vue de la réalisation d'un circulateur intégré en technologie MMIC. Enfin, nous concluons ce chapitre et présenterons les différentes perspectives qui s'offrent à nous.

IV.2. Présentation de la méthode Taguchi [2] [3] [4]

IV.2.1. Philosophie de l'approche Taguchi

Genichi Taguchi, Docteur ès sciences, est né au Japon le 1^{er} janvier 1924. Son travail majeur a consisté à combiner les techniques de l'ingénierie et celles des statistiques, dans le but d'obtenir une amélioration rapide de la qualité et une réduction des coûts, en recherchant une optimisation au niveau de la conception des produits et des processus de fabrication.

G. Taguchi a incontestablement contribué à la réussite des Japonais dans le domaine de la qualité, ce qui leur a permis de devenir, depuis maintenant plus de vingt ans, les leaders mondiaux dans ce domaine tout en ayant des prix de revient compétitifs. En effet, la méthode des plans d'expériences Taguchi est utilisée au Japon depuis les années 1960. Or, ce n'est que dans les années 1980 qu'elle est apparue en Occident, et plus particulièrement, c'est en 1988 qu'elle a commencé à être utilisée en France.

Dans tout processus de production industrielle, on constate souvent des disparités sur le produit final, malgré des conditions initiales identiques en théorie, mais malheureusement différentes dans la réalité. Ces différences étant dues, entre autres, aux variations des conditions d'environnement, ainsi qu'aux variations des caractéristiques des matières premières utilisées. Les méthodes classiques d'optimisation consistent, pour la plupart, à éliminer ces facteurs parasites (bruits). Une représentation schématique de cette approche est donnée sur la **figure IV.1**.

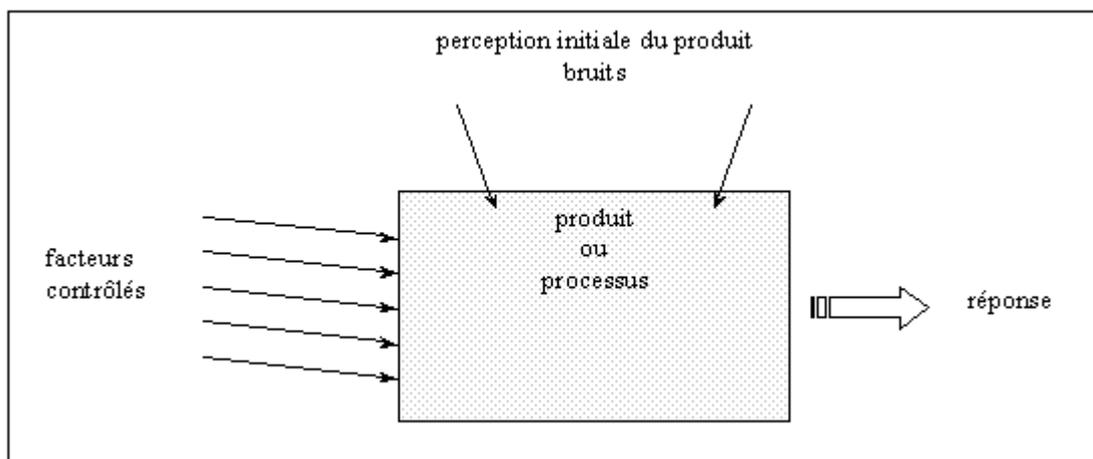


Figure IV-1 : Approche classique des plans d'expériences [2]

Classiquement, on s'attaque donc aux causes des variations (bruits) grâce notamment à un surdimensionnement des composants, un resserrement des tolérances, une diversification

des produits et des conditions d'utilisation. Cependant tout ceci engendre un surcoût parfois important.

Contrairement à ces méthodes, l'approche de Genichi Taguchi ne cherche pas à éliminer ces bruits parasites, mais à minimiser leur impact (**figure IV.2**).

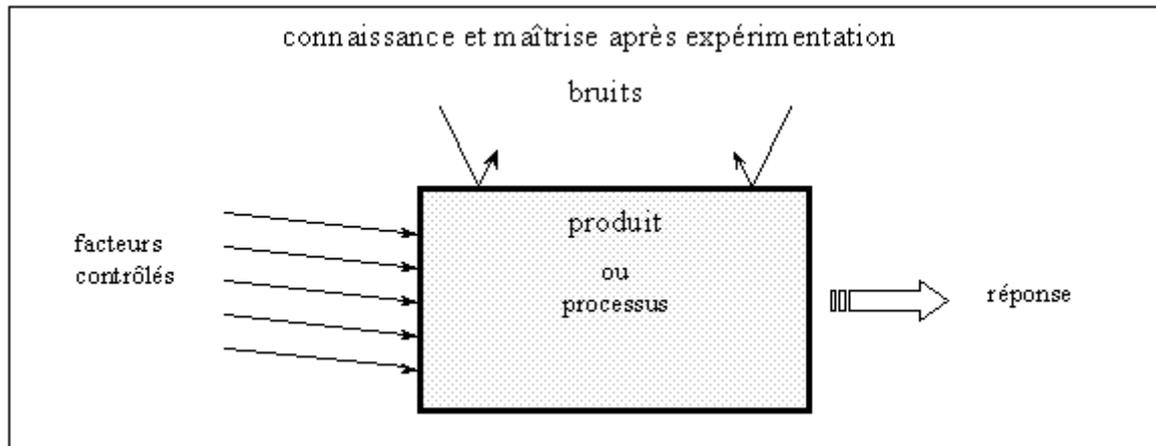


Figure 0V-2 : Approche Taguchi [2]

Pour G. Taguchi, les causes des variations existent toujours, il est inutile de s'y attaquer ou de s'affranchir de leurs effets. Le but est d'obtenir une certaine « robustesse » par rapport aux bruits. Concrètement, cette technique consiste à identifier les combinaisons de facteurs contrôlés qui permettent de réduire les effets des bruits parasites sur la réponse, sans s'attaquer directement à ceux-ci. Les paramètres relatifs au produit ou à son processus de fabrication, sur lesquels on peut facilement agir, sont dénommés facteurs contrôlés. Enfin, la recherche des bonnes valeurs à donner aux facteurs contrôlés s'effectue de façon expérimentale, afin que : le produit ou le processus à optimiser respecte les performances fonctionnelles ou dimensionnelles désirées, soit insensible aux bruits, et ce, au coût le plus faible.

Lors de la réalisation d'un plan d'expériences, plusieurs méthodes d'expérimentation sont alors possibles :

- variation d'un seul facteur à la fois,
- utilisation d'un plan factoriel complet,
- utilisation d'un plan d'expérience fractionnaire.

Dans le cas de la première méthode, on procède par tâtonnements successifs et généralement sans méthodologie ; les éventuelles corrélations entre facteurs n'étant pas prises en compte.

En ce qui concerne les plans factoriels complets, on étudie toutes les combinaisons possibles des niveaux des facteurs essayés. Un niveau représente un facteur dans un certain état. Il en résulte un nombre d'essais prohibitif. Or, tous les essais réalisés n'ont pas le même degré d'utilité. En effet, certains essais apportent plus d'informations efficaces que d'autres. C'est pourquoi la méthode Taguchi utilise les plans d'expériences fractionnaires, qui réduisent considérablement le nombre d'essais à effectuer. Pour illustrer ces propos, le **tableau IV.1** montre le nombre d'essais à réaliser dans le cas d'un plan factoriel complet et dans celui d'un plan d'expérience fractionnaire. N représente ici le nombre de facteurs sur lesquels nous pouvons agir, chacun de ces facteurs pouvant avoir deux niveaux distincts.

nombre de facteurs à 2 niveaux	nombre d'essais à effectuer	
	plan factoriel complet 2^N	plan factoriel fractionnaire N+1
N		
3	8	4
4	16	5
5	32	6
6	64	7
7	128	8

Tableau 0V-1 : Comparaison du nombre d'essais à effectuer

En contrepartie, la méthode Taguchi ne permet pas de comprendre pourquoi une combinaison sera « meilleure » qu'une autre, ce qui, à posteriori, laisse dans notre cas, la porte ouverte à une analyse scientifique des résultats obtenus, afin d'accéder à la compréhension des phénomènes.

IV.2.2. Organisation de la méthode Taguchi

Dans un premier temps, il est nécessaire de définir avec précision le système à étudier et les critères de qualité à optimiser. Pour cela, il faut organiser un groupe de réflexions (brainstorming) réunissant les différentes personnes concernées, c'est à dire, le maître d'œuvre de l'expérimentation et les experts du système.

IV.2.2.1. Détermination des facteurs à tester et de leurs niveaux

Il faut tout d'abord élaborer la liste des facteurs agissant sur le système, puis sélectionner ceux qui sont les plus influents. On attribue alors à chaque facteur les niveaux qu'il prendra, ces niveaux devant être reproductibles au cours de l'expérimentation. De plus,

il est nécessaire que les niveaux d'un même facteur ne soient ni trop éloignés, ni trop proches, tout en veillant à ce que les combinaisons entre les niveaux des facteurs soient physiquement possibles. Enfin, certains facteurs peuvent interagir et donc influencer sur le résultat. C'est pourquoi les interactions doivent être décelées dès le début de l'étude, grâce aux compétences des experts.

Afin d'explicitier la démarche, nous allons développer un exemple concret [2], celui d'un processus automatisé d'émaillage de pièces en tôle. Ici, le critère de qualité à optimiser est l'épaisseur de l'émail qui doit être de $95 \mu\text{m} \pm 10 \mu\text{m}$. Le cas réel qui a servi de base pour construire cet exemple comporte 12 facteurs à 2 niveaux et 1 facteur à 4 niveaux. Pour simplifier, nous ne retenons que les 7 facteurs à 2 niveaux présentés dans le **tableau IV.2**.

N°	description des facteurs	niveau 1	niveau 2
A	température de la poudre	ambiante	50°C
B	configuration des pistolets	traditionnelle	nouvelle
C	air de transport	3 bar	4 bar
D	air de dosage	6 bar	7 bar
E	vitesse des cycles	avec temporisation	sans temporisation
F	tension électrostatique	100 kVolts	75 kVolts
G	type de buse	buse inversée	buse normale

Tableau IV -2 : Définition des facteurs et de leurs niveaux

IV.2.2.2. Détermination de la matrice d'expériences

Afin de déterminer la matrice d'expériences, on doit calculer les degrés de liberté (ddl) de chaque facteur et de leurs interactions s'il y a lieu. Ces degrés de liberté peuvent se calculer de la manière suivante :

pour un facteur X : $\text{ddl X} = (\text{Nombre de niveaux de X}) - 1$,

pour une interaction entre deux facteurs X et Y : $\text{ddl XY} = \text{ddl X} \times \text{ddl Y}$.

Ensuite, il suffit de sommer les degrés de liberté des facteurs et des interactions, puis d'ajouter 1 pour déterminer le nombre d'essais à réaliser et donc la dimension de la matrice d'expériences.

Dans notre exemple, il y a 7 facteurs à 2 niveaux et aucune interaction entre eux. Nous avons donc :

$$\text{ddl A} = \text{ddl B} = \text{ddl C} = \text{ddl D} = \text{ddl E} = \text{ddl F} = \text{ddl G} = 2 - 1 = 1$$

d'où un total de 7 degrés de liberté et donc un nombre d'essais de $7 + 1 = 8$.

A partir de là, on constate que la plus petite matrice d'expériences compatible avec l'objectif de l'expérimentation à effectuer, est une matrice fractionnaire de type L_8 . La propriété fondamentale de cette matrice est l'orthogonalité. C'est cette propriété qui permet d'isoler les effets individuels des différents facteurs testés simultanément dans des conditions variées. On peut ainsi attribuer aléatoirement une colonne à chaque facteur.

La matrice ainsi obtenue, prédéfinie par Taguchi lui-même, est donnée ci-dessous.

N° essai	matrice des facteurs contrôlés						
	A	B	C	D	E	F	G
1	1	1	1	1	1	1	1
2	1	1	1	2	2	2	2
3	1	2	2	1	1	2	2
4	1	2	2	2	2	1	1
5	2	1	2	1	2	1	2
6	2	1	2	2	1	2	1
7	2	2	1	1	2	2	1
8	2	2	1	2	1	1	2

Tableau IV -3 : Plan factoriel fractionnaire de 7 facteurs à 2 niveaux

IV.2.2.3. Mesure et exploitation des résultats

Chaque essai doit être effectué avec beaucoup de rigueur. Les mesures doivent toutes être réalisées avec les mêmes appareils, dans des conditions et avec un calibrage identiques. De plus, afin de prendre en compte la dispersion des résultats, il est nécessaire d'effectuer plusieurs mesures pour un même essai. A partir de là, il faut calculer la moyenne pour chaque essai et la moyenne générale des réponses.

IV.2.2.3.1 Définition de l'écart type

Contrairement à la méthode classique des plans d'expériences, qui ne prend en compte que la moyenne, la méthode Taguchi utilise des outils tels que le ratio Signal / Bruit et la fonction perte de qualité. Afin de calculer ces grandeurs, on rappelle la notion d'écart type

définie ci-dessous :

$$\sigma = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^n (y_i - \bar{y})^2}{n - 1}} \quad (4.1)$$

où : σ : écart type des valeurs mesurées,

\bar{y} : moyenne des valeurs mesurées,

y_i : valeur nominale mesurée,

n : nombre de mesures effectuées par essai.

Dans le cas où l'écart type est nul (par exemple si une seule mesure est possible), on fixera $\sigma = 0,0001$.

Nous allons maintenant donner les différentes formules permettant de calculer le ratio Signal / Bruit.

IV.2.2.3.2 Ratio Signal / Bruit

Il s'agit d'un indicateur de performance qui prend simultanément en compte :

la moyenne des valeurs mesurées : \bar{y} ,

la variabilité de cette valeur : l'écart type σ .

La performance est d'autant plus grande que le ratio Signal / Bruit est élevé. La formule permettant d'évaluer ce ratio est différente selon la nature du critère à optimiser (critère ciblé, à minimiser ou à maximiser).

$$\text{critère ciblé : } \left(\frac{S}{N} \right)_{\text{dB}} = 10 \times \log \left[\left(\frac{\bar{y}}{\sigma} \right)^2 - \frac{1}{n} \right] \quad (4.2)$$

$$\text{critère à minimiser : } \left(\frac{S}{N} \right)_{\text{dB}} = -10 \times \log [\sigma^2 + \bar{y}^2] \quad (4.3)$$

$$\text{critère à maximiser : } \left(\frac{S}{N} \right)_{\text{dB}} = -10 \times \log \left[\left(\frac{1}{\bar{y}^2} \right) \times \left(1 + \frac{3 \times \sigma^2}{\bar{y}^2} \right) \right] \quad (4.4)$$

IV.2.2.3.3 Analyse des résultats

Rappelons que le critère de qualité à optimiser est l'épaisseur de l'émail qui doit être de $95 \mu\text{m} \pm 10 \mu\text{m}$: c'est donc un critère ciblé. Lors de chaque essai, 250 pièces sont produites et 5 échantillons numérotés de 1 à 5 sont prélevés. Les valeurs des épaisseurs mesurées sont reportées dans le **tableau IV.4**. De plus, nous avons calculé la moyenne et l'écart type des mesures relatives à chacun des essais. Par exemple, pour l'essai numéro 1 l'écart type se calcule de la façon suivante :

$$\sigma = \sqrt{\frac{(107-72)^2 + (46-72)^2 + (44-72)^2 + (110-72)^2 + (53-72)^2}{5-1}} = 33,5.$$

De même, le rapport Signal / Bruit vaut :

$$\left(\frac{S}{N} \right)_{\text{dB}} = 10 \times \log \left[\left(\frac{72}{33,5} \right)^2 - \frac{1}{5} \right] = 6,45 \text{ dB.}$$

N° essai	matrice des facteurs contrôlés							valeurs mesurées (µm)					Moyenne (µm)	Ecart type (µm)	S/N (dB)
	A	B	C	D	E	F	G	n°1	n°2	n°3	n°4	n°5			
1	1	1	1	1	1	1	1	107	46	44	110	53	72,00	33,5	6,45
2	1	1	1	2	2	2	2	138	75	126	138	66	108,60	35,27	9,68
3	1	2	2	1	1	2	2	157	61	114	162	65	111,80	48,32	7,12
4	1	2	2	2	2	1	1	194	65	120	186	63	125,60	63,15	5,75
5	2	1	2	1	2	1	2	112	114	107	113	67	102,60	20,08	14,13
6	2	1	2	2	1	2	1	154	78	119	167	77	119,00	41,76	8,99
7	2	2	1	1	2	2	1	111	60	107	165	61	100,80	43,34	7,17
8	2	2	1	2	1	1	2	111	65	118	95	63	90,40	25,51	10,92
													103,85		8,78

moyenne générale des réponses

Tableau IV-4 : Résultats des essais, moyennes, écarts types et ratios Signal / Bruit

A partir du **tableau IV.4**, on peut déterminer les effets moyens de chaque niveau de facteurs, sur la valeur mesurée et sur le ratio $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$, par rapport à la moyenne générale des réponses.

Pour cela, il faut calculer :

la réponse moyenne pour chaque niveau de facteur qui correspond à la moyenne des résultats de tous les essais où le facteur se trouve à ce niveau. Par exemple, pour le facteur A au niveau 1, nous avons :

$$\bar{A}_1 = \frac{72 + 108,60 + 111,80 + 125,60}{4} = 104,50$$

l'effet moyen de chaque niveau d'un facteur qui s'apprécie par rapport à la moyenne générale de l'ensemble des essais. Par exemple, l'effet moyen sur la valeur mesurée lorsque le facteur A est au niveau 1 s'écrit :

$$E_{A1} = \bar{A}_1 - \bar{T} = 104,50 - 103,85 = 0,65 \text{ avec } \bar{T} : \text{moyenne de l'ensemble des essais.}$$

De même, l'effet moyen du facteur A au niveau 1 sur le rapport Signal / Bruit est obtenu de la façon suivante :

$$E'_{A1} = \left(\frac{6,45 + 9,68 + 7,12 + 5,75}{4}\right) - 8,78 = -1,53$$

On en déduit donc les différents résultats regroupés dans le **tableau IV.5**.

effet sur la valeur mesurée		facteur n°	effet sur le ratio Signal / Bruit	
niveau 1	niveau 2		niveau 1	niveau 2
$E_{A1} = 0,65$	$E_{A2} = -0,65$	A	$E_{A1} = -1,53$	$E_{A2} = 1,53$
$E_{B1} = -3,30$	$E_{B2} = 3,30$	B	$E_{B1} = 1,04$	$E_{B2} = -1,04$
$E_{C1} = -10,90$	$E_{C2} = 10,90$	C	$E_{C1} = -0,22$	$E_{C2} = 0,22$
$E_{D1} = -7,05$	$E_{D2} = 7,05$	D	$E_{D1} = -0,06$	$E_{D2} = 0,06$
$E_{E1} = -5,55$	$E_{E2} = 5,55$	E	$E_{E1} = -0,41$	$E_{E2} = 0,41$
$E_{F1} = -6,20$	$E_{F2} = 6,20$	F	$E_{F1} = 0,54$	$E_{F2} = -0,54$
$E_{G1} = 0,50$	$E_{G2} = -0,50$	G	$E_{G1} = -1,69$	$E_{G2} = 1,69$

Tableau IV-5 : Effets des facteurs suivant leurs niveaux

En général, il est commode de transcrire ces résultats sous forme graphique. Les différents graphiques obtenus sont regroupés sur les **figures IV.3** et **IV.4**. Ils représentent les effets moyens des différents facteurs sur la valeur mesurée et sur le ratio Signal / Bruit.

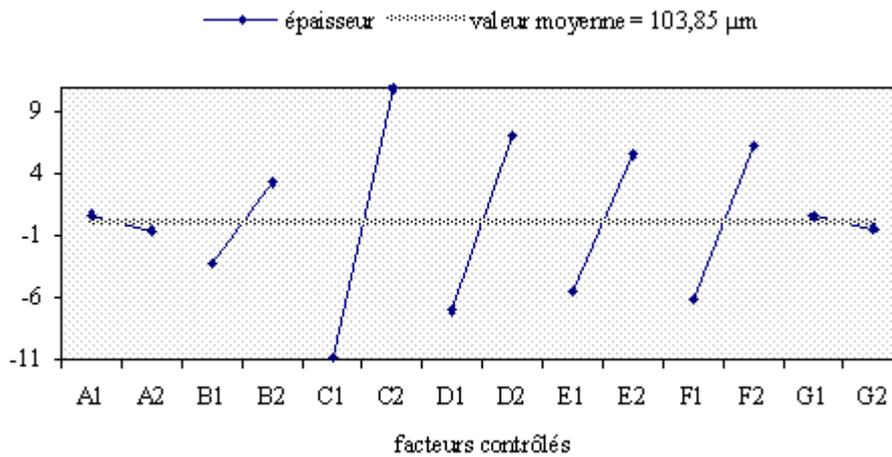


Figure IV-3 : Effet sur la valeur mesurée

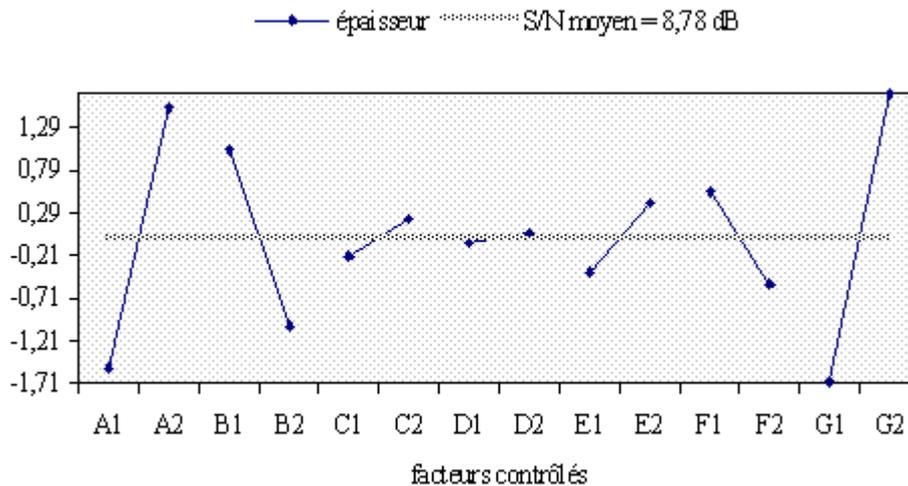


Figure IV-4 : Effet sur le ratio S/N (dB)

Il reste ensuite à chercher la combinaison des facteurs contrôlés qui maximise la valeur algébrique du ratio $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$ afin de minimiser la variabilité de la caractéristique à optimiser. Concrètement, à partir des graphiques on choisit pour tous les facteurs les niveaux qui ont des effets positifs pour maximiser la valeur algébrique de $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$. Par exemple, si l'on se reporte à la **figure IV.4**, pour le facteur A nous constatons que l'effet sur le rapport Signal / Bruit est positif lorsque ce facteur est au niveau 2. En réalisant le même raisonnement pour les autres facteurs nous arrivons à la combinaison suivante : **A₂B₁C₂D₂E₂F₁G₂**. Si cette combinaison conduit à un écart trop important entre l'épaisseur mesurée et celle souhaitée ($95 \pm 10 \mu\text{m}$), on modifie le niveau des facteurs qui ont le maximum d'influence sur cette valeur et dégradent le moins possible le ratio $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$. Dans notre cas, d'après les **figures IV.3** et **IV.4**, les facteurs qui remplissent ces deux conditions sont : C et D. Effectivement, la **figure IV.4** montre bien que ces deux facteurs ont peu d'influence sur le rapport Signal / Bruit (les effets calculés sont proches de la valeur moyenne) et la **figure IV.3** met en évidence que ceux-ci ont un effet important sur la valeur mesurée (amplitude importante entre les deux points de mesure).

Dans notre exemple, l'objectif étant de réaliser une épaisseur d'émail de $95 \mu\text{m} \pm 10 \mu\text{m}$ tout en ayant un ratio $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$ le plus grand possible, on réalise le compromis décrit dans le **tableau IV.6**, dans lequel le facteur C est alors mis au niveau 1.

N°	description des facteurs	niveau	Effet des niveau sur	
			Signal / Bruit (dB)	épaisseur (μm)
A	température de la poudre	2	1,53	-0,65
B	configuration des pistolets	1	1,04	-3,30
C	air de transport	1	-0,22	-10,90
D	air de dosage	2	0,06	7,05
E	vitesse des cycles	2	0,41	5,55
F	tension électrostatique	1	0,54	-6,20
G	type de buse	2	1,69	-0,50
Somme des effets			5,05	-8,95
Moyenne générale des réponses			8,78	103,85

Tableau IV-6 : Configuration adoptée

En fixant les niveaux des différents paramètres comme indiqué dans ce tableau nous pouvons espérer obtenir une épaisseur d'émail voisine de $104 \mu\text{m}$ et un rapport Signal / Bruit proche de 8,8 dB. Afin de confirmer ces résultats, il reste encore à effectuer un essai de validation.

Dans le paragraphe suivant, nous allons présenter les résultats obtenus lors de l'application de cette méthode à l'étude qui nous concerne, à savoir l'optimisation des différentes propriétés des couches épaisses d'hexaferrite de baryum.

IV.3. Application de la méthode Taguchi à la réalisation de couches d'hexaferrite de baryum

La première étape de la mise en œuvre du plan d'expériences a été l'organisation d'un groupe de réflexions. Celui-ci a permis de mettre au point les aspects techniques et l'organisation de la réalisation de l'expérimentation, grâce aux compétences rassemblées.

IV.3.1. Définition des objectifs

Durant cette réunion, il a été décidé d'optimiser trois grandeurs caractérisant la qualité d'un dépôt :

le champ coercitif, H_c , qui est un paramètre à maximiser,

l'intensité d'aimantation à saturation, J_s , qui est aussi un paramètre à maximiser,

et enfin, le rapport Fer / Baryum, qui est un paramètre à cibler sur la valeur 12.

A partir de là, il a fallu déterminer les facteurs influents.

IV.3.2. Sélection des facteurs influents

Parmi les paramètres contrôlables du dispositif, nous en avons retenu deux principaux :

la température des substrats : T_s ,

et la vitesse de dépôt : V_d .

La température des substrats pouvant varier entre la température ambiante et 700°C , nous prendrons 3 niveaux (300, 500 et 700°C) pour notre étude. En effet, comme nous l'avons montré au chapitre III, pour une température inférieure à 300°C , l'adhérence du dépôt est insuffisante.

De même, la vitesse de dépôt peut varier entre 5 et $37 \mu\text{m/h}$. Durant cette étude nous avons choisi deux niveaux (10 et $20 \mu\text{m/h}$).

Enfin, ces deux facteurs interagissent probablement. Il est donc nécessaire de réserver une colonne de la matrice d'expériences afin d'étudier l'interaction entre T_s et V_d . Toutes ces données sont regroupées dans le **tableau IV.7**.

description des facteurs	niveau 1	niveau 2	niveau 3
température des substrats T_s	300°C	500°C	700°C
vitesse de dépôt V_d	10 $\mu\text{m/h}$	20 $\mu\text{m/h}$	

Tableau IV-7 : Définition des facteurs et de leurs niveaux

IV.3.3. Définition de la matrice d'expérience

Nous avons donc un facteur à deux niveaux, un facteur à trois niveaux et une interaction. A partir de là, nous pouvons calculer les degrés de liberté pour chaque facteur. Nous obtenons alors :

$$\text{ddl } T_s = 3 - 1 = 2$$

$$\text{ddl } V_d = 2 - 1 = 1$$

$$\text{ddl } T_s V_d = \text{ddl } T_s \times \text{ddl } V_d = 2 \times 1 = 2$$

Il existe donc cinq degrés de liberté, ce qui conduit à un nombre d'essais de $5 + 1 = 6$. Cela implique l'utilisation de la matrice présentée ci-après.

N° essai	T_s	V_d	$T_s V_d$
1	1	1	I_1
2	1	2	I_2
3	2	1	I_3
4	2	2	I_4
5	3	1	I_5
6	3	2	I_6

Tableau IV-8 : Matrice d'expériences

Dans ce tableau les grandeurs I_n représentent les interactions entre T_s et V_d pour l'essai n° n. Par exemple I_1 représente l'interaction entre T_s au niveau 1 et V_d également au niveau 1 pour l'essai n°1.

Tous les résultats qui vont suivre ont été obtenus sur des couches recuites. Ces recuits étant réalisés dans les mêmes conditions que celles décrites dans le chapitre précédent. De plus, à la suite de chaque dépôt, le porte-échantillons pouvant contenir 8 substrats, nous en avons prélevé trois que nous avons recuits et sur lesquels nous avons alors mesuré les grandeurs suivantes : H_c , J_s et Fe / Ba .

IV.3.4. Traitement et analyse des données

IV.3.4.1. Intensité d'aimantation à saturation

Dans un premier temps, nous réalisons un plan factoriel complet, nécessaire à la détermination et à la quantification des interactions. Les différents résultats obtenus, après caractérisation des dépôts sont regroupés dans le **tableau IV.9**.

N°	T _s	V _d	valeurs mesurées de J _s (Tesla)			moyenne
			n°1	n°2	n°3	
1	1	1	0,206	0,226	0,215	0,215
2	1	2	0,201	0,185	0,209	0,198
3	2	1	0,140	0,134	0,152	0,142
4	2	2	0,102	0,126	0,106	0,111
5	3	1	0,190	0,270	0,200	0,220
6	3	2	0,230	0,200	0,170	0,200

Tableau IV-9 : Résultats des essais et moyennes

Toutes les valeurs de J_s ont été mesurées à l'aide de l'hystérésismètre décrit au chapitre II. De plus, elles sont évaluées en appliquant un champ parallèle à la surface des couches. La dernière colonne de ce tableau donne la moyenne des valeurs, calculée pour chacun des essais.

A l'aide de ce tableau, on peut tracer les courbes de la **figure IV.5** qui représentent l'évolution de la moyenne des valeurs mesurées en fonction de la température (300, 500 et 700°C) pour les deux vitesses de dépôt (10 et 20 μm/h). Ces courbes permettent d'étudier le degré d'interaction (nul, faible, moyen ou fort) entre la température des substrats et la vitesse de dépôt.

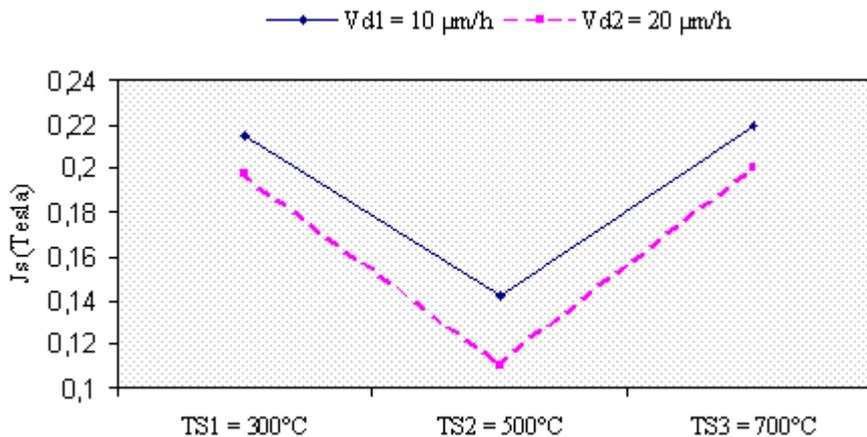


Figure IV-5 : Effet moyen de T_s sur J_s

Les évolutions tracées ici sont à analyser avec précautions. En effet, comme nous l'avons dit, cette étude réalisée dans le cadre d'un projet de DESS, s'est déroulée il y a plus d'un an. Or depuis, de nouvelles données nous ont permis de tirer d'autres conclusions (voir chapitre III).

Toutefois, les droites obtenues ici n'étant pas totalement parallèles sur les deux intervalles, il existe donc une faible interaction. Ainsi, l'effet de la température des substrats sur l'intensité d'aimantation à saturation, dépend de la vitesse de dépôt. Il est donc nécessaire d'introduire une nouvelle colonne affectée à l'interaction dans la matrice d'expériences. Celle-ci devient alors factorielle fractionnaire, ce qui permet de calculer le ratio Signal / Bruit.

Dans le **tableau IV.10** sont reportées les valeurs de la nouvelle matrice d'expériences obtenue.

N°	T _s	V _d	T _s V _d	n°1	n°2	n°3	moyenne	écart type	S/N (dB)
1	1	1	I ₁	0,206	0,226	0,215	0,215	0,0100	-13,34
2	1	2	I ₂	0,201	0,185	0,209	0,198	0,0122	-14,10
3	2	1	I ₃	0,140	0,134	0,152	0,142	0,0001	-16,95
4	2	2	I ₄	0,102	0,126	0,106	0,111	0,0129	-19,24
5	3	1	I ₅	0,190	0,270	0,200	0,220	0,0436	-13,64
6	3	2	I ₆	0,230	0,200	0,170	0,200	0,0300	-14,26

0,181 moyenne -15,26

Tableau IV-10 : Résultats des essais, moyennes, écarts types et ratios Signal / Bruit

Dans ce cas, la formule que nous avons utilisée pour calculer le rapport $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$ est celle d'un critère à maximiser (voir IV.2.2.3.2.). Nous avons ensuite calculé les effets moyens des facteurs contrôlés sur J_s et sur le ratio Signal / Bruit. Les résultats sont regroupés dans le **tableau IV.11**.

valeurs mesurées			J _s	ratio S/N (dB)		
niveau 1	niveau2	niveau 3	facteur	niveau1	niveau 2	niveau 3
0,026	-0,055	0,029	T _s	1,53	-2,84	1,31
0,011	-0,011		V _d	0,61	-0,61	

Tableau IV-11 : Effets moyens autour de la moyenne des niveaux des facteurs

Par exemple le calcul de l'effet moyen de la température des substrats au niveau 1 sur la valeur mesurée est le suivant :

$$E_{TS1} = \frac{0,215 + 0,198}{2} - 0,181 = 0,026$$

Ensuite, nous avons pu calculer les interactions à l'aide de ce tableau et de la formule suivante :

$$I_1 = I_{T_{S1}V_{d1}} = \overline{T_{S1}V_{d1}} - \overline{T} - E_{T_{S1}} - E_{V_{d1}} \quad (4.5)$$

avec : \overline{T} : moyenne de l'ensemble des essais,

$\overline{T_{S1}V_{d1}}$: moyenne des résultats des essais pour lesquels T_s et V_d sont au niveau 1,

$E_{T_{S1}}$: effet moyen de T_s au niveau 1 sur J_s ,

$E_{V_{d1}}$: effet moyen de V_d au niveau 1 sur J_s .

Cette formule s'applique dans le cas de la valeur mesurée et du ratio Signal / Bruit, d'où :

$$I_1 = 0,215 - 0,181 - 0,026 - 0,011 = - 0,003$$

$$I_1 \left(\% \left(\frac{S}{N} \right)_{dB} \right) = - 13,34 - (- 15,26) - 1,53 - 0,61 = - 0,24$$

Nous avons effectué les mêmes calculs pour les autres interactions et nous avons alors obtenu les résultats regroupés dans le **tableau IV.12**.

interaction	$I_1=T_{S1}V_{d1}$	$I_2=T_{S1}V_{d2}$	$I_3=T_{S2}V_{d1}$	$I_4=T_{S2}V_{d2}$	$I_5=T_{S3}V_{d1}$	$I_6=T_{S3}V_{d2}$
$\% \left(\frac{S}{N} \right)_{dB}$	-0,24	0,24	0,53	-0,53	-0,30	0,30
mesure	-0,003	0,003	0,004	-0,004	-0,001	0,001

Tableau IV-12 : Effets moyens autour de la moyenne des interactions

A partir des **tableaux IV.11** et **IV.12**, il est possible de réaliser les graphiques des **figures IV.6** et **IV.7** représentant les effets moyens des facteurs sur la valeur mesurée et sur le rapport Signal / Bruit. A partir de la **figure IV.6** on s'aperçoit que la température a plus d'influence sur l'intensité d'aimantation à saturation que la vitesse de dépôt. De plus, on constate que les interactions sont, comme prévues, faibles. En effet, comme nous pouvons le voir ces interactions se situent autour de la moyenne des valeurs mesurées.

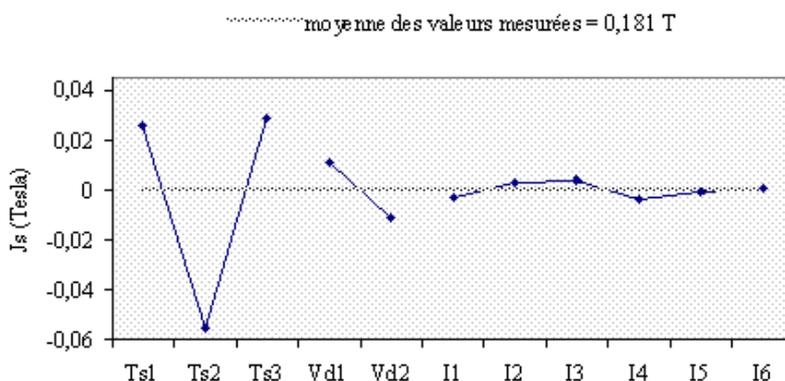


Figure IV-6 : Effet moyen autour de la moyenne sur la valeur mesurée de J_s

Comme nous l'avons montré au paragraphe IV.2.2.3.3., le graphique de la **figure IV.7** nous permettra, par la suite, de mieux optimiser la valeur de J_s étant donné que le ratio Signal / Bruit doit être maximal. Une combinaison possible pour maximiser ce rapport est $T_{s1}V_{d1}$. En effet, l'effet moyen du rapport Signal / Bruit sur J_s est le plus important lorsque T_s est au niveau 1.

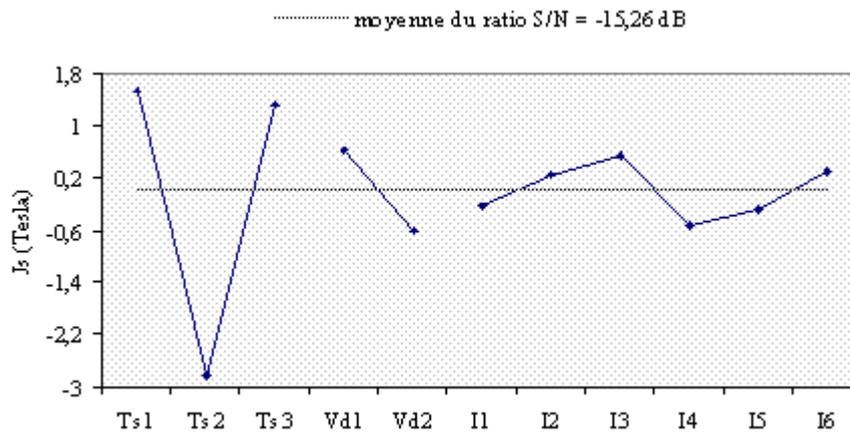


Figure IV-7: Effet moyen autour de la moyenne sur le ratio S/N (dB) de J_s

IV.3.4.2. Champ coercitif

Comme précédemment, nous réalisons un plan factoriel complet afin de déterminer et de quantifier les interactions.

N°	T_s	V_d	valeurs mesurées de H_c (kA/m)			moyenne
			n°1	n°2	n°3	
1	1	1	214	208	185	202,33
2	1	2	135	129	130	131,33
3	2	1	177	165	163	168,33
4	2	2	97,8	99,4	100	99,07
5	3	1	114,23	60,7	77,6	84,18
6	3	2	103,46	45,5	63,2	70,72

Tableau IV-13 : Résultats des essais et moyennes

Grâce à la **figure IV.8** qui représente l'évolution de la moyenne des valeurs mesurées en fonction de la température (300, 500 et 700°C) pour les deux vitesses de dépôt (10 et 20 $\mu\text{m/h}$), on étudie le degré d'interaction (nul, faible, moyen ou fort) entre la température des substrats et la vitesse de dépôt.

Les droites obtenues sont quasiment parallèles entre 300 et 500°C, d'où une interaction faible. Entre 500 et 700°C, elles sont convergentes. Il existe donc, ici, une interaction de degré moyen. Ainsi, l'effet de la température des substrats sur le champ coercitif dépend de la vitesse de dépôt. Il faut donc introduire une nouvelle colonne affectée à

l'interaction dans la matrice d'expériences. Celle-ci devient alors factorielle fractionnaire, ce qui permet de calculer le ratio Signal / Bruit.

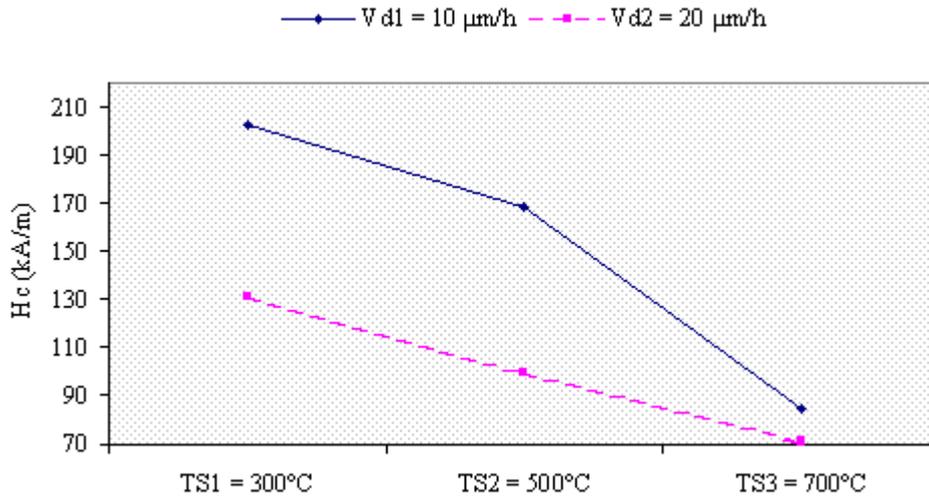


Figure IV-8 :
Effet moyen
de T_s sur H_c

La nouvelle matrice d'expériences ainsi obtenue est donnée **tableau IV.14**.

N°	T_s	V_d	$T_s V_d$	n°1	n°2	n°3	moyenne	écart type	S/N (dB)
1	1	1	1	214	208	185	202,33	15,31	46,05
2	1	2	2	135	129	130	131,33	3,21	42,36
3	2	1	3	177	165	163	168,33	7,57	44,50
4	2	2	4	97,8	99,4	100	99,07	1,14	39,92
5	3	1	5	114,23	60,7	77,6	84,18	27,36	37,31
6	3	2	6	103,46	45,5	63,2	70,72	29,70	35,15



Tableau IV-14 : Résultats des essais, moyennes, écarts types et ratios Signal / Bruit

Ici aussi, la formule utilisée pour le calcul du rapport $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$ est celle d'un critère à maximiser. Nous pouvons alors calculer les effets moyens des facteurs contrôlés sur H_c et son ratio Signal / Bruit (**tableau IV.15**).

valeur mesurée			H_c	ratio S/N (dB)		
niveau 1	niveau 2	niveau 3	facteur	niveau 1	niveau 2	niveau 3
40,84	7,71	-48,55	T_s	3,32	1,33	-4,65
25,62	-25,62		V_d	1,74	-1,74	

Tableau IV-15 : Effets moyens des niveaux des facteurs sur H_c

Grâce à ce tableau et à la formule (4.5), nous pouvons calculer les interactions dans le cas de la valeur mesurée et dans celui du ratio Signal / Bruit. Nous trouvons alors les résultats portés dans le **tableau IV.16**.

interaction	$T_{s1}V_{d1}$	$T_{s1}V_{d2}$	$T_{s2}V_{d1}$	$T_{s2}V_{d2}$	$T_{s3}V_{d1}$	$T_{s3}V_{d2}$
$\% \left(\frac{S}{N} \right)_{dB}$	0,11	-0,11	0,55	-0,55	-0,66	0,66
mesure	9,88	-9,88	9,01	-9,01	-18,89	18,89

Tableau IV-16 : Effets moyens des interactions sur H_c

A partir de là, nous pouvons aussi tracer les graphiques des **figures IV.9** et **IV.10**.

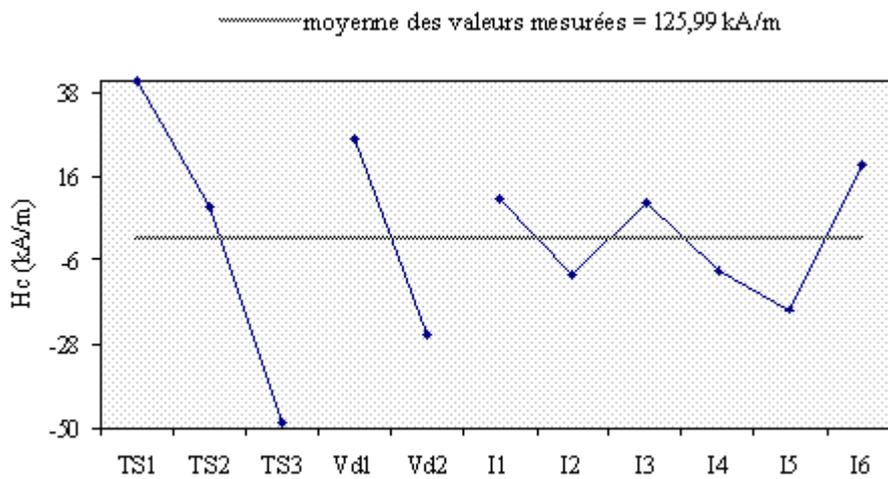


Figure IV-9 :
Effet moyen sur
la valeur mesurée
de H_c

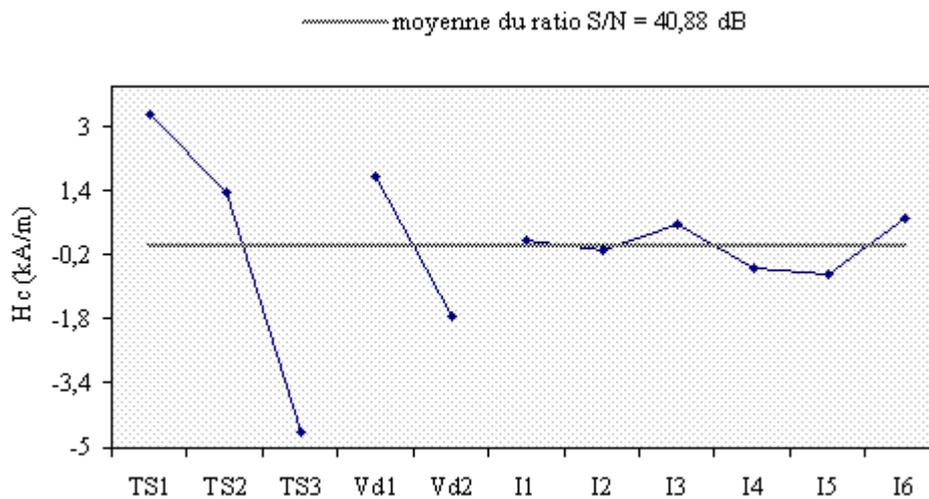


Figure IV-10 :
Effet moyen sur
le ratio S/N (dB)
de H_c

Grâce à la figure IV.9 représentant l'effet moyen des différents facteurs sur les valeurs mesurées, on s'aperçoit que la température des substrats a plus d'influence sur le champ coercitif que la vitesse de dépôt. Nous constatons aussi que les interactions sont, comme prévues, d'un degré moyen sur la gamme de températures étudiées. De plus, l'effet de la

température sur H_c est quasiment linéaire décroissant sur la plage testée. En effet, comme nous l'avons montré au chapitre III, plus la température des substrats est élevée et plus le champ coercitif est faible.

Enfin, le graphique de la **figure IV.10** qui représente l'effet moyen des facteurs sur le ratio $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$, permettra de mieux optimiser la valeur de H_c par la suite, étant donné que le ratio Signal / Bruit doit être maximal. De même que précédemment la combinaison $T_{S1}V_{d1}$ semble convenir ici.

IV.3.4.3. Rapport Fer / Baryum

Toujours dans le même esprit, dans un premier temps, nous réalisons un plan factoriel complet nécessaire à la détermination et à la quantification des interactions.

N°	T_s	V_d	n°1	n°2	n°3	moyenne
1	1	1	7,47	8,39	7,15	7,67
2	1	2	24,70	34,26	28,76	29,24
3	2	1	10,59	10,62	10,73	10,65
4	2	2	19,08	17,20	17,13	17,80
5	3	1	8,67	11,07	8,98	9,57
6	3	2	13,33	25,03	13,85	17,40

Tableau IV-17 : Résultats des essais et moyennes

A l'aide de ce tableau, il est possible de tracer le graphique de la **figure IV.11** qui représente l'effet moyen de la température des substrats sur le rapport Fer / Baryum pour les deux vitesses de dépôt. Celui-ci nous permet d'étudier le degré d'interaction (nul, faible, moyen ou fort) entre la température des substrats et la vitesse de dépôt.

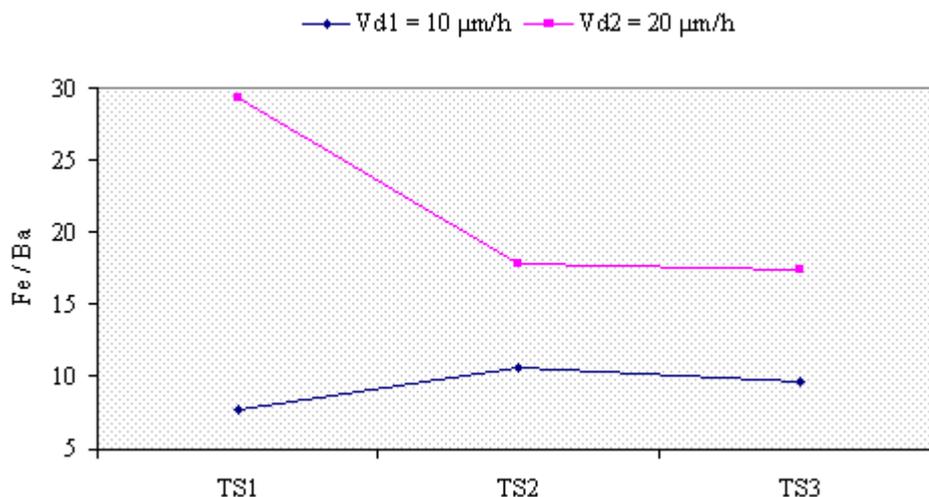


Figure IV-11 : Effet moyen de T_s sur le rapport Fer / Baryum

Ces droites n'étant pas parallèles, nous pouvons dire qu'entre 300 et 500°C il y a une interaction de degré moyen. Par contre, cette interaction est faible entre 500 et 700°C. Ainsi, l'effet de la température des substrats sur le rapport Fer / Baryum dépend de la vitesse de dépôt. Il est donc nécessaire d'introduire une nouvelle colonne affectée à l'interaction, dans la matrice d'expériences. De plus, cela permet de calculer le ratio Signal / Bruit.

Cette nouvelle matrice d'expériences est donnée dans le tableau IV.18. Il faut noter que, dans ce cas, la formule utilisée pour le calcul du ratio $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$ est différente des précédentes car ici, nous avons un critère ciblé à une valeur (Fe / Ba = 12).

N°	T _s	V _d	T _s V _d	n°1	n°2	n°3	moyenne	écart type	S/N (dB)
1	1	1	1	7,47	8,39	7,15	7,67	0,64	21,51
2	1	2	2	24,70	34,26	28,76	29,24	4,80	15,66
3	2	1	3	10,59	10,62	10,73	10,65	0,07	43,19
4	2	2	4	19,08	17,20	17,13	17,80	1,11	24,13
5	3	1	5	8,67	11,07	8,98	9,57	1,31	17,28
6	3	2	6	13,33	25,03	13,85	17,40	6,61	8,19

15,39	moyennes	21,66
-------	----------	-------

Tableau IV-18 : Résultats des essais, moyennes et ratios Signal / Bruit

Grâce à ce tableau, nous pouvons calculer les effets moyens des facteurs contrôlés sur le rapport Fe/Ba et son ratio Signal / Bruit.

valeur mesurée			Fe/Ba	ratio S/N (dB)		
niveau 1	niveau 2	niveau 3	facteur	niveau 1	niveau 2	niveau 3
3,07	-1,16	-1,90	T _s	-3,08	12,00	-8,92
-6,09	6,09		V _d	5,67	-5,67	

Tableau IV-19 : Effets moyens des niveaux des facteurs sur Fe/Ba

A partir de là, nous pouvons aussi calculer les différentes interactions. Les résultats obtenus sont regroupés dans le **tableau IV.20**.

interaction	T _{s1} V _{d1}	T _{s1} V _{d2}	T _{s2} V _{d1}	T _{s2} V _{d2}	T _{s3} V _{d1}	T _{s3} V _{d2}
%S/N (dB)	-2,74	2,74	3,87	-3,87	-1,12	1,12
mesure	-4,69	4,69	2,51	-2,51	2,18	-2,18

Tableau IV-20 : Effets moyens des interactions sur le rapport Fer / Baryum

Comme précédemment, nous pouvons alors former les graphiques représentés sur les **figures IV.12** et **IV.13** donnant les effets moyens des facteurs sur la valeur mesurée de Fe / Ba et sur le ratio $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$.

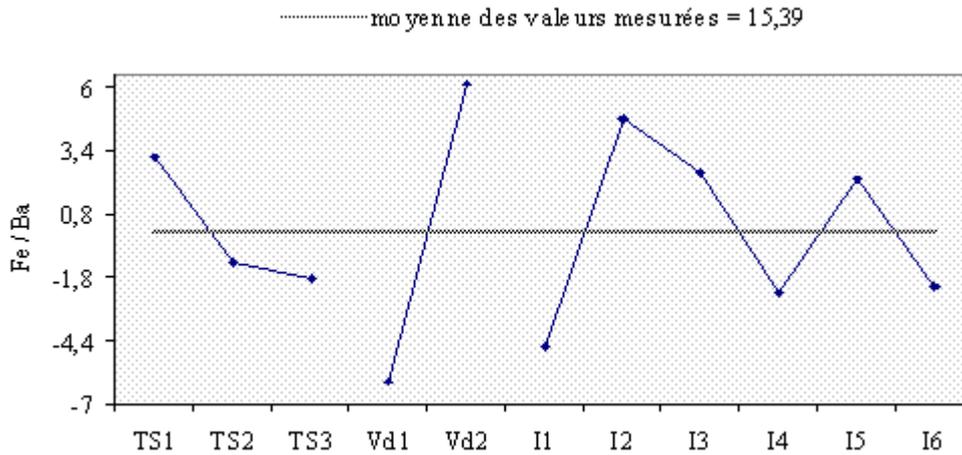


Figure IV-12 : Effet moyen sur la valeur mesurée de Fe / Ba

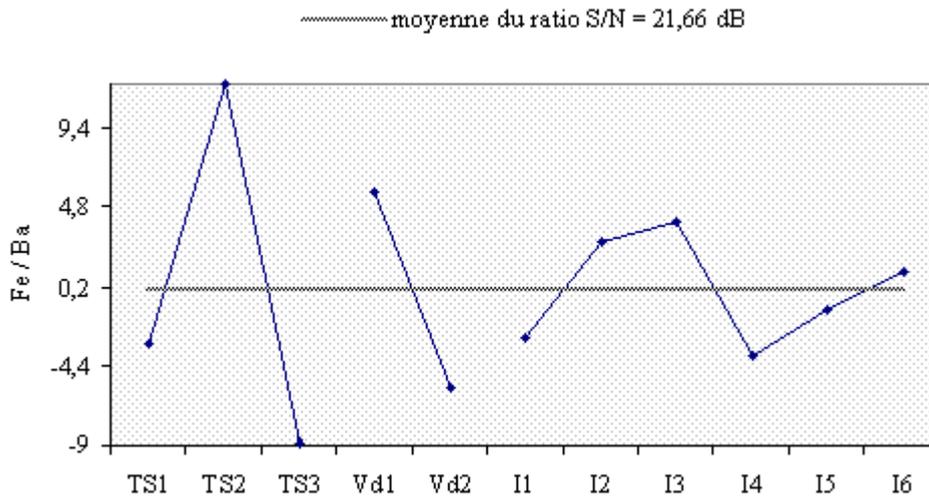


Figure IV-13 : Effet moyen sur le ratio S/N (dB) de Fe/Ba

Grâce à ces graphiques, nous nous apercevons que la vitesse de dépôt a plus d'influence sur le rapport Fer sur Baryum que la température. On constate aussi que les interactions sont, comme prévu, d'un degré moyen.

De même que précédemment, la **figure IV.13** permettra de mieux optimiser la valeur du rapport Fer / Baryum, étant donné que le ratio Signal / Bruit doit être maximal. La meilleure combinaison dans ce cas est $T_{S2}V_{d1}$.

IV.3.5. Conclusion et perspectives

L'objectif de notre étude est d'obtenir un rapport Fer / Baryum de 12, et de maximiser les valeurs de H_c et de J_s .

Pour cela, comme nous l'avons dit depuis le début, il faut maximiser le rapport Signal / Bruit pour toutes les grandeurs, afin d'éviter les dispersions. A partir des résultats que nous avons obtenus lors de cette étude nous pouvons conclure que ce ratio $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$ est maximal

lorsque la température des substrats et la vitesse de dépôt sont au niveau 1. A partir de là nous avons regroupé dans le **tableau IV.21** les effets moyens de T_s et V_d au niveau 1 et de l'interaction correspondante sur la valeur mesurée et le ratio Signal / Bruit pour le champ coercitif, l'intensité d'aimantation à saturation et le rapport Fer / Baryum.

facteurs	niveau		J_s	H_c	Fe / Ba
T_s	1	valeur mesurée	0,026	40,84	3,07
		ratio Signal / Bruit	1,53	3,32	-3,08
V_d	1	valeur mesurée	0,011	25,62	-6,09
		ratio Signal / Bruit	0,61	1,74	5,67
$T_s V_d$	I_1	valeur mesurée	-0,003	9,88	-4,69
		ratio Signal / Bruit	-0,24	0,11	-2,74
ratio Signal / Bruit théorique résultant			-13,36	46,05	21,51
valeur mesurée théorique résultante			0,215	202,33	7,67

Tableau IV-21 : Tableau d'optimisation

Dans ce tableau les valeurs résultantes théoriques sont calculées de la façon suivante :

$$\text{pour } J_s : J_s = \bar{T} + E_{TS1} + E_{Vd1} + I_1 \quad (4.6)$$

avec : \bar{T} : moyenne de l'ensemble des essais,

I_1 : interaction $T_{S1}V_{d1}$,

E_{TS1} : effet moyen de T_s au niveau 1 sur J_s ,

E_{Vd1} : effet moyen de V_d au niveau 1 sur J_s .

En pratique, pour J_s nous avons donc :

$$J_s = 0,181 + 0,026 + 0,011 + (-0,003) = 0,215 \text{ Tesla}$$

$$J_s(S/N(dB)) = -15,26 + 1,53 + 0,61 + (-0,24) = -13,36 \text{ dB.}$$

Ces valeurs ont déjà été obtenues expérimentalement (voir **tableaux IV.10, IV.14 et IV.18**) puisque le nombre de facteurs étant faible, nous avons réalisé un plan factoriel complet.

Cette combinaison des différents facteurs nous permet d'obtenir pour J_s et H_c un rapport $\left(\frac{S}{N}\right)_{dB}$ maximal ainsi qu'une valeur mesurée maximale. Cependant cette combinaison n'est pas satisfaisante dans le cas du rapport Fer / Baryum ($Fe / Ba \neq 12$).

Un autre facteur jouant un rôle important sur ce rapport Fer / Baryum est apparu depuis la réalisation de cette étude : **la durée du dépôt** (voir chapitre III). En effet, nous avons montré qu'il se produit probablement des phénomènes d'évaporation préférentielle durant la phase de dépôt qui nous empêchent de contrôler la composition des couches et donc la valeur du rapport Fer / Baryum. Il sera donc nécessaire de refaire cette étude en intégrant ce paramètre supplémentaire.

Cependant, la démarche présentée a montré l'utilité de ces techniques d'optimisation qui sont abordées de façon approfondie par Sandrine Karam, dans le cadre de sa thèse débutée il y a un an au sein de l'équipe. Cela lui permettra, en s'appuyant sur les résultats expérimentaux acquis, de contribuer à l'étude plus complexe, car faisant intervenir un plus grand nombre de paramètres, liée à l'usage d'une installation équipée d'un tri-canon (voir chapitre III).

Bibliographie du chapitre IV

[1] CLAUSING Don

Taguchi methods to improve the development process, Massachusetts institute of technology, IEEE, 1988, pp 826 – 832.

[2] ALEXIS Jacques et Philippe

Pratique industrielle des plans d'expériences Taguchi, Paris, AFNOR, 1999, ISBN 2-12-465038-6.

[3] CHOU Tai-Yu

Applications of the Taguchi methods for optimized package design, Express Packaging Systems Inc., IEEE, 1996, pp 14 – 17.

[4] WEAVER Jonathan M.

A course in design for quality, Frontiers in education conference, IEEE, 1997, pp 968 – 971.

CONCLUSION GENERALE

Tout d'abord, rappelons que l'objectif de cette thèse était de réaliser des couches d'hexaferrite de baryum possédant les propriétés nécessaires à la conception future d'un circulateur intégré.

La technique de dépôt employée, l'évaporation au canon à électrons, nous a permis d'atteindre des vitesses de dépôts (jusqu'à 37 $\mu\text{m/h}$) compatibles avec la réalisation de couches possédant des épaisseurs importantes (50 μm) tout en conservant une adhérence convenable entre le substrat et la couche de ferrite.

D'un point de vue cristallographique, les couches réalisées ont montré qu'en modifiant les paramètres de dépôt nous pouvons obtenir soit la phase unique de l'hexaferrite de baryum de type M, soit un mélange de phases comprenant la phase précédemment citée et la phase spinelle (BaFe_2O_4), l'apparition de cette dernière n'étant pas uniquement liée aux variations de composition chimique ($2,3 < \frac{\text{Fe}}{\text{Ba}} < 56$). De plus, tous les dépôts présentent une orientation cristallographique préférentielle dans le plan de la couche. Compte tenu de ce qui a été dit au chapitre I, pour obtenir le phénomène de résonance gyromagnétique, ceci est un problème qu'il est impératif de surmonter en vue de la réalisation d'un circulateur intégré. Quelques pistes ont été explorées (modification du substrat et utilisation d'un champ magnétique durant la phase de dépôt) mais n'ont pas permis d'obtenir une orientation selon l'axe c perpendiculaire.

Dans l'ensemble, les propriétés magnétiques (J_s et H_c) mesurées sur les couches sont acceptables pour l'application visée. En effet, l'intensité d'aimantation à saturation maximale relevée est proche de 0,41 Tesla, ce qui est la valeur mesurée sur le ferrite de baryum massif ($J_s = 0,4$ Tesla) et la valeur la plus faible vaut 0,11 Tesla. Cependant ces deux valeurs ne sont pas très significatives de l'ensemble des valeurs obtenues, ces dernières étant plutôt comprises entre 0,15 et 0,24 Tesla. De même, les valeurs du champ coercitif ($44 < H_c < 267$ kA/m) sont acceptables comparées à celle du massif ($H_c \approx 100$ kA/m). De plus, nous avons constaté que les valeurs de ce champ sont plus importantes après recuit. Cependant, après avoir subi un recuit à haute température, la surface des couches présente de nombreuses fissures malgré l'utilisation de sous-couches intermédiaires permettant l'adaptation des coefficients de dilatation thermique. Ces fissures pourront être réduites par l'utilisation d'un four de recuits rapides qui est en cours de mise au point au sein de l'équipe.

Nous avons aussi mis en évidence des phénomènes d'évaporation préférentielle qui ont lieu, soit durant la phase de dépôt elle-même, soit lors de la formation du lingot de ferrite. Ces phénomènes nous empêchent de contrôler la composition chimique des couches. En effet, la grande majorité des dépôts ne présente pas la composition du ferrite de baryum massif $\left(\frac{\text{Fe}}{\text{Ba}}\right) \approx 12$.

Dans le futur, ce problème d'évaporation préférentielle sera éliminé grâce à l'utilisation d'un bâti d'évaporation équipé de trois sources différentes. Il permettra, dans un premier temps, d'évaporer de façon séparée l'oxyde de fer et l'oxyde de baryum puis, dans un second temps, de procéder à l'étude de ferrites doux comme le ferrite de Nickel-zinc ou celui de Lithium-Zinc.

En effet, comme il apparaît difficile d'orienter les couches de ferrite de baryum selon l'axe c perpendiculaire, une autre solution envisageable serait de déposer une couche de ferrite doux entre deux couches d'aimant, ces dernières servant à polariser la couche de ferrite. Actuellement, une thèse en cours au sein du laboratoire porte sur la réalisation et l'optimisation de couches minces de Samarium-Cobalt. Un deuxième aimant devrait être étudié : le Néodyme-Fer-Bore.

Enfin, nous avons montré que la méthode des plans d'expériences pouvait être appliquée à l'optimisation des propriétés des couches réalisées par les techniques classiques de dépôts sous vide. Les résultats présentés au chapitre IV, concernant l'application de la méthode Taguchi à notre cas, ne constituent qu'une pré-étude qui est approfondie actuellement dans le cadre d'une thèse menée dans l'équipe. En effet, la démarche à suivre est beaucoup plus complexe que cela, puisque en toute rigueur, avant de choisir un plan d'expérience, il faut réaliser une « Analyse en Composante Principale » qui permet d'une part de mettre en évidence les interactions entre les différents facteurs et d'autre part de faire ressortir ceux qui ont le plus d'influence sur la grandeur à optimiser.

ANNEXES

ANNEXE I :
Processus d'évaporation
au canon à électrons

I. Introduction

Dans le processus d'évaporation, la vapeur du matériau à déposer est produite par le chauffage de ce matériau à une température telle que sa pression de vapeur soit très supérieure à la pression de vapeur de l'enceinte où se déroule le procédé. Les techniques utilisées pour chauffer les matériaux à évaporer sont multiples :

- chauffage par résistance (effet Joule),
- par bombardement électronique (canon à électrons),
- par laser,
- par arc électrique...

Les substrats sont en général placés au dessus de la source, dans une position telle que la surface à recouvrir d'un dépôt soit en regard de la vapeur provenant de cette source.

Nous allons développer uniquement le cas où la source d'évaporation est chauffée en utilisant un canon à bombardement électronique.

II. Présentation des différentes étapes du processus d'évaporation [1]

II.1. Mise en phase vapeur

Tout d'abord, le matériau est chauffé jusqu'à sa température d'évaporation à l'aide du faisceau d'électrons. Les atomes du matériau à déposer sont donc mis en phase vapeur. Une fois émises, les particules se déplacent dans tout le volume de l'enceinte de dépôt avant d'atteindre les substrats.

II.2. Transfert de la vapeur

Dès que l'atome quitte la surface du lingot, la nature de sa trajectoire dépend de la présence ou non d'un gaz. En effet, en l'absence de gaz cette trajectoire est rectiligne car l'atome ne subit, statistiquement, aucune collision durant son déplacement. Dans le cas où il y a présence d'un gaz, l'atome subit des collisions avec les atomes de ce gaz. La distance parcourue entre deux collisions successives avec une autre particule est caractérisée par le libre parcours moyen λ_m . Sa valeur dépend de la pression dans l'enceinte, de la température, du rayon des particules...

Pour décrire le transport de la vapeur métallique, il faut prendre en compte la valeur de la pression du gaz présent dans l'enceinte de dépôt. En théorie, on distingue trois cas :

• dans le premier cas, la pression de gaz résiduel est négligeable ($P < 10^{-2}$ Pa). La probabilité d'avoir une collision entre un atome éjecté et un atome de gaz est presque nulle. Le libre parcours moyen est largement supérieur aux dimensions de l'enceinte. Ce régime, schématisé sur la **figure 1.a**, est appelé régime balistique,

• dans le second cas, la pression de gaz n'est plus négligeable ($10^{-2} \leq P \leq 2$ Pa). Ici, le libre parcours moyen n'est plus très grand devant la distance source-substrats. La probabilité d'avoir une collision entre un atome éjecté et un atome du gaz n'est plus nulle. Lors d'une collision, il y a échange d'énergie et de quantité de mouvement entre les deux partenaires : l'atome incident change de direction, son énergie varie et il repart en ligne droite avec un nouveau libre parcours moyen. Sa trajectoire est alors schématisée par une ligne brisée entre la source et les substrats (**figure 1.b**),

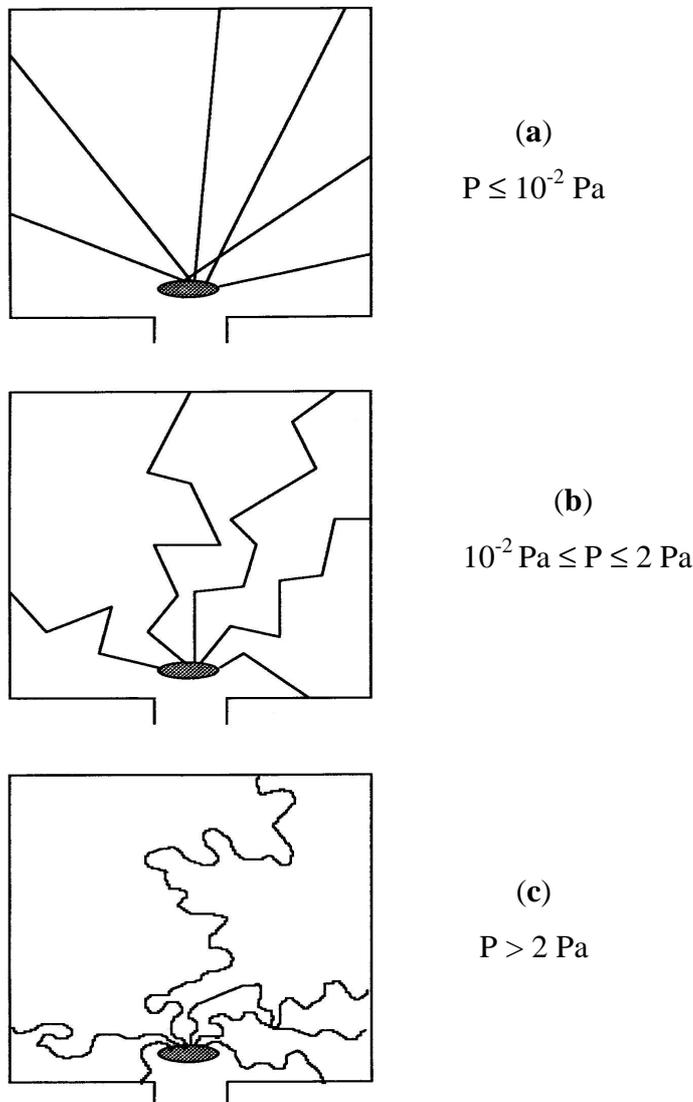


Figure 1 : Schématisation des différents modes de transport de la vapeur dans les techniques de dépôt sous vide

- enfin, lorsque la pression de gaz est élevée ($P > 2 \text{ Pa}$), la probabilité d'avoir une collision entre un atome éjecté et, au moins, un atome de gaz, est proche de 1. Dans ce cas, le nombre de collisions est tellement important que l'atome perd rapidement son énergie cinétique et se thermalise. Son énergie cinétique devient égale à celle du gaz. L'atome diffuse à travers le gaz (**figure 1.c**). Ce mode de transfert est appelé régime diffusionnel.

II.3. Condensation de la vapeur

Quand ils arrivent sur les substrats, les premiers atomes, en fonction de leur énergie, peuvent : soit être absorbés au point d'impact, soit diffuser pour se répartir de façon statistique dans des sites préférentiels de la surface (liaisons pendantes, lacunes ...). Ils vont permettre l'accrochage d'autres atomes. Il se forme des îlots qui grossissent indépendamment. Ces îlots se lient les uns aux autres pour former un maillage lâche qui finit par se transformer en couche continue sur laquelle va croître le dépôt.

III. Les principales lois de l'évaporation

III.1. Vitesse d'évaporation

Il s'agit d'une grandeur caractéristique en évaporation. Elle représente la quantité de matière (masse) évaporée par unité de temps dans tout le demi-espace situé au-dessus de la source. Généralement cette valeur est obtenue par pesée du lingot avant et après le dépôt.

III.2. Fonction de distribution spatiale

En pratique, les atomes évaporés ne sont pas répartis uniformément dans tout le demi-espace au-dessus de la source. Pour caractériser cette répartition, on pose que le nombre d'atomes émis dans un angle solide élémentaire $d\Omega$, autour d'une direction faisant un angle θ avec la normale (voir **figure 2**), est de la forme :

$$dN_e = N_0 g(\theta) d\Omega$$

Dans cette expression nous avons :

- N_0 : nombre total d'atomes évaporés par unité de temps,
- $g(\theta)$: fonction de distribution des atomes évaporés dans l'espace.

La fonction de distribution $g(\theta)$ est matérialisée en traçant son indicatrice d'émission. A partir d'une origine M on porte, dans une direction faisant un angle θ avec la normale à la

source, un vecteur $\overrightarrow{MP_i}$ tel que : $\|\overrightarrow{MP_i}\| = g(\theta)$. La courbe obtenue en joignant l'extrémité de ces vecteurs (lieu géométrique des points P_i), est l'indicatrice d'émission (**figure 2**).

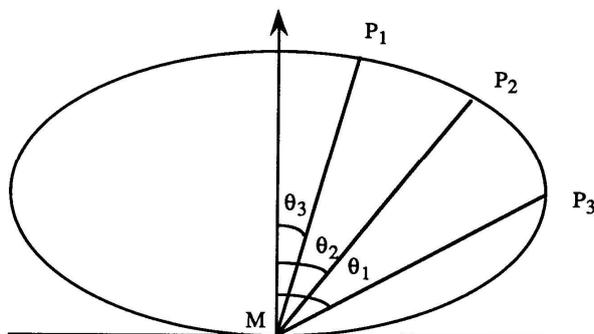


Figure 2 : Indicatrice d'émission d'une source d'évaporation supposée ponctuelle

Il faut noter que la forme de la fonction de distribution spatiale dépend de la vitesse d'évaporation.

III.2.1. Cas des faibles vitesses

Si la vitesse d'évaporation est faible, la fonction de distribution spatiale est approchée par une loi de Knudsen :

$$g(\theta) = \frac{\cos \theta}{\pi}$$

L'indicatrice de cette fonction est représentée par un cercle (une sphère en trois dimensions) tangent à la surface au point M comme le montre la **figure 3** ci-dessous.

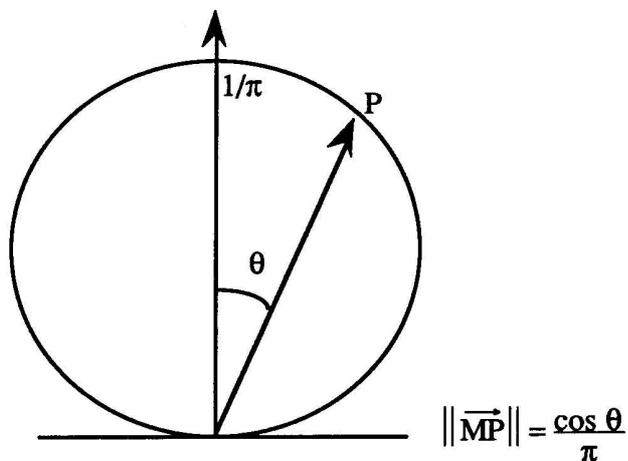


Figure 3 : Indicatrice d'émission de la loi de Knudsen

III.2.2. Cas des fortes vitesses

Quand la vitesse d'évaporation augmente, tout se passe comme s'il y avait une pseudo-focalisation des atomes évaporés autour de la normale à la source. Autrement dit, tout se passe comme si la loi d'émission n'était plus en $\cos \theta$ mais en $\cos^n \theta$, avec $n \geq 1$. La fonction de distribution est alors de la forme :

$$g(\theta) = \frac{n+1}{2\pi} \cos^n \theta$$

où n croît avec la vitesse d'évaporation.

Afin d'obtenir un meilleur accord entre les résultats théoriques et les résultats expérimentaux, E. B. Graper utilise une loi légèrement différente, de la forme :

$$g(\theta) = (1-A) \cos^n \theta + A$$

où A et n sont des coefficients dépendant des conditions de dépôt.

Cependant ce type de formalisme est peu utilisé. En général, c'est la fonction de distribution en $\cos^n \theta$ qui est employée. La **figure 4** ci-dessous, représente en exemple d'indicatrice d'émission [2] dans le cas de l'évaporation au canon à électrons.

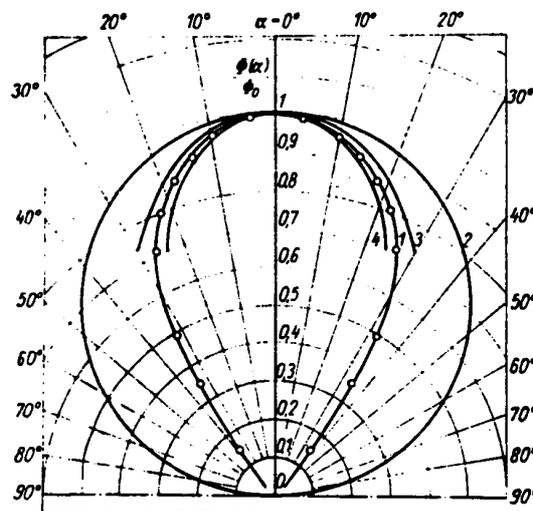


Figure 4 : Répartition spatiale normalisée pour une vitesse d'évaporation de $6,67 \text{ mg.s}^{-1}$

- 1 : courbe expérimentale
- 2 : courbe théorique $\cos \theta$
- 3 : courbe théorique $\cos^2 \theta$
- 4 : courbe théorique $\cos^3 \theta$

III.3. Fonction de distribution énergétique

Tous les atomes quittant la surface du lingot ne possèdent pas la même énergie. On considère généralement que la répartition des énergies obéit à une distribution de Maxwell-Boltzmann. La fonction de distribution d'énergie des atomes évaporés s'écrit sous la forme :

$$f(E) = \frac{2\pi}{(\pi k T)^{3/2}} \sqrt{E} \exp\left(-\frac{E}{kT}\right)$$

avec :

- E : énergie d'un atome évaporé,
- k : constante de Boltzmann,
- T : température des atomes à la sortie de la source (généralement prise égale à la température d'évaporation du matériau à déposer).

L'énergie moyenne $\langle E \rangle = \frac{3}{2}kT$ est de l'ordre de quelques dixièmes d'électronvolt.

IV. Avantages et inconvénients du chauffage par bombardement électronique

Les principaux avantages du canon à électrons sont :

- l'obtention de couches propres car il ne peut pas y avoir contamination du matériau à évaporer par le creuset en cuivre refroidi par eau,
- une vitesse de dépôt qui peut varier dans une plage étendue, de très faible à très forte. Les valeurs varient avec la puissance appliquée, la nature du matériau à déposer et les conditions de réalisation du dépôt.

Le principal inconvénient réside dans la difficulté à maîtriser l'évaporation d'alliages. Les alliages à deux ou plusieurs composants ont des pressions de vapeur différentes, et donc des vitesses d'évaporation différentes. Si on évapore un alliage à partir d'une seule source, la composition de la phase vapeur et donc celle du dépôt, change continuellement. C'est typiquement le problème que nous avons rencontré lors de l'évaporation de l'hexaferrite de baryum.

Nous allons maintenant présenter la solution envisagée pour résoudre ce problème.

Bibliographie Annexe 1

[1] MALAURIE Agnès

Modélisation des mécanismes de transport de la vapeur métallique dans les techniques de dépôt physique en phase vapeur, pp 3 – 12, Thèse de doctorat en matériaux céramiques et traitement de surface, Université de Limoges, janvier 1995.

[2] SCHILLER S., HEISIG U., PANZER S.

Electron beam technology, ed : J. Wiley & Sons, New York, Chichester, Brisbane, Toronto, Singapore, 1982.

ANNEXE II :
Processus d'évaporation
au tri-canons

I. Introduction

Pour résoudre le problème de l'évaporation des alliages qui ont des pressions de vapeur différentes, on peut utiliser plusieurs sources d'évaporation (une pour chaque matériau). La vitesse d'évaporation de chaque source doit être contrôlée avec précision en utilisant une balance à quartz pour chaque source. De plus, afin d'obtenir, sur les substrats placés en regard des sources, un bon mélange des différentes vapeurs, la distance source-substrat ne doit pas être choisie au hasard. Enfin, si la différence de densité des matériaux est importante, il sera difficile d'obtenir une composition uniforme sur toute la surface des substrats à cause des collisions entre atomes légers et atomes lourds qui risquent d'entraîner une dispersion des atomes légers.

Nous allons maintenant présenter très succinctement l'étude en cours concernant la mise au point de la nouvelle installation de dépôt.

II. Conception d'un bâti de dépôt par co-évaporation au canons à électrons

Les résultats de simulation présentés dans cet annexe font l'objet de la thèse de Pierre Aubreton au sein de l'équipe. Nous lui avons demandé de simuler, par la méthode de Monte Carlo, l'évaporation séparée de trois matériaux et de regarder l'influence de la distance source-substrat, de la position des sources d'évaporation et de la vitesse de rotation des substrats sur la répartition en épaisseur et la répartition en composition des dépôts.

Les différentes simulations ont montré que la distance source-substrat devait être au moins égale à 40 cm pour obtenir une répartition en épaisseur uniforme sur les substrats.

II.1. Etude de la position des sources d'évaporation

Le dispositif expérimental comportera trois sources d'évaporation. L'évaporation de chaque matériau sera réalisée par trois canons à électrons. La disposition des différents canons sur la platine intermédiaire de l'enceinte, est actuellement à l'étude par le constructeur. L'enceinte sera a priori un cube de 55 cm de côté. Les deux configurations qui pourraient être retenues sont reportées sur la **figure 1**.

Les résultats des simulations que nous allons présenter, ont été réalisées dans la configuration (a) où les trois sources d'évaporation sont disposées aux trois sommets d'un triangle équilatéral. Les matériaux choisis sont le fer, le nickel et le zinc et leur vitesse d'évaporation est supposée identique et égale à 7,7 mg/s. Le nombre de particules simulées est de 50 millions pour chaque source. De façon à nous placer dans les conditions les plus

défavorables pour obtenir des dépôts homogènes en composition, nous avons pris une loi d'émission en $\cos^5\theta$ et nous nous sommes placés dans le cas où les atomes évaporés ne subissent aucune collision dans le volume de transfert source-substrat (régime balistique).

Dans un premier temps, le porte-substrats est supposé immobile.

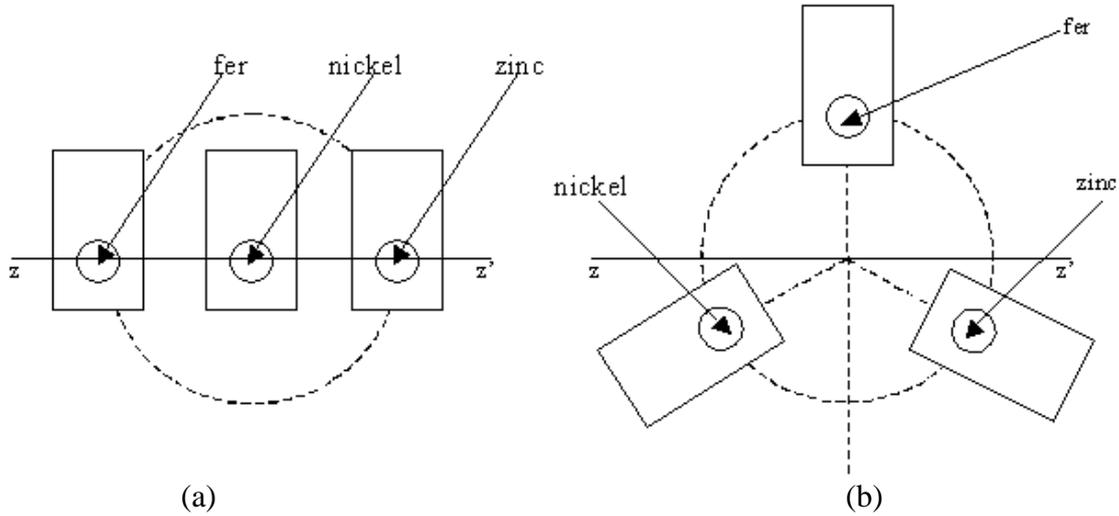


Figure 1 : Positionnement des trois blocs canons à électrons

II.2. Etude de la répartition en épaisseur et de la composition des films

II.2.1. Porte-substrats fixe

La **figure 2** représente la répartition en épaisseur simulée selon l'axe zz' de la figure 1.

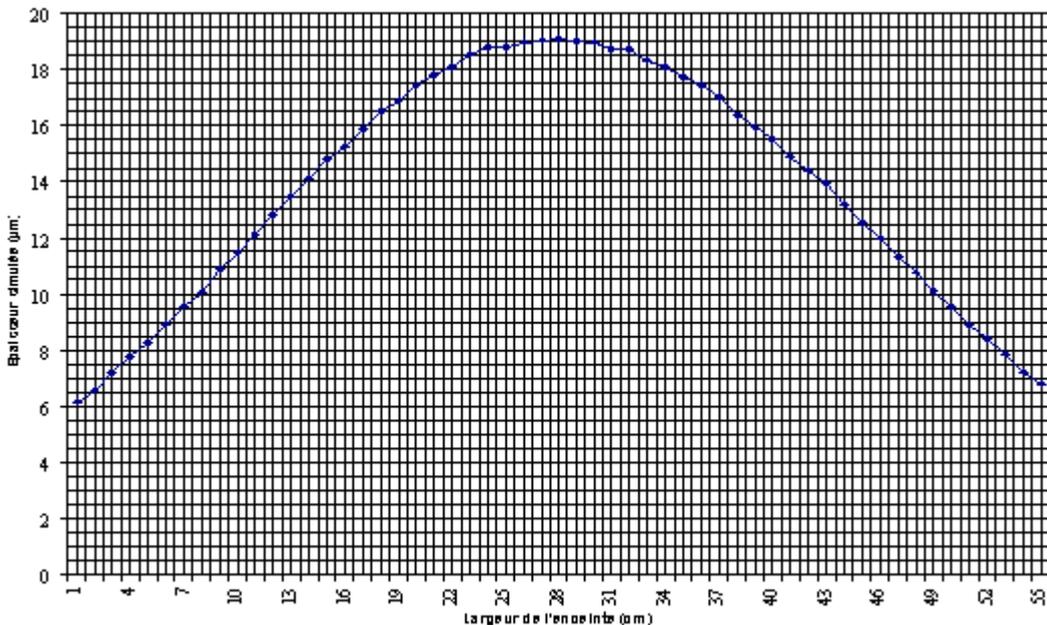


Figure 2 : Répartition en épaisseur mesurée selon l'axe zz' de la figure 1

L'épaisseur simulée en chaque point est la somme des épaisseurs de fer, de nickel et de zinc. Nous constatons que l'épaisseur est relativement homogène au centre sur une distance de 5 cm puisque l'épaisseur est comprise entre 18,5 et 19 μm .

Par contre, la **figure 4** qui représente respectivement les pourcentages de fer, de nickel et de zinc contenus dans la couche, montre que les dépôts ne sont pas homogènes en composition. Ce résultat était prévisible compte tenu de l'emplacement des différentes sources d'évaporation par rapport aux substrats. Il est normal de retrouver beaucoup plus de nickel à gauche et de fer à droite de la figure. De plus, quelque soit le matériau, les pourcentages simulés varient de façon très importante. Par exemple, le pourcentage de fer contenu dans le dépôt varie entre 10 et 70 % d'une extrémité à l'autre du substrat.

Afin de remédier à ce problème, d'autres simulations ont été réalisées en simulant la rotation du porte-substrats. En réalité, le code de calcul développé prend en compte la rotation des trois sources d'évaporation ce qui, d'un point de vue théorique, est identique à la rotation des substrats. Dans la pratique, il serait impossible de déplacer les trois blocs canons à électrons alors qu'une rotation du porte-substrats bien que complexe, est déjà envisagée.

III.2.2. Porte-substrats en rotation

Comme on peut le voir sur la **figure 3**, la rotation des substrats ne modifie pas la répartition en épaisseur obtenue précédemment.

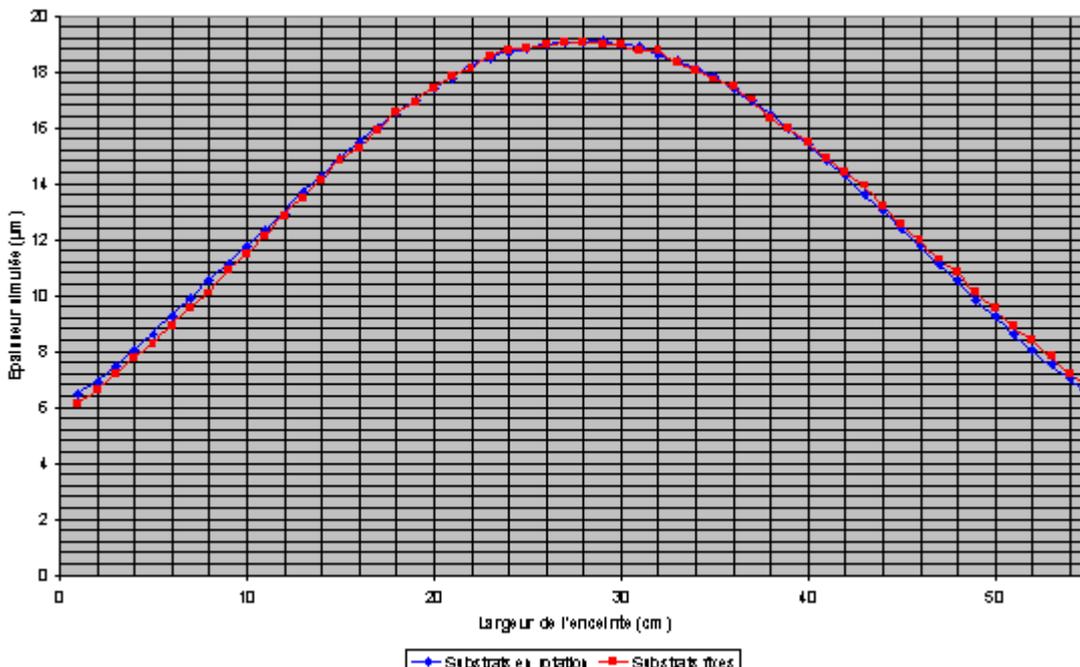


Figure 3 : Répartition en épaisseur mesurée selon l'axe zz' de la figure 1

Par contre, à partir d'une vitesse de rotation de 10 tr/min, nous constatons (voir **figure 5**) que la couche déposée devient relativement bien homogène en composition et ceci pour les trois matériaux évaporés. En effet, comme le montre cette figure, les pourcentages simulés ne varient que de 1,5 % d'une extrémité à l'autre du substrat dont les dimensions sont importantes (carré de côté 55 cm).

III. Conclusion

Ces premiers résultats de simulation menés en parallèle avec le concepteur de la nouvelle installation d'évaporation utilisant trois blocs canons à électrons, sont très encourageants. Nous pensons ainsi pouvoir résoudre les problèmes d'évaporation préférentielle inhérents à la technique de dépôt utilisée jusqu'alors et obtenir des films de ferrites (ferrites doux ou ferrites durs) présentant les propriétés chimiques et physiques des matériaux massifs.

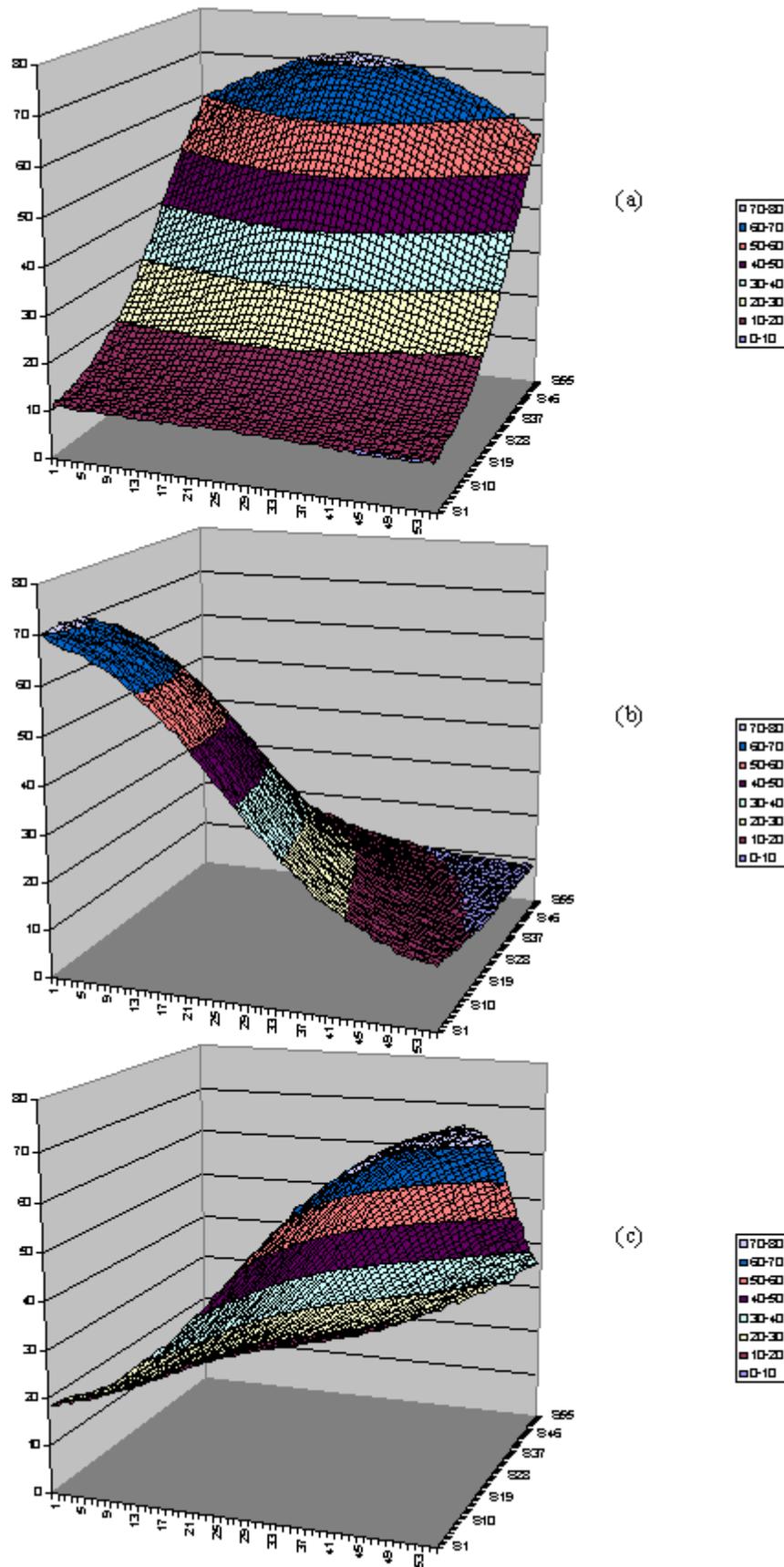


Figure 4 : Evolution des pourcentages de fer (a), de nickel (b) et de zinc (c) sur un substrat immobile de dimension 55 cm × 55 cm situé à 40 cm des sources d'évaporation