

# UNIVERSITE DE LIMOGES

ECOLE DOCTORALE Science – Technologie – Santé

FACULTE des Sciences et Techniques

Année : 2003

Thèse N° 65.2003

Thèse

pour obtenir le grade de

Docteur de l'Université de Limoges

Discipline / Spécialité : Electronique des hautes fréquences et optoélectronique

présentée et soutenue par

Matthieu VALETAS

le 27 novembre 2003

## Couches minces magnétiques pour applications hyperfréquences : étude des Samarium-Cobalt et des Néodyme-Fer-Bore par pulvérisation radiofréquence magnétron

Thèse dirigée par Jean-Claude VAREILLE et Françoise COSSET

M. J.P. GANNE	Thalès Research and Technologies, Orsay	Rapporteur
M. D. GIVORD	Laboratoire Louis Néel, Grenoble	Rapporteur
M <sup>me</sup> A. BESSAUDOU	Université de Limoges	Examinatrice
M <sup>elle</sup> F. COSSET	Université de Limoges	Examinatrice
M. J.P. MERCURIO	Université de Limoges	Examineur
M. J.C. VAREILLE	Université de Limoges	Examineur
M <sup>elle</sup> N.DEMPSEY	Laboratoire Louis Néel, Grenoble	Invitée

A mes grands-pères Jean Valetas (†), docteur en pharmacie,  
et Albert Massonie, docteur en médecine,  
qui m'ont tant appris,  
A ma grand-mère Huguette Massonie (†),  
A mes parents,  
A toute ma famille,  
A tous ceux qui m'ont soutenu.

« Labor omnia vincit improbus »...la preuve !

## REMERCIEMENTS

Ces travaux ont été réalisés à Limoges au sein de l'équipe Composants et Circuits Microélectroniques et Microoptiques (C2M) de l'Institut de Recherche en Communications Optiques et Microondes (IRCOM), sous la direction de M. Jean-Claude Vareille, professeur à l'Université de Limoges, et de M<sup>elle</sup> Françoise Cosset, maître de conférence à l'Université de Limoges. Je leur exprime ici mes chaleureux remerciements pour avoir assumé la charge de travail qu'engendre l'encadrement d'une thèse, en particulier les nombreuses relectures du manuscrit.

Je sais gré à M. Jean-Pierre Ganne, docteur d'état, chef du laboratoire Matériaux et dispositifs céramiques de Thalès Research and Technologies, et à M. Dominique Givord, directeur de recherches au laboratoire Louis Néel de Grenoble, d'avoir accepté de juger cette étude. Par ses conseils, M. Givord a permis des avancées déterminantes dans mes travaux.

M. Jean-Pierre Mercurio, professeur à l'Université de Limoges, m'a fait l'honneur de présider le jury. Par ses suggestions, il a souvent permis d'éclairer des points difficiles rencontrés durant ces trois années. Qu'il trouve ici l'assurance de toute ma gratitude. Madame Annie Bessaudou, professeur à l'Université de Limoges, a également contribué à la résolution de nombreuses difficultés. Je la remercie ici pour sa précieuse aide. Quant à M<sup>elle</sup> Nora Dempsey, chargée de recherches au laboratoire Louis Néel de Grenoble, je n'oublierai pas ses efforts dans la conception des cibles de pulvérisation.

Mes remerciements vont également au personnel de l'Université de Limoges qui m'ont aidé dans mon travail, et particulièrement à M. Alain Célérier, professeur et actuel doyen de la faculté des sciences et techniques, pour ses compétences techniques et sa sympathie, à Madame Danielle Mercurio, professeur, à messieurs Jean-Paul Laval et Philippe Thomas, respectivement ingénieur de recherches et chargé de recherches, à M. Pierre Carle, ingénieur d'étude, et à M. Thierry Monédière, professeur.

Ces travaux auraient été difficilement réalisables sans la grande compétence de messieurs Jean-Paul Jabet et Aimé Leblanc, tous deux techniciens. J'exprime en particulier à ce dernier ma chaleureuse amitié, sans cesse entretenue par ces grands moments de rire passés ensemble. Je n'oublierai pas non plus son sens inné de l'accueil.

Cette thèse n'aurait pu être soutenue sans l'amitié de M. Marc Vérité et l'aide intellectuelle de M. Emmanuel Briney, tous deux anciens doctorants de l'Université de Limoges. Qu'ils trouvent ici l'expression de mon immense reconnaissance.

Je ne peux oublier non plus l'irremplaçable soutien moral ou matériel de ceux qui ont jalonné mon cursus universitaire, comme Marie-Noëlle Ferret, Ricardo del Rio, Edouard Bordenave, Patrice Brugère, Sandrine Karam, Pierre Aubreton, ainsi que tous les doctorants et personnels qui ont facilité mon travail pendant ces trois années.

Enfin, cette liste serait incomplète si je ne mentionnais pas le long et ininterrompu mécénat de mes parents pendant ces huit années d'étude. Puissent-ils être patients, c'est bientôt fini !

# TABLE DES MATIERES

INTRODUCTION .....	6
Première partie : étude bibliographique .....	9
I Propriétés de propagation des ondes électromagnétiques dans les ferrites [1, 2, 3] .....	11
I.1 Quelques généralités sur les ferrites .....	11
I.2 Non-réciprocité dans les ferrites .....	11
I.2.1 Approche macroscopique de la non-réciprocité .....	12
I.2.2 Approche théorique de la non-réciprocité.....	14
II Applications micro-ondes des dispositifs non-réciproques à ferrite [6] .....	18
II.1 Les circulateurs .....	18
II.1.1 Principe de fonctionnement .....	18
II.1.2 Utilisation des circulateurs.....	19
II.1.3 Intégration des circulateurs .....	19
II.2 Les antennes à ferrite .....	20
II.2.1 Principe et intérêts [7].....	20
II.2.2 Intégration des antennes à polarisation circulaire [8] .....	20
III Les principaux aimants permanents .....	22
III.1 Les aimants de type Samarium-Cobalt .....	22
III.1.1 Présentation.....	22
III.1.2 Diagramme de phase du système Sm-Co [9].....	22
III.1.3 Structure cristallographique des alliages $\text{SmCo}_5$ , $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ et $\text{Sm}_2\text{Co}_7$ .....	23
III.2 Les aimants de type Néodyme-Fer-Bore .....	27
III.2.1 Généralités .....	27
III.2.2 Diagrammes de phase .....	27
III.2.3 Structure de la phase $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ [14].....	29
IV Etude bibliographique : pulvérisation cathodique magnétron de cibles d'aimants .....	31
IV.1 Choix de la technique de dépôt.....	31
IV.2 Aimants à base de Samarium-Cobalt .....	31
IV.2.1 Orientation cristallographique des couches .....	31
IV.2.2 Aimantation et champ coercitif.....	32
IV.2.3 Paramètres expérimentaux de pulvérisation .....	32
IV.2.4 Conclusion .....	34
IV.3 Couches de Néodyme-Fer-Bore.....	35
IV.3.1 Orientations cristallographiques des couches.....	35

IV.3.2 Propriétés magnétiques .....	35
IV.3.3 Protocoles expérimentaux en pulvérisation cathodique.....	35
IV.3.4 Problème du déficit en Néodyme.....	36
IV.3.5 Expérience de l'équipe C2M .....	36
IV.4 Conclusion de l'étude bibliographique .....	36
Deuxième partie : simulation du comportement d'une antenne intégrée à ferrite.....	41
I Introduction et contexte de l'étude .....	42
II Bilan des travaux d'Ibrahima Wane, de Marc Vérité et d'Emmanuel Briney.....	43
II.1 Travaux d'Ibrahima Wane [1] .....	43
II.1.1 Couches de ferrite de baryum et de ferrite de strontium.....	43
II.1.2 Couches de Nickel-Zinc.....	43
II.2 Thèse de Marc Vérité [2] .....	44
II.3 Travaux d'Emmanuel Briney [3] .....	44
III Simulation du comportement d'une antenne à ferrite intégrée.....	45
III.1 Définitions préliminaires .....	45
III.1.1 Notion de longueur d'onde guidée.....	45
III.1.2 Dimensions d'une antenne .....	46
III.2 Propriétés de l'antenne patch simulée.....	46
III.2.1 Ferrite doux utilisé .....	46
III.2.2 Dimensions de l'antenne en champ magnétostatique nul .....	47
III.3 Modèle de Igarashi et Naïto [6,7] .....	47
III.3.1 Introduction.....	47
III.3.2 Grandes lignes du modèle d'Igarashi et Naïto.....	48
III.4 Simulation à partir du logiciel <i>Linecalc</i> .....	49
III.4.1 Antenne en champ magnétostatique appliqué nul .....	49
III.4.2 Etude en fréquence.....	51
III.4.3 Résultats de la simulation .....	51
III.4.4 Discussion .....	53
Troisième partie : dispositif expérimental de dépôt et moyens de caractérisations des couches .....	57
I Dispositif expérimental de dépôt .....	59
I.1 Enceinte à vide et groupes de pompage.....	59
I.2 Porte-substrats et dispositif de chauffage (n°6 sur la figure III.1).....	60
I.3 Cathode magnétron et cible de pulvérisation (n°s 1 et 2 sur la figure III.1) .....	60
I.4 Générateur radiofréquence et adaptateur d'impédance.....	61
I.5 Dispositif d'introduction du gaz et de mesure de pression .....	61

I.6	Préparation et déroulement des dépôts .....	62
I.6.1	Préparation des substrats.....	62
I.6.2	Chauffage des substrats.....	62
I.6.3	Phase de dépôt.....	62
II	Moyens de caractérisation des couches .....	64
II.1	Mesure de l'épaisseur : utilisation du profilomètre .....	64
II.2	Analyse structurale des dépôts : utilisation d'un diffractomètre .....	65
II.3	Morphologie et composition des couches : utilisation d'un microscope électronique à balayage (M.E.B.) et d'un système d'analyse de composition par dispersion en énergie des rayons X (E.D.X.).....	68
II.3.1	Les différents types d'interaction électron-matière [1].....	68
II.3.2	Principe général d'un microscope électronique à balayage.....	68
II.3.3	L'analyse par dispersion des rayons X.....	69
II.4	Mesure des propriétés magnétiques : utilisation d'un hystérésismètre.....	70
Quatrième partie : simulation et conception d'un dispositif de dépôt sous champ magnétique ; étude des couches de Samarium-Cobalt .....		73
I	Principales caractéristiques de la cible de pulvérisation de Samarium-Cobalt.....	75
I.1	Diagramme de diffraction .....	75
I.2	Propriétés magnétiques .....	76
I.3	Analyses de composition .....	77
II	Dépôts préliminaires .....	78
II.1	Mise en œuvre du dispositif expérimental initial.....	78
II.2	Résultats cristallographiques préliminaires .....	78
II.2.1	Influence de la pression d'Argon.....	78
II.2.2	Influence de la température des substrats .....	79
II.2.3	Bilan des dépôts préliminaires .....	81
III	Simulation et réalisation d'un dispositif de dépôt sous induction .....	82
III.1	L'enceinte après modification.....	82
III.2	Utilisation du logiciel de simulation FLUX 2D 7.50.....	83
III.2.1	Paramètres concernant le solénoïde .....	84
III.2.2	Paramètres ne concernant pas le solénoïde .....	84
III.2.3	Résultats de la simulation .....	84
III.3	Conclusions et validation expérimentale .....	88
III.3.1	Topographie des lignes de champ.....	88
III.3.2	Valeur de l'induction .....	89

IV	Propriétés des dépôts réalisés avec l'enceinte de pulvérisation équipée du solénoïde .....	92
IV.1	Importance de la nature du substrat .....	92
IV.1.1	Symétrie de $\text{SmCo}_5$ , $\text{Sm}_2\text{Co}_7$ et $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ .....	93
IV.1.2	Symétrie des différents substrats utilisés .....	95
IV.1.3	Conclusion .....	100
IV.2	Influence de la température des substrats .....	101
IV.2.1	Conditions générales de réalisation des dépôts et épaisseurs des couches .....	101
IV.2.2	Résultats cristallographiques .....	102
IV.2.3	Propriétés magnétiques des dépôts .....	104
IV.2.4	Morphologie des dépôts réalisés .....	109
IV.2.5	Analyses EDX.....	112
IV.3	Influence de la pression d'Argon dans l'enceinte.....	115
IV.3.1	Conditions générales de dépôt .....	115
IV.3.2	Résultats cristallographiques .....	116
IV.3.3	Propriétés magnétiques .....	118
IV.3.4	Analyses EDX.....	119
IV.4	Influence de la vitesse de dépôt .....	120
IV.5	Influence de la distance cible-substrat .....	121
IV.6	Influence d'un substrat en corindon.....	122
IV.7	Influence d'une induction magnétique appliquée pendant le dépôt.....	124
IV.7.1	Substrats Si(100).....	125
IV.7.2	Substrats Si(111).....	126
IV.7.3	Substrat corindon .....	127
IV.7.4	Conclusions et discussion .....	128
IV.8	Influence d'un recuit .....	129
IV.8.1	Recuits lents en four classique .....	129
IV.8.2	Pseudo-recuits sous champ in situ .....	134
V	Conclusion générale sur les dépôts de Samarium-Cobalt.....	135
	Cinquième partie : étude des couches de Néodyme-Fer-Bore.....	139
I	Cible de pulvérisation .....	141
I.1	Diagramme de diffraction de la cible.....	141
I.2	Propriétés magnétiques .....	142
I.3	Analyses de composition .....	142
II	Propriétés des couches réalisées .....	143
II.1	Influence de la température du substrat .....	144



II.1.1	Structure cristallographique des couches.....	144
II.1.2	Propriétés magnétiques .....	145
II.1.3	Composition des couches.....	147
II.2	Influence de la pression de pulvérisation.....	147
II.2.1	Structure des couches.....	147
II.2.2	Propriétés magnétiques des couches.....	148
II.2.3	Composition des couches.....	148
II.3	Influence d'une induction pendant le dépôt.....	149
II.3.1	Structure des couches.....	149
II.3.2	Propriétés magnétiques et composition des couches réalisées sous induction .....	150
II.4	Effet de l'épaisseur des couches sur leur structure .....	150
II.5	Effet d'un recuit .....	151
II.6	Dépôts complémentaires .....	155
II.6.1	Dépôts avec la cible frittée de $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ .....	155
II.6.2	Dépôts avec une cible enrichie en Néodyme .....	159
II.6.3	Conclusions de l'étude complémentaire .....	165
III	Conclusion de l'étude préliminaire des dépôts de Néodyme-Fer-Bore.....	167
	CONCLUSION GENERALE.....	170
	Annexe I : les fondements du magnétisme statique.....	174
I	Rappel historique sur les phénomènes magnétiques [1].....	176
I.1	Le magnétisme de l'Antiquité au XIXe siècle.....	176
I.2	Le magnétisme au XIXe siècle .....	176
I.3	Le magnétisme au XXe siècle.....	177
II	Principales grandeurs utilisées dans le magnétisme .....	178
II.1	Champ (ou excitation) magnétique $\vec{H}$ .....	178
II.2	Induction magnétique $\vec{B}$ .....	178
II.3	Potentiel vecteur $\vec{A}$ .....	179
II.4	Moment magnétique $\vec{m}$ .....	179
II.5	Aimantation d'un matériau $\vec{M}$ .....	180
II.6	Susceptibilité magnétique d'un matériau $\chi$ .....	180
II.7	Perméabilité magnétique relative d'un matériau $\mu_r$ .....	181
III	Origines microscopiques du magnétisme [1, 2, 3].....	182
III.1	Approche ampérienne .....	182
III.1.1	Exposé de la théorie .....	182

III.1.2	Application à la magnétostatique .....	183
III.2	Approche coulombienne .....	183
III.2.1	Présentation .....	183
III.2.2	Conséquence macroscopique de l'approche coulombienne .....	184
IV	Les différents types de matériaux magnétiques .....	186
IV.1	Le vide .....	186
IV.2	Les matériaux diamagnétiques.....	186
IV.2.1	Propriétés macroscopiques [1, 3].....	186
IV.2.2	Approche microscopique .....	187
IV.3	Les matériaux paramagnétiques [1, 2, 5] .....	190
IV.3.1	Généralités .....	190
IV.3.2	Loi de Curie .....	191
IV.3.3	Détermination de la constante de Curie .....	191
IV.4	Les matériaux ferromagnétiques.....	194
IV.4.1	Propriétés macroscopiques.....	194
IV.4.2	Cycle d'hystérésis .....	195
IV.4.3	Le ferromagnétisme microscopique.....	196
IV.5	Les matériaux antiferromagnétiques.....	203
IV.6	Les matériaux ferrimagnétiques.....	205
Annexe II :	la pulvérisation cathodique radiofréquence magnétron.....	207
I	Généralités sur la pulvérisation cathodique .....	209
I.1	La pulvérisation cathodique .....	209
I.2	La pulvérisation cathodique radiofréquence.....	209
I.3	La pulvérisation cathodique radiofréquence magnétron.....	209
II	Interaction ions – matière.....	211
III	Efficacité de pulvérisation .....	213
Annexe III :	effet d'une couche magnétique aimantée perpendiculairement à sa surface sur son environnement proche ; importance du champ démagnétisant.....	216
I	Introduction.....	217
II	Couche d'aimant assimilée à un cylindre .....	218
III	Couche d'aimant assimilée à un parallélépipède rectangle .....	219
IV	Comparaison des deux approches.....	221
IV.1	Couche épaisse de dimensions transverses de l'ordre de grandeur de l'épaisseur : cas d'un champ démagnétisant « faible ».....	221

IV.2	Couche épaisse de dimensions transverses très grandes devant l'épaisseur : cas d'un champ démagnétisant fort.....	222
V	Conclusion .....	225
Annexe IV	: principales fiches JCPDS utilisées .....	226

# INTRODUCTION

La démocratisation des systèmes électroniques (informatique, multimédia,...) a engendré ces dernières années, pour des raisons d'encombrement et de coût, une course à la miniaturisation qui s'est traduite notamment par de très grands progrès dans la taille des transistors. Les systèmes de télécommunications n'échappent pas à ce phénomène. Cela a donné naissance à ce que l'on appelle la technologie MMIC (Circuit Intégré Monolithique Micro-onde). En particulier, en raison de l'essor de la téléphonie mobile, les composants passifs micro-ondes non-réciproques, tels que les circulateurs ou les isolateurs, font l'objet de recherches visant à les intégrer, par exemple dans les radars. Ces composants passifs permettent notamment de différencier et de sélectionner les ondes reçues et émises par les systèmes de télécommunications.

Ces composants fonctionnent actuellement, à l'état massif, grâce à un ferrite (qui fait office de diélectrique) soumis à un champ magnétique statique. Ce sont en effet les propriétés intrinsèques des ferrites « polarisés magnétiquement » qui permettent la séparation des voies d'émission et de réception des systèmes de télécommunications. Le champ magnétique polarisant peut avoir deux origines :

- soit il est créé par le ferrite sur lui même, dans le cas des ferrites durs ;
- soit il est apporté par une source magnétique extérieure, comme un aimant, dans le cas des ferrites doux ; les circulateurs massifs fonctionnent actuellement ainsi.

Il est tout à fait envisageable de reproduire, sous forme intégrée, le comportement hyperfréquence de tels composants micro-ondes. Plusieurs études ont déjà été réalisées sur les ferrites durs. L'équipe Composants et Circuits Micro-électroniques et Micro-optiques (C2M) de l'Institut de Recherche en Communications Optiques et Micro-ondes (IRCOM) poursuit, depuis plusieurs années, des recherches visant à la réalisation sous forme de couches, d'un circulateur intégré. Pour ce faire, l'équipe dispose en effet de plusieurs dispositifs de dépôt, la pulvérisation cathodique, la co-évaporation au canon à électrons et l'ablation laser. Trois thèses ont déjà été soutenues dans le domaine : deux sur les dépôts de ferrites durs et une autre sur la caractérisation du comportement hyperfréquence de ces ferrites. Une thèse est également en cours à l'Université Jean Monnet de Saint-Etienne.

Il n'existe en revanche, à notre connaissance, aucuns travaux d'élaboration et de caractérisation des couches d'aimants permettant la polarisation des couches de ferrites doux pour des applications hyperfréquences intégrées. C'est pourtant la seconde voie possible, qui domine actuellement dans les systèmes massifs : l'intérêt de cette solution est principalement d'obtenir des champs magnétiques importants dans le ferrite doux, par le biais de l'empilement de plusieurs pastilles d'aimants. La même structure peut être imaginée pour des dispositifs intégrés.

Nous présentons ici une étude sur la réalisation et la caractérisation de films magnétiques susceptibles de polariser une couche de ferrite doux. Les propriétés requises pour l'aimant déposé sont une grande anisotropie magnétique et un produit d'énergie volumique élevé : les Samarium-Cobalt et les Néodyme-Fer-Bore sont de ce fait de bons candidats. Le choix de la technique de dépôt utilisée dans cette étude, la pulvérisation cathodique radiofréquence magnétron, est motivée par les avantages inhérents à cette technique, comme la reproductibilité et l'homogénéité des dépôts obtenus. Ses qualités en font l'un des procédés les plus utilisés dans le milieu industriel.

Ce mémoire se divise en cinq grandes parties. Dans la première, nous rappellerons les principales lois du magnétisme hyperfréquence appliquées aux ferrites et leur conséquence, la non-réciprocité. Nous en verrons ensuite quelques applications micro-ondes. Nous présenterons ensuite les deux grandes familles d'aimants susceptibles de « polariser magnétiquement » le ferrite doux, c'est-à-dire pouvant créer un champ magnétique suffisant pour obtenir des effets non-réciproques. Le socle nécessaire à la compréhension de cette partie, c'est-à-dire le magnétisme statique, est abordé dans l'annexe I. Le lecteur pourra s'y référer pour une meilleure compréhension.

Dans la deuxième partie, nous verrons que le circulateur micro-onde n'est pas la seule application potentielle des ferrites sous forme intégrée. Les antennes intégrées à ferrite, déjà étudiées à l'état massif, en sont une autre. En raison du caractère non-réciproque des ferrites, deux ondes à polarisation circulaire, l'une droite, l'autre gauche, sont rayonnées par ces antennes, ce qui présente des avantages importants dans le domaine des télécommunications. Leur comportement, simulé en hyperfréquences, sera comparé à celui des antennes massives.

Dans la troisième partie, sont présentés les moyens dont nous disposons pour réaliser et caractériser les couches magnétiques. L'enceinte de dépôt par pulvérisation cathodique magnétron est ainsi décrite, de même que les moyens de caractériser les propriétés magnétiques, la structure cristallographique, la morphologie et la composition des couches. Une présentation plus théorique de la pulvérisation cathodique magnétron est consultable dans l'annexe II.

La quatrième partie sera consacrée aux résultats expérimentaux obtenus sur des dépôts de Samarium-Cobalt réalisés par pulvérisation cathodique radiofréquence magnétron. Nous verrons que le choix de cet aimant est motivé par le fait qu'il n'est constitué que de deux atomes différents ; en outre, une étude précédente sur des couches de Néodyme-Fer-Bore, réalisées dans l'équipe C2M par évaporation au canon à électrons, a mis en exergue le problème d'oxydation du Néodyme. Après avoir présenté les résultats de dépôts préliminaires et avoir simulé et construit un dispositif de dépôts sous champ, nous montrerons notamment l'influence des paramètres de dépôt sur les propriétés des couches.

Dans la dernière partie, nous présenterons les résultats d'une étude préliminaire sur des dépôts de Néodyme-Fer-Bore réalisés par pulvérisation cathodique radiofréquence magnétron. La littérature fait en effet état de résultats intéressants avec cette technique, ce qui justifie ces essais, et ce en dépit des problèmes d'oxydation. L'influence des paramètres de dépôt sur les propriétés des couches sera étudiée.

Pour finir, nous concluons cette étude en proposant des solutions nouvelles pour améliorer les propriétés des couches réalisées et nous présenterons les perspectives inscrites dans les projets de l'équipe C2M.

## Première partie : étude bibliographique

Dans cette partie, nous présentons, par une approche simple, le comportement particulier des ferrites en hyperfréquences quand ils sont polarisés par un champ magnétique statique : c'est ce qu'on appelle la non-réciprocité. Nous citons également les applications actuelles de ce phénomène dans le domaine des télécommunications, ainsi que les applications potentielles qui en découlent sous forme intégrée. Enfin, nous nous attachons à décrire les deux principales familles d'aimants industriels susceptibles d'être la source de champ pour les applications intégrées présentées.

Nous ne revenons volontairement pas ici sur les bases du magnétisme statique, pré-requis indispensable pour la compréhension du magnétisme hyperfréquence. Il nous a cependant semblé nécessaire d'en rappeler les fondements dans l'annexe I. Les principales grandeurs utilisées et les différentes familles de matériaux magnétiques y sont notamment décrites. Le lecteur pourra donc s'y référer.



# I Propriétés de propagation des ondes électromagnétiques dans les ferrites [1, 2, 3]

Dans ce paragraphe, nous allons décrire brièvement le comportement particulier des ferrites en hyperfréquences : le phénomène de non-réciprocité. Cette propriété est à la base du fonctionnement de certains dispositifs micro-ondes : les circulateurs et les antennes à ferrite à polarisation circulaire.

## I.1 Quelques généralités sur les ferrites

Les ferrites sont des oxydes métalliques complexes de formule générale :  $M-O-(Fe_2O_3)_n$  où  $n$  est un entier et  $M$  un cation divalent généralement métallique (Zn, Ba, Ni, etc.). Leur résistivité électrique  $\rho$  est comprise entre  $10^6$  et  $10^{10} \Omega.m$ , ce qui en fait de bons isolants : les ondes électromagnétiques peuvent donc s'y propager. Leur permittivité diélectrique relative,  $\epsilon_r$ , est comprise entre 10 et 15.

En hyperfréquences, les diélectriques présentent généralement des pertes, que l'on introduit en ajoutant une partie complexe à leur permittivité relative. Cette dernière devient :

$$\epsilon_r = \epsilon_r' - j\epsilon_r'' \quad (I. 1)$$

On introduit la tangente de pertes diélectriques, qui est définie par :  $\tan \delta = \frac{\epsilon_r''}{\epsilon_r'}$  (I. 2)

Sa valeur, pour les ferrites massifs, est excellente, de l'ordre de  $10^{-4}$ , à 10 GHz, ce qui signifie que les ondes les traversant s'atténuent peu.

## I.2 Non-réciprocité dans les ferrites

Les ferrites sont utilisés dans des circuits passifs non-réciproques. Par définition, ceci signifie, d'une part, qu'aucune amplification du signal n'a lieu (et ce, sans modification de fréquence), et d'autre part, que les propriétés du circuit dépendent de son sens d'insertion dans un dispositif micro-onde. Si ce dernier est fixe, c'est le sens de propagation de l'onde, et donc son vecteur d'onde, qui détermineront le comportement de l'ensemble. C'est cette propriété qui est la plus utilisée dans les dispositifs non-réciproques usuels.

## I.2.1 Approche macroscopique de la non-réciprocité

### I.2.1.1 Cas idéal simplifié

Nous présentons ici, comme première approche, une présentation de la non-réciprocité idéalisée et très simplifiée. Nous négligerons volontairement, dans un premier temps, tous les effets dus au champ démagnétisant. Nous verrons, dans un second temps, un développement plus rigoureux.

Soit un ferrite de forme parallélépipédique de dimensions très grandes, d'axe ( $z'z$ ), traversé par une onde électromagnétique de vecteur d'onde  $\vec{k}$ , de champ électrique  $\vec{E}$  et dont le champ magnétique  $\vec{h}$  est polarisé circulairement. Soit  $\vec{H}_0$  un champ magnétique statique de direction perpendiculaire au plan de polarisation de  $\vec{h}$  (figure I.1).

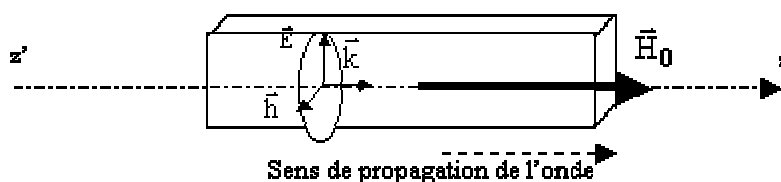


Figure I. 1 : Cas idéal d'un ferrite non réciproque

On suppose que  $\vec{H}_0$  est suffisant pour saturer le matériau qui acquiert donc une aimantation à saturation  $M_s$ . On constate que, pour des intensités de champ statique bien précises, l'onde ne peut se propager que *dans un seul sens* dans le matériau ; la propagation dans le sens inverse est impossible. C'est la base de certains dispositifs micro-ondes non-réciproques.

### I.2.1.2 Réponse magnétique d'un matériau non-réciproque

Par analogie avec l'équation (I.1), on peut introduire la perméabilité magnétique complexe du matériau :  $\mu = \mu' - j\mu''$  (I. 3)

où  $\mu''$  représente les pertes magnétiques, tandis que  $\mu'$  est la perméabilité magnétique au sens classique. En cas de propagation d'une onde électromagnétique,  $\mu'$  affectera la phase de l'onde tandis que  $\mu''$  influera sur son module.

Dans les conditions du paragraphe I.2.1.1., les valeurs de  $\mu'$  et  $\mu''$  dépendent très fortement du sens de propagation de l'onde : c'est le phénomène de non-réciprocité. Lorsque les ondes se propagent vers les z croissants (sens +) et décroissants (sens -), nous avons :

$$\mu_+ = \mu'_+ - j\mu''_+ \quad (\text{I. 4})$$

$$\text{et } \mu_- = \mu'_- - j\mu''_- \quad (\text{I. 5})$$

La figure I.2 représente les variations des différents paramètres  $\mu'_+$ ,  $\mu'_-$ ,  $\mu''_+$  et  $\mu''_-$  en fonction de la norme du champ appliqué  $\vec{H}_0$  (en toute rigueur, il s'agit du champ interne au matériau, notion que nous verrons dans le paragraphe suivant).

De ces courbes, il ressort que :

- $\mu''_+$  présente un maximum en  $H_0 = H_R$  appelé gyrorésonance ; la largeur du pic à mi-hauteur est appelée largeur de raie de gyrorésonance  $\Delta H$ .  $\Delta H$  dépend de la nature du ferrite,
- $\mu'_+$  passe par un minimum et un maximum de part et d'autre de la gyrorésonance,
- $\mu''_-$  est quasi-nulle, quelle que soit la valeur du champ,
- $\mu'_-$  varie peu en fonction du champ.

La fréquence de gyrorésonance,  $f_r$ , est donnée par la formule de Kittel :

$$f_r = \frac{\gamma\mu_0}{2\pi} \left[ (H_R - (N_z - N_x)M_s)(H_R - (N_z - N_y)M_s) \right]^{\frac{1}{2}} \quad (\text{I. 6})$$

où  $N_x$ ,  $N_y$  et  $N_z$  sont les facteurs de champ démagnétisant (liés à la forme du matériau) dans les trois directions de l'espace (annexe I).

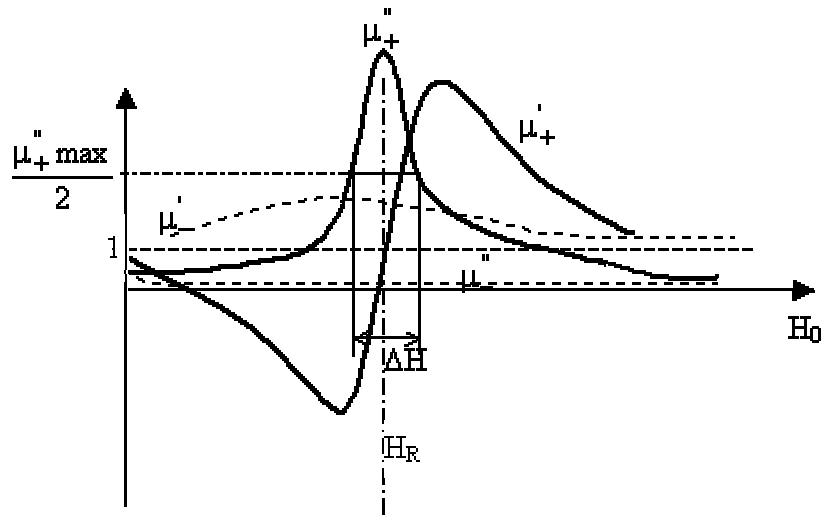


Figure I. 2 : Variations des différents paramètres  $\mu_+$ ,  $\mu_-$ ,  $\mu_+''$  et  $\mu_-''$ , en fonction du champ appliqué au ferrite

La figure I.2 permet également de comprendre l'utilisation des ferrites en hyperfréquences. D'une part, certains sont utilisés à la gyrorésonance : c'est le cas des isolateurs et des filtres. D'autre part, des dispositifs tels que les circulateurs micro-ondes sont utilisés hors gyrorésonance : le choix du champ statique est alors fondamental pour se retrouver dans les conditions évoquées précédemment ( $\mu_+' et  $\mu_-'$  suffisamment différents et  $\mu_+'' \cong \mu_-'' \cong 0$ ).$

## I.2.2 Approche théorique de la non-réciprocité

Nous allons présenter ici, de manière succincte, les origines des phénomènes de gyrorésonance magnétique et de non-réciprocité. Une approche plus complète existe dans la littérature [4].

### I.2.2.1 Précession du vecteur aimantation

Soit un ferrite soumis à un champ magnétique statique  $\vec{H}_0$  dirigé suivant (Oz) ; on suppose que ce champ est assez intense pour saturer le matériau dont l'aimantation à saturation  $\vec{M}_s$  est dirigée selon (Oz). On superpose à  $\vec{H}_0$  un champ magnétique  $\vec{h}$  alternatif (champ magnétique d'une onde électromagnétique polarisée circulairement dans le plan (Oxy)) de pulsation  $\omega$ .

Afin de simplifier le problème, nous faisons trois hypothèses :

- la forme du ferrite est un ellipsoïde de révolution (figure I.3) : le champ démagnétisant est donc constant, en l'absence de champ autre que  $\vec{H}_0$  ; l'aimantation dans le corps est également homogène,
- on suppose que la longueur d'onde micro-onde est très grande devant les axes de cet ellipsoïde : le champ micro-onde est donc uniforme à tout instant dans le ferrite,
- les effets des champs d'anisotropie sont négligeables (voir annexe I).

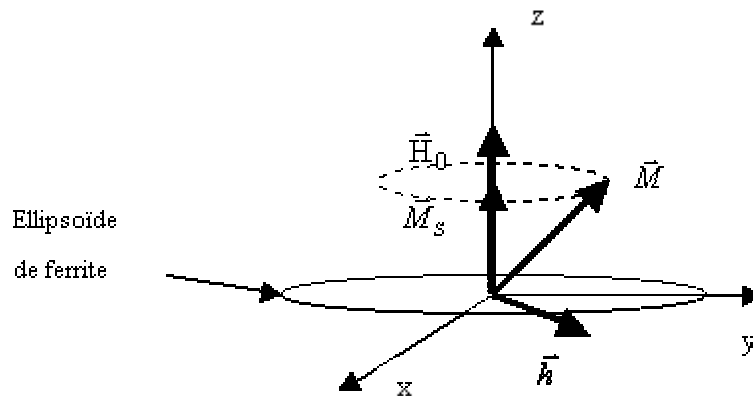


Figure I. 3 : représentation schématique de l'orientation des vecteurs  $\vec{H}_0$ ,  $\vec{M}$ ,  $\vec{M}_s$  et  $\vec{h}$

Avant l'application du champ micro-onde, le champ qui règne à l'intérieur du ferrite est :

$$\vec{H}_i = \vec{H}_0 - N_z \vec{M}_s \quad (\text{I. 7})$$

où  $N_z$  est le facteur de champ démagnétisant selon (Oz).

Après l'application du champ micro-onde, l'aimantation du ferrite devient :

$$\vec{M} = \chi(\vec{H}_i + \vec{h}_i) = \chi \vec{H} \quad (\text{I. 8})$$

où  $\vec{H}$  est le champ total interne,  $\chi$  est la susceptibilité magnétique du ferrite et  $\vec{h}_i$  le champ intérieur au matériau, dû à l'effet du champ  $\vec{h}$  de l'onde ; nous travaillons dans l'approximation « faible champ », et donc l'intensité de  $\vec{h}_i$  est donc faible devant celle de  $\vec{H}_i$ .

En appliquant le théorème du moment cinétique aux électrons, on obtient :

$$\frac{1}{\gamma} \frac{d\vec{M}}{dt} = \vec{M} \wedge (\vec{H}_i + \vec{h}_i) + \vec{A} \quad (\text{I. 9})$$

où  $\gamma$  désigne le rapport gyromagnétique (rapport entre le moment cinétique et le moment magnétique) ;  $\vec{A}$  est un terme d'amortissement. Pour un même champ statique appliqué, l'extrémité du vecteur  $\vec{M}$  décrit un cercle en l'absence de champ micro-onde, une spirale à la fréquence de gyrorésonance et un mouvement de précession à une fréquence éloignée de la gyrorésonance.

### I.2.2.2 Tenseur de Polder

La formule (I.9) montre le lien entre le champ micro-onde et l'aimantation du matériau. Dans les conditions décrites au paragraphe I.2.2.1. et sur la figure I.3, les coordonnées de l'aimantation du ferrite et des différents champs magnétiques sont :

$$\vec{M} \begin{bmatrix} M_x \\ M_y \\ M_S \end{bmatrix}, \vec{h}_i \begin{bmatrix} h_{ix} \\ h_{iy} \\ 0 \end{bmatrix} \text{ et } \vec{H}_i \begin{bmatrix} 0 \\ 0 \\ H_i \end{bmatrix} \text{ où } M_S \text{ est l'aimantation à saturation.}$$

$$\text{La relation (I.8) s'écrit alors : } \begin{bmatrix} M_x \\ M_y \\ M_S \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \chi_{xx} & \chi_{xy} & \chi_{xz} \\ \chi_{yx} & \chi_{yy} & \chi_{yz} \\ \chi_{zx} & \chi_{zy} & \chi_{zz} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} h_{ix} \\ h_{iy} \\ H_i \end{bmatrix} \quad (\text{I. 10})$$

La matrice de susceptibilité  $[\chi]$  de l'équation (I.10) est appelée tenseur de Polder et peut être diagonalisée en raison de la forme ellipsoïdale du ferrite ( $\chi_{xy} = -\chi_{yx}$ ). Les valeurs  $\chi_{zx}$  et  $\chi_{zy}$  sont elles obligatoirement nulles. La valeur de  $M_z = M_S$  se réduit donc à  $M_S = \chi_{zz} H_i$ .

Par souci de simplification, on utilise de préférence le tenseur de perméabilité magnétique

$$\text{relative lié à la susceptibilité : } [\mu_r] = \frac{1}{\mu_0} ([1] + [\chi]) \quad (\text{I. 11})$$

où  $[1]$  est la matrice identité. A partir des remarques précédentes, on montre que  $[\mu_r]$  s'écrit :

$$[\mu_r] = \begin{pmatrix} \mu_r & -j\kappa & 0 \\ j\kappa & \mu_r & 0 \\ 0 & 0 & \mu_{rz} \end{pmatrix} \quad (\text{I. 12})$$

Nous verrons dans la suite les expressions des différents éléments de la matrice.

### I.2.2.3 Modèles de Landau-Lifshitz et de Polder

Plusieurs modèles tensoriels ont été proposés pour résoudre l'équation (I.9) et exprimer le terme d'amortissement. Nous nous limiterons ici aux modèles de Landau-Lifshitz et de Polder, qui décrivent le comportement des ferrites saturés, c'est-à-dire monodomaines : ce sont donc des cas idéaux. Le ferrite étant à saturation et les vecteurs  $\vec{M}$  et  $\vec{H}$  étant dirigés selon (Oz), la valeur de  $\mu_{rz}$  est alors maximale :  $\mu_{rz} \cong 1$ . Des ouvrages spécialisés répertorient de nombreux autres modèles saturés ou non [1, 5].

Le modèle de Landau-Lifshitz tient compte des pertes magnétiques. La résolution de l'équation (I.9) aboutit à :

$$\mu_r = 1 + \frac{(\omega_0 + j\omega\alpha)\omega_m}{(\omega_0 + j\omega\alpha)^2 - \omega^2} \quad (\text{I. 13})$$

$$\text{et } \kappa = \frac{-\omega\omega_m}{(\omega_0 + j\omega\alpha)^2 - \omega^2} \quad (\text{I. 14})$$

où :

- $\alpha$  est le coefficient d'amortissement, contenu dans le vecteur  $\vec{A}$  de l'équation (I.9) et lié à la relaxation des électrons,
- $\omega$  la pulsation de l'onde hyperfréquence,
- $\omega_0 = \gamma H_i$ ,
- et  $\omega_m = \gamma M_s$ .

Dans le modèle de Polder, le coefficient d'amortissement  $\alpha$  est nul.  $\mu$  et  $\kappa$  sont donc purement réels :

$$\mu_r = 1 + \frac{\omega_0\omega_m}{\omega_0^2 - \omega^2} = \mu_r' \quad (\text{I. 15})$$

$$\kappa = \frac{-\omega\omega_m}{\omega_0^2 - \omega^2} \kappa' \quad (\text{I. 16})$$

et dépendent de la fréquence de l'onde hyperfréquence et du champ appliqué au ferrite.

La résolution de l'équation (I.9), dans le cadre de ces deux modèles, donne deux solutions, c'est-à-dire deux valeurs de perméabilités magnétiques relatives selon le sens de propagation (ou de polarisation) de l'onde. Ces solutions, notées  $\mu_{r+}$  et  $\mu_{r-}$ , ont pour expression :

$$\begin{cases} \mu_{r+} = \mu_r + \kappa \\ \mu_{r-} = \mu_r - \kappa \end{cases} \quad (\text{I. 17})$$

Nous retrouvons ainsi le propre de la non-réciprocité, qui est caractérisée par deux perméabilités magnétiques dépendant du sens de propagation de l'onde dans le matériau, ou de sa polarisation droite ou gauche. Dans la deuxième partie, nous verrons l'intérêt du système (I.17) appliquée aux antennes intégrés.

Des exemples de dispositifs non-réciproques sont présentés ci-après.



## II Applications micro-ondes des dispositifs non-réciproques à ferrite [6]

Nous présentons dans ce paragraphe deux des principales applications des ferrites utilisés en hyperfréquences : les circulateurs micro-ondes et les antennes à polarisation circulaire. Ces deux dispositifs ont la particularité d'être de bons candidats à l'intégration en raison de la structure « empilée » de leurs différents constituants.

### II.1 Les circulateurs

#### II.1.1 Principe de fonctionnement

Un circulateur en Y est constitué de trois voies orientées à  $120^\circ$  les unes des autres autour d'un corps central où se trouvent les éléments qui lui confèrent sa non-réciprocité. Ces éléments sont principalement le ferrite (sous la forme d'un disque plat ou d'un prisme triangulaire par exemple) et des plaquettes résistives (figure I.4).

Un champ magnétique continu  $\vec{H}_0$  est appliqué perpendiculairement au ferrite.

La principale propriété d'un tel circulateur est qu'une onde entrant par la voie (1) ressort par la voie (2), qu'une onde entrant par la voie (2) ressort par la voie (3) et une autre entrant en (3) ressort en (1), toute autre circulation étant impossible.

En raison des propriétés de non-réciprocité, les coefficients de la matrice scattering (S) qui lie les ondes entrantes  $a_1$ ,  $a_2$  et  $a_3$  et les ondes sortantes  $b_1$ ,  $b_2$  et  $b_3$  par la relation matricielle  $[b_i]=(S)[a_i]$  sont :

$$(S) = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{I. 18})$$

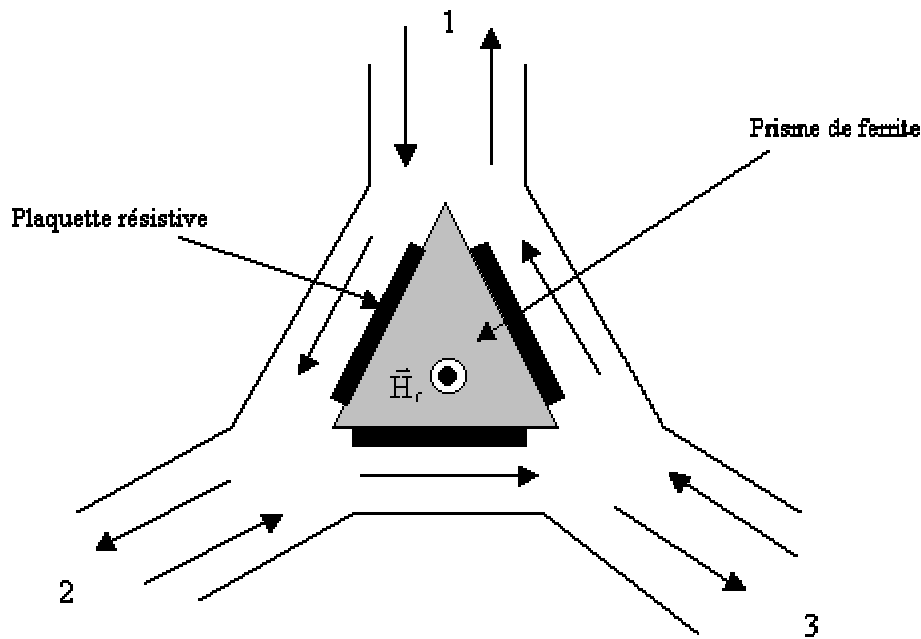


Figure I. 4 : Schéma d'un circulateur

### II.1.2 Utilisation des circulateurs

Grâce à leurs propriétés, ils peuvent être utilisés dans tous les dispositifs où une onde réfléchie intervient. Ainsi, ils peuvent servir pour découpler un générateur d'une charge, c'est-à-dire pour diriger une onde réfléchie vers une charge adaptée. Ils peuvent aussi séparer une onde incidente d'une onde réfléchie : c'est le cas dans les analyseurs de réseau vectoriels où ils permettent l'analyse de l'onde réfléchie.

### II.1.3 Intégration des circulateurs

Des études actuelles, et notamment à l'Institut de Recherche en Communications Optiques et Micro-ondes (IRCOM), ont pour but de reproduire le fonctionnement des circulateurs macroscopiques à une échelle intégrée. La voie à l'étude est celle d'un champ magnétique créé par le ferrite lui-même : on a alors un ferrite dur « autopolarisant ».

Une deuxième approche, qui motive notre étude, est possible : dans le cas d'un ferrite doux, il est nécessaire d'adjoindre une couche magnétique orientée permettant la non réciprocity. La figure I.5 montre le montage envisagé dans le cas d'un ferrite doux. Une deuxième couche d'aimant peut éventuellement être déposée sur la partie supérieure du circulateur afin de renforcer le champ statique

appliqué dans le ferrite doux. Les problèmes de champ démagnétisant (notion présentée dans l'annexe I) ne seront, dans ce cas, pas à négliger (annexe III).

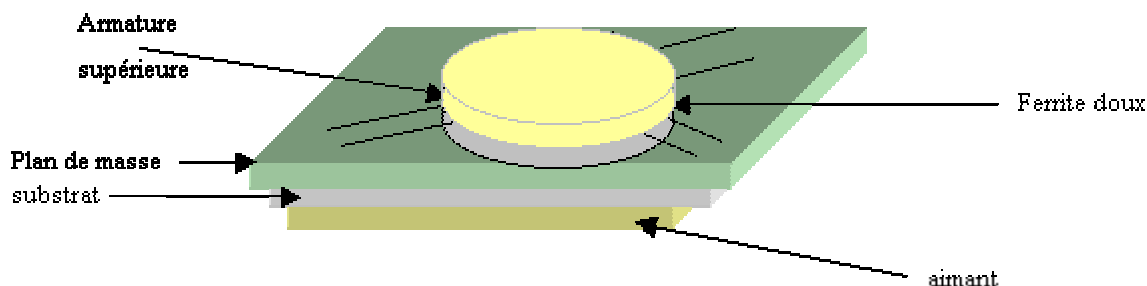


Figure I. 5 : Schéma simplifié d'un circulateur intégré avec ferrite doux

## II.2 Les antennes à ferrite

### II.2.1 Principe et intérêts [7]

Comme nous l'avons vu au paragraphe I, une conséquence de la non-réciprocité dans les ferrites aimantés à saturation est la propagation de deux ondes à polarisation circulaire, l'une droite et l'autre gauche. Ainsi ont été développées des antennes à ferrite, rayonnant deux ondes à polarisation circulaire de sens contraires, ce qui permet d'envisager deux communications simultanées à partir de la même antenne. Le principal intérêt des ferrites est ici technique : en rayonnant « naturellement » des ondes à polarisation circulaire, ils évitent les problèmes de conception rencontrés par des méthodes différentes. En outre, et uniquement dans le cas d'antennes massives, le système I.17 montre qu'il existe deux valeurs de perméabilités magnétiques pour un champ statique donné. Il s'ensuit qu'il existe deux fréquences de fonctionnement pour ces antennes. Si le champ appliqué est variable, on peut obtenir des antennes accordables en fréquence en insérant le ferrite dans un électro-aimant à induction variable. Les applications se situent dans les systèmes embarqués dans les avions, qui nécessitent d'excellentes communications.

### II.2.2 Intégration des antennes à polarisation circulaire [8]

La structure des antennes à ferrite intégrées est globalement identique à celle d'un circulateur intégré où l'armature supérieure est un patch. La position de l'aimant pose cependant un problème. En effet, l'alimentation de l'antenne par un câble coaxial nécessite, sur le montage de la figure I.6, de percer l'aimant. Ce problème, déjà étudié à l'état massif par C. Melon [7], nécessite donc une étude complète.

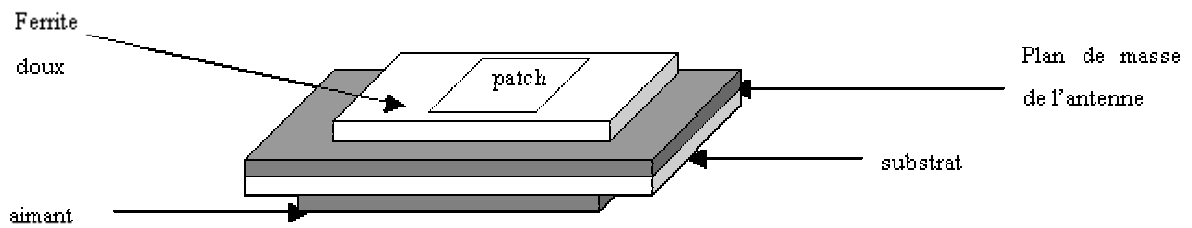


Figure I. 6 : Schéma de principe d'une antenne intégrée à ferrite

Pour concevoir ce type de composants, il faut un champ magnétique statique perpendiculaire à la direction de propagation de l'onde. Ce champ peut être créé par un aimant massif mais son encombrement empêche l'intégration de l'ensemble aimant/ferrite. Il faut donc que l'aimant se trouve sous forme de couche, laquelle sera adjointe à celle de ferrite, et que les propriétés magnétiques de la couche d'aimant soient les plus proches possibles de celles de l'aimant massif. Pour ce faire, nous allons présenter maintenant une étude bibliographique des dépôts d'aimant par pulvérisation cathodique magnétron. Nous allons commencer par une présentation des principaux aimants sous forme massive.

## III Les principaux aimants permanents

Le champ magnétique que vont fournir les couches d'aimant, afin de polariser les couches de ferrite (figures I.5 et I.6), dépend de l'aimant déposé et de ses propriétés macroscopiques. Les deux familles d'aimants les plus intéressantes du point de vue de l'énergie magnétique sont les Néodyme-Fer-Bore et les Samarium-Cobalt. Nous présentons brièvement dans la suite leurs principales caractéristiques.

### III.1 Les aimants de type Samarium-Cobalt

#### III.1.1 Présentation

Les aimants de type Samarium-Cobalt sont connus dans le milieu industriel principalement sous deux formes,  $\text{SmCo}_5$  et  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ , qui présentent à l'état massif des propriétés très intéressantes. Tout d'abord, leur comportement magnétique est remarquable :  $\text{SmCo}_5$  possède un champ coercitif très élevé de l'ordre de 2000 kA/m, ce qui en fait un aimant résistant exceptionnellement bien à la désaimantation. Pour  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ , ce champ est de 1000 kA/m, ce qui est excellent également. Les aimantations rémanentes  $\mu_0 M_R$  sont respectivement 0,9 T et 1,15 T ; le produit d'énergie volumique, qui correspond à la surface du cycle en induction, est donc élevée : le produit B.H peut atteindre 40 à 50 kJ/m<sup>3</sup>.

D'autre part, ces aimants ont la propriété de fonctionner à des températures élevées (250°C pour  $\text{SmCo}_5$  et 350°C pour  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ ), sans que leurs propriétés magnétiques soient fortement influencées ; leur température de Curie vaut respectivement 722°C et 917°C. Ils sont donc très appréciés dans les moteurs où des échauffements importants existent.

#### III.1.2 Diagramme de phase du système Sm-Co [9]

Le premier diagramme de phase du système Samarium-Cobalt a été établi en 1968 [10]. Il laisse apparaître de nombreuses incertitudes au-delà d'une composition atomique de Cobalt de 80%, notamment en raison de l'apparition de solutions solides au-dessus de 800°C. Il a été modifié en 1996 par Laurent Cataldo [11], qui n'a pu lever que partiellement les nombreuses incertitudes. Cependant, pour une compréhension des mécanismes dans la gamme 20-900 °C, un diagramme de phase simplifié peut suffire (figure I.7).

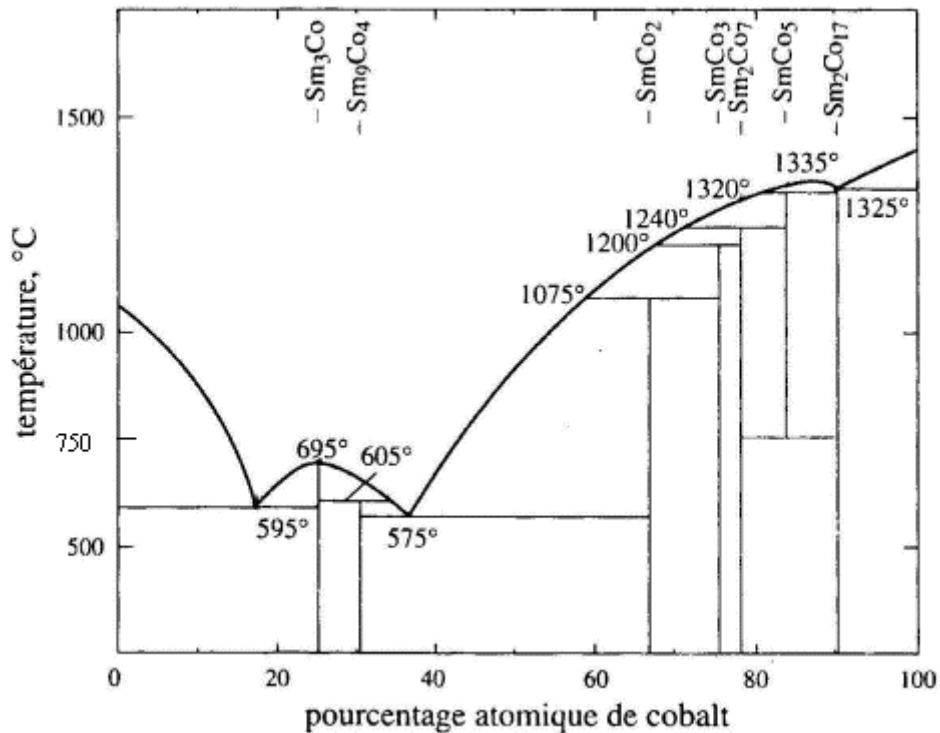


Figure I. 7 : Diagramme de phase simplifié des composés Sm-Co [12]

De ce diagramme, il ressort, dans la région où le Cobalt est en excès, que  $\text{SmCo}_5$  est métastable au dessous de 805 °C environ et se décompose spontanément en  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$  et  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  dans la plage 750-805 °C.  $\text{SmCo}_5$  n'existe donc à température ambiante que sous une forme métastable, initiée par une trempe par exemple.

### III.1.3 Structure cristallographique des alliages $\text{SmCo}_5$ , $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ et $\text{Sm}_2\text{Co}_7$

Comme on l'a vu précédemment, les aimants industriels sont principalement constitués des phases  $\text{SmCo}_5$  et  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  seules ou mélangées entre elles. Les cinq phases dont la température de Curie est supérieure à la température ambiante sont  $\text{SmCo}_5$ ,  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ ,  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$ ,  $\text{SmCo}_3$  et  $\text{Sm}_5\text{Co}_{19}$  ; ce sont donc les seules phases exploitables pour l'obtention d'un aimant. Dans la suite, nous verrons en détails les structures  $\text{SmCo}_5$  et  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  et plus succinctement les trois autres.

#### III.1.3.1 Structure de $\text{SmCo}_5$

La maille de  $\text{SmCo}_5$  appartient au système hexagonal et au groupe d'espace  $P6/mmm$  (figure I.8). Les dimensions de la cellule élémentaire sont  $a = 4,9970 \text{ \AA}$  et  $c = 3,9780 \text{ \AA}$ . Il y a un motif élémentaire par maille et la masse molaire de l'alliage vaut  $445,04 \text{ g.mol}^{-1}$ . Le tableau I.1 donne les différentes positions de Wyckoff des atomes dans la maille.

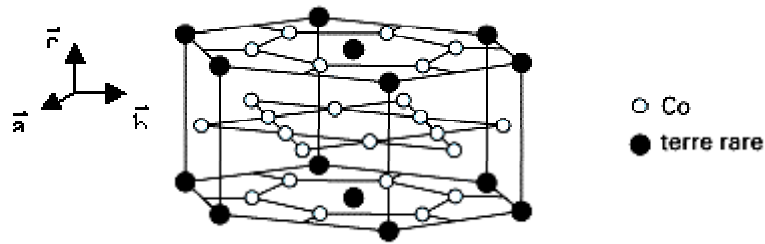


Figure I. 8 : Structure de  $\text{SmCo}_5$

Atomes	Sites
Sm	$1a = (0,0,0)$
$\text{Co}_I$	$2c = (1/3, 2/3, 0) ; (2/3, 1/3, 0)$
$\text{Co}_{II}$	$3g = (1/2, 0, 1/2) ; (0, 1/2, 1/2) ; (1/2, 1/2, 1/2)$

Tableau I. 1 : Positions de Wickoff des atomes Sm et Co dans la maille  $\text{SmCo}_5$

Le rapport  $c/a$  (grand axe de la maille hexagonale sur la dimension de sa base) a la particularité assez rare d'être inférieur à 1.

### III.1.3.2 Structure de $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$

La structure de l'alliage  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  (figure I.9) s'obtient par substitution d'un atome de Samarium par deux atomes de Cobalt. Il existe alors deux formes cristallographiques, l'une rhomboédrique, l'autre hexagonale. La première, qui appartient au groupe d'espace  $R\bar{3}m$  est stable à basse température, la seconde (groupe  $P6_3/mmc$ ) l'est à haute température.

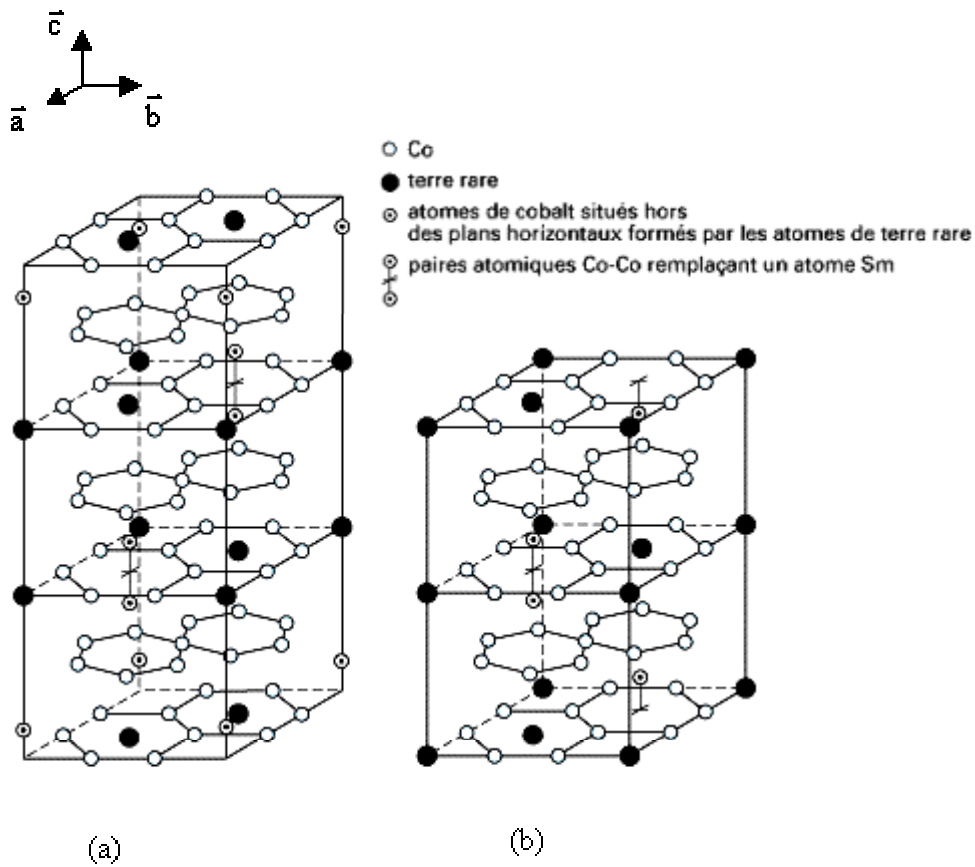


Figure I. 9 : Structure de l'alliage  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  : (a) rhomboédrique et (b) hexagonale [11]

### III.1.3.3 Structures de $\text{Sm}_2\text{Co}_7$ , $\text{SmCo}_3$ et $\text{Sm}_5\text{Co}_{19}$

Les mailles  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$ ,  $\text{SmCo}_3$  et  $\text{Sm}_5\text{Co}_{19}$  se déduisent de  $\text{SmCo}_5$  par substitution d'atomes de Cobalt par des atomes de Samarium (figure I.10). Ces mailles sont en effet un mélange des motifs élémentaires de  $\text{SmCo}_5$  et de  $\text{Sm}_2\text{Co}_4$ , tous deux constitués d'une alternance de plans notés I et W.  $\text{Sm}_2\text{Co}_4$  est obtenue, à partir de  $\text{SmCo}_5$ , par substitution d'un



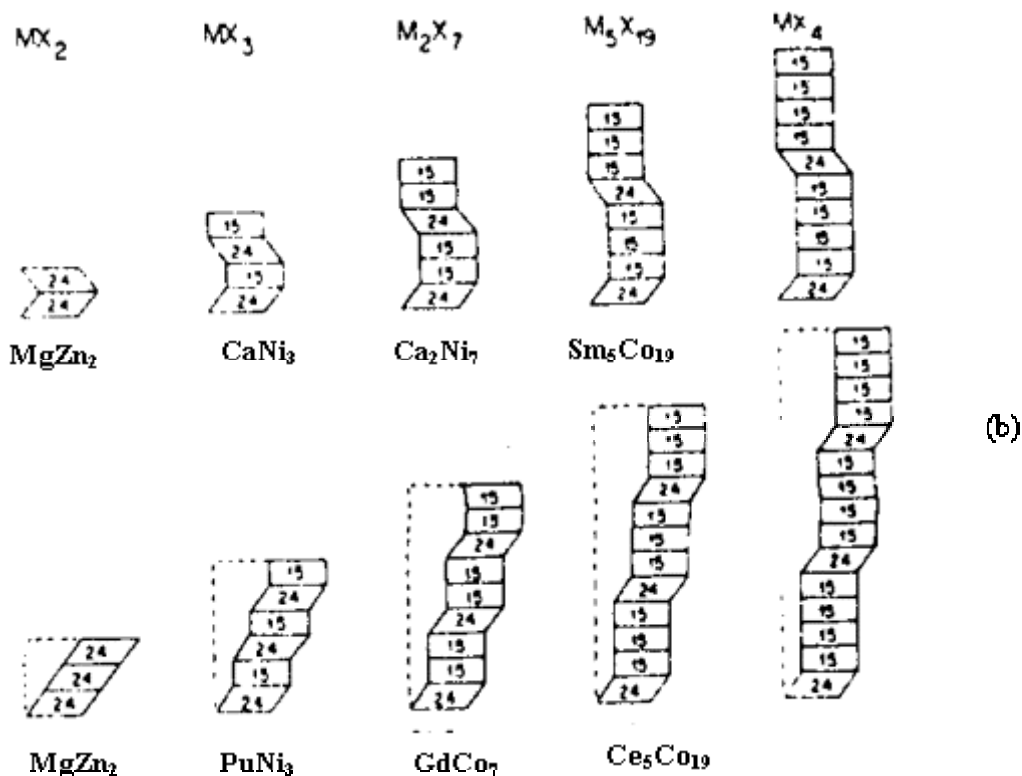
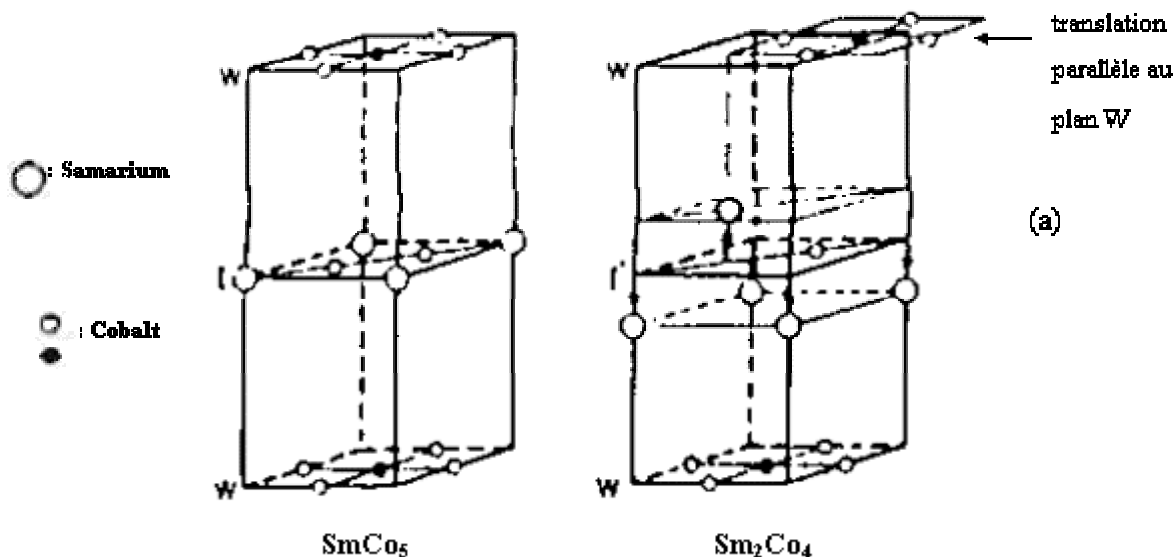


Figure I. 10 (de mauvaise qualité car issue d'une micro-fiche) : (a) Passage d'un motif SmCo<sub>5</sub> à un motif Sm<sub>2</sub>Co<sub>4</sub> ; (b) structure théorique de divers composés [11]

atome de Cobalt des plans notés I par un atome de Samarium, combinée à un déplacement d'un plan W de  $\frac{1}{4}$  de maille par rapport au plan W inférieur de même type (figure I.10 (a)). En combinant ces deux structures, on obtient une dizaine de composés théoriques (figure I.10 (b)), dont

certains ont pu être synthétisés. Il est intéressant de noter qu'à partir de deux motifs (notés 15 et 24 sur la figure) et de quelques translations, on peut engendrer la structure de très nombreux composés. Ainsi,  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$  existe sous deux formes, l'une hexagonale ( $a = 5,043 \text{ \AA}$  ;  $c = 24,311 \text{ \AA}$ ) existant à haute température, l'autre rhomboédrique ( $a = 5,060 \text{ \AA}$  ;  $c = 36,50 \text{ \AA}$ ).  $\text{SmCo}_3$  est rhomboédrique ( $a = 5,048 \text{ \AA}$  ;  $c = 24,560 \text{ \AA}$ ). Quant à  $\text{Sm}_5\text{Co}_{19}$ , une phase rhomboédrique aurait été observée [11]. Pour cette dernière, son existence hypothétique explique son absence du diagramme de phase.

## III.2 Les aimants de type Néodyme-Fer-Bore

### III.2.1 Généralités

Les aimants de type Néodyme-Fer-Bore sont développés à l'état massif depuis une vingtaine d'années. A l'échelle industrielle, ils sont essentiellement constitués de la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Ils sont moins coûteux que les Samarium-Cobalt et présentent des propriétés magnétiques supérieures : leur produit d'énergie volumique  $B.H$  atteint  $400 \text{ kJ/m}^3$  à température ambiante. Leur aimantation à saturation peut atteindre 1,6 Tesla et des champs coercitifs de 1200 kA/m peuvent être atteints. Malheureusement, ils sont peu utilisables à des températures supérieures à  $100^\circ\text{C}$  (température de Curie voisine de  $310^\circ\text{C}$ ) et sont très sensibles à l'oxydation de l'air : il est donc recommandé de les métalliser.

### III.2.2 Diagrammes de phase

Avec ses trois atomes constitutifs, l'alliage  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  a un comportement qui ne peut être décrit que par des diagrammes ternaires ou pseudo-binaires. La figure I.11 (a) (où  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  est notée  $\phi$ ) représente une section isotherme du diagramme ternaire Nd-Fe-B à  $1000^\circ\text{C}$  et la figure I.11 (b) (où  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  est notée  $T_1$  et  $\text{NdFe}_4\text{B}_4$   $T_2$ ) le diagramme de phase pseudo-binaire  $(\text{Fe}_{14}\text{B})$ -Nd [13]. Contrairement à la phase  $\text{SmCo}_5$  (figure I.7), la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , en coexistence avec la phase  $\alpha$  du néodyme, est stable aux températures inférieures à  $700^\circ\text{C}$ .

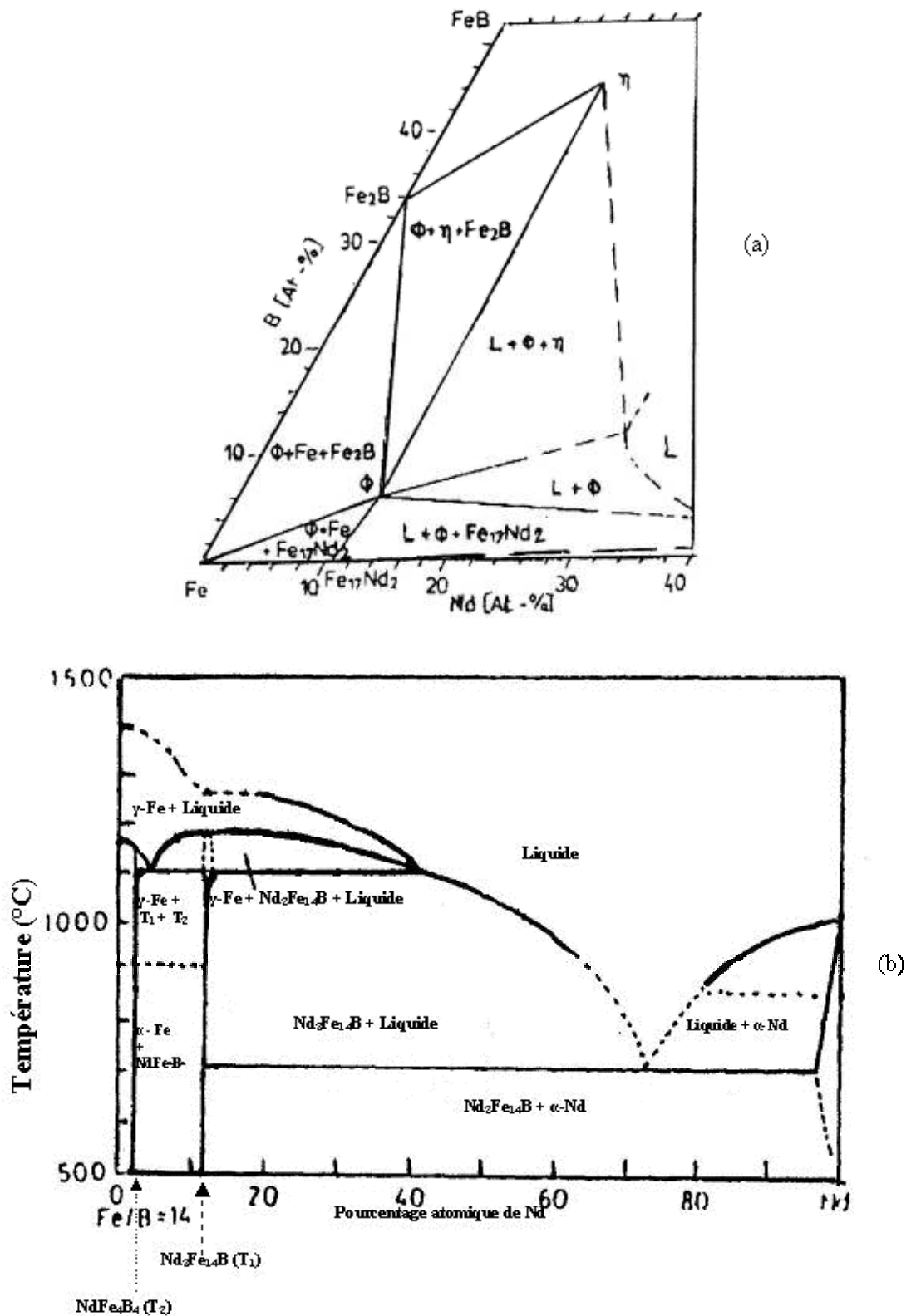


Figure I. 11 (de mauvaise qualité car issue d'une micro-fiche) (a) : Section isotherme du diagramme ternaire du système Nd-Fe-B à 1000°C ; (b) : diagramme de phase pseudo-binaire du système (Fe<sub>14</sub>B)-Nd [13]

### III.2.3 Structure de la phase Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B [14]

La phase magnétique Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B appartient au groupe d'espace P4<sub>2</sub>/mmm et appartient au système hexagonal avec  $a = 8,792 \text{ \AA}$  et  $c = 12,190 \text{ \AA}$ . Elle peut être décrite par une alternance de plans : ceux contenant les trois types d'atomes, situés en  $z = 0, 1/2$  et  $1$ , et ceux ne contenant que du fer, disposés entre ces plans. Les positions de Wickoff pour chaque type d'atomes sont rassemblées dans le tableau I.2. Le motif élémentaire est représenté sur la figure I.12. Le rapport  $c/a$  avoisine ici 1,4.

Atomes	Sites
B	4f
Fe <sub>I</sub>	4c
Fe <sub>II</sub>	16k
Fe <sub>III</sub>	16k
Fe <sub>IV</sub>	8j
Fe <sub>V</sub>	8j
Fe <sub>VI</sub>	4e
Nd <sub>I</sub>	4f
Nd <sub>II</sub>	4g

Tableau I. 2 : Positions de Wickoff des différents atomes dans la maille Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B [14]

Dans le paragraphe suivant, nous présentons une étude bibliographique de ces deux familles d'aimants déposés en couches par pulvérisation cathodique magnétron. Nous allons voir tout d'abord le cas des couches de Samarium-Cobalt puis de Néodyme-Fer-Bore. L'influence sur les propriétés de ces couches des principaux paramètres de dépôt sera notamment détaillée.

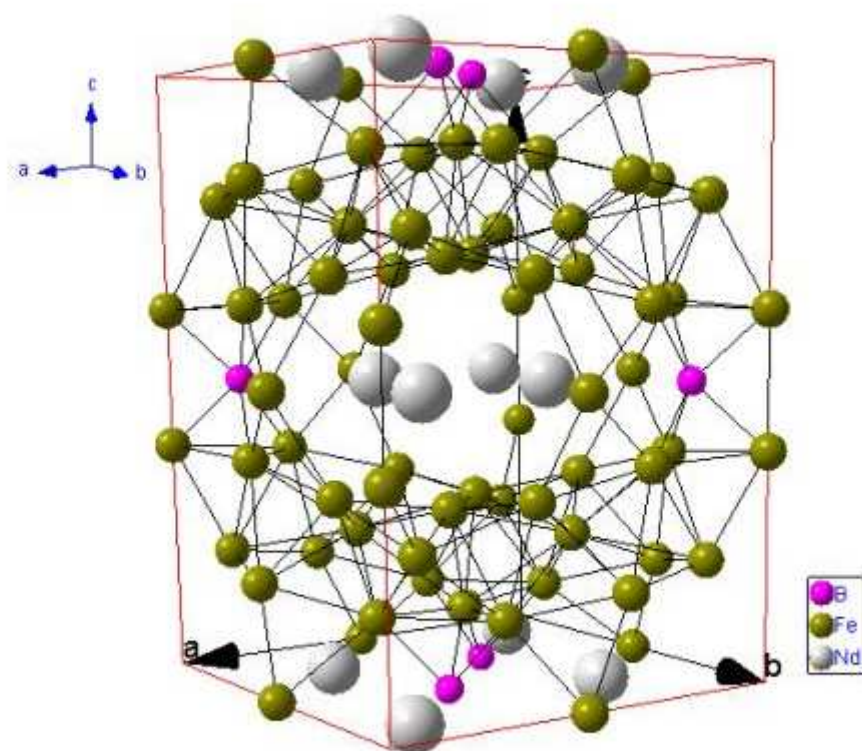


Figure I. 12 : Motif élémentaire de Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B

## IV Etude bibliographique : pulvérisation cathodique magnétron de cibles d'aimants

Le choix du matériau à utiliser sous forme de couches minces doit tenir compte de la réorganisation atomique qui se produit lors de la pulvérisation cathodique. Les propriétés magnétiques attendues sont en effet directement liées à la structure cristallographique des couches. Dans le paragraphe I, nous avons vu que pour avoir les conditions de non-réciprocité, il fallait appliquer aux ferrites un champ perpendiculaire à la surface de la couche de ferrite, et par conséquent que l'axe  $\vec{c}$  des mailles soit perpendiculaire au plan des couches magnétiques réalisées.

### IV.1 Choix de la technique de dépôt

La pulvérisation cathodique magnétron (voir annexe II) présente de très nombreux avantages décrits dans la littérature [15, 16] parmi lesquels on peut retenir :

- la reproductibilité des dépôts, ce qui explique le très grand succès de cette technique dans le milieu industriel,
- l'obtention de couches très uniformes par leur aspect et leur adhérence, car cette technique évite les problèmes tels que les gouttelettes et les projections,
- des rapports atomiques dans les couches voisins de ceux de la cible.

Pour ces raisons, l'étude bibliographique qui suit se concentre sur les dépôts d'aimants obtenus grâce à cette technique. Nous verrons d'abord les résultats obtenus pour des couches de Samarium-Cobalt puis ceux obtenus pour des couches de Néodyme-Fer-Bore.

### IV.2 Aimants à base de Samarium-Cobalt

#### IV.2.1 Orientation cristallographique des couches

Des couches de Samarium-Cobalt dont l'axe facile est orienté perpendiculairement au plan n'ont à ce jour pas pu être réalisées : aucun article ne fait mention d'un tel résultat. Ceci a été constaté par Cadieu [17] et confirmé par plusieurs autres articles [18, 19]. L'explication avancée [17] pour expliquer cette situation est la suivante : l'axe le plus long des mailles  $\text{SmCo}_5$  a tendance à se

mettre perpendiculairement à la surface des couches, car il est ainsi moins soumis au bombardement atomique pendant la phase de pulvérisation. Or l'axe le plus long dans le cas de  $\text{SmCo}_5$  est l'axe  $\bar{a}$ . L'axe  $\bar{c}$  (axe facile) doit donc se coucher dans le plan des couches. Cette théorie, très surprenante, n'est cependant pas une règle dans les techniques de dépôt : d'autres effets sont généralement prépondérants (épitaxie, plans denses,...).

#### IV.2.2 Aimantation et champ coercitif

Les propriétés magnétiques d'une couche dépendent directement de sa structure. Ainsi, un axe de facile aimantation perpendiculaire au plan équivaut à une boucle d'hystérésis très ouverte lors de la mesure magnétique « en perpendiculaire ». De même, le rapport de rémanence  $\frac{M_R}{M_S}$  est proche de 1 lorsque l'axe facile est aligné avec la direction du champ appliqué lors de la mesure au magnétomètre. Enfin, le champ coercitif mesuré, qui caractérise la résistance à la désaimantation, sera d'autant plus important que la structure cristalline sera proche de celle d'un aimant ( $\text{SmCo}_5$ ,  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$  ou  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ ). La taille des grains joue aussi un rôle important [20] ; plus les grains sont petits, plus les champs coercitifs sont élevés : les particules suffisamment petites sont en effet toujours aimantées à saturation.

Dans la littérature, la gamme de champs coercitifs obtenus sur des couches de Samarium-Cobalt s'étale de quelques centaines à 2400 kA/m, dans le cas de multicouches  $\text{SmCo}/\text{Cu}$  [21] où les phases  $\text{SmCo}_5$ ,  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$  et  $\text{Co}$  coexistent. Des aimantations à saturation proches d'un Tesla (c'est-à-dire voisines de celle de  $\text{SmCo}_5$  massif) sont généralement atteintes [17, 22].

#### IV.2.3 Paramètres expérimentaux de pulvérisation

Dans la plupart des références bibliographiques, les couches de Samarium-Cobalt sont intégrées dans une structure multicouche [23], dans le but de renforcer les propriétés magnétiques en créant des couplages entre moments magnétiques. La dispersion de phases de Samarium-Cobalt dans des matrices d'Aluminium ou de Cobalt a également été étudiée par des méthodes liant pulvérisation cathodique et dépôts par laser pulsé [24]. Les protocoles expérimentaux sont très souvent lourds : pulvérisation de cibles dont le rapport atomique  $\text{Co}/\text{Sm}$  est différent de 5 [25] ou co-pulvérisation [18].

En dépit de la complexité de ces protocoles, il est intéressant de connaître les différents paramètres expérimentaux étudiés.

#### IV.2.3.1 Puissances de pulvérisation

Les puissances de pulvérisation utilisées sont en général faibles ; elles n'excèdent pas  $2,5 \text{ W/cm}^2$  et ce pour éviter les contraintes thermiques. En effet, les cibles pressées sont généralement soumises sur leur face arrière à l'effet d'un circuit de refroidissement et de l'autre aux hautes températures du plasma. Typiquement, des puissances de l'ordre de  $1,1 \text{ W/cm}^2$  sont utilisées [25].

#### IV.2.3.2 Pressions de pulvérisation

Le gaz utilisé pour la pulvérisation est très souvent un gaz neutre, comme l'Argon. La pression de pulvérisation a un rôle très influent sur les propriétés magnétiques [22] : elle agit directement sur l'énergie des particules arrivant sur les substrats. Les pressions utilisées sont comprises entre 0,8 et 4 Pascals.

#### IV.2.3.3 Influence du substrat et des sous-couches

Plusieurs types de substrats sont cités dans la littérature. Le silicium, le verre et le quartz sont les principaux. La nature du substrat dépend évidemment de l'application visée. Par exemple, des détecteurs intégrés de champ magnétique ont pu être réalisés sur substrat de verre [26].

Entre le substrat et la couche magnétique, une sous-couche peut être déposée. Elle dépend essentiellement elle-aussi de l'application visée : ainsi, dans l'enregistrement magnétique, une sous-couche de Chrome va créer une épitaxie planaire en raison de l'accord de maille, ce qui a pour conséquence de renforcer les propriétés magnétiques [19]. Il a été montré que la taille des grains dépend fortement de la nature de la sous-couche et de l'épaisseur de la couche de SmCo : ainsi, dans le cas d'une bicouche Cr/SmCo, pour une épaisseur de SmCo inférieure à 100 nm, la taille des grains est proche de celle de la sous-couche [19].

Dans les structures multicouches envisagées pour un circulateur ou une antenne intégrés, au moins l'un des aimants est au contact du substrat (figures I.5 et I.6) ; nous devons donc déposer, dans un premier temps, directement les couches de Samarium-Cobalt sur les substrats. L'étude de l'effet d'une sous-couche n'est donc, dans notre étude, pas envisagée.

#### IV.2.3.4 Chauffage des substrats

La température de substrat est, en pulvérisation, un paramètre fondamental qui agit directement sur la structure des couches et donc sur leurs propriétés magnétiques. Il ressort nettement de l'ensemble des articles qu'aucune cristallisation ne peut apparaître en dessous de  $350^\circ\text{C}$  [27]. Cette température pourra donc servir de référence pour notre étude.



#### IV.2.3.5 Effet d'un champ magnétique pendant la phase de dépôt

Aucun article sur les dépôts de Samarium-Cobalt ne mentionne l'utilisation d'une induction magnétique in situ susceptible de favoriser l'orientation des couches. Des essais sur d'autres types de matériau montrent qu'il est cependant possible de favoriser une orientation [28] : sous un champ de 6 mT, les films de Cuivre phtalocyanine voient leur orientation cristallographique modifiée par l'apparition de nouveaux pics de diffraction.

#### IV.2.3.6 Epaisseur des couches

L'épaisseur des couches dépend des paramètres de l'expérience : durée de dépôt et puissance utilisée essentiellement. Les propriétés magnétiques lui sont directement liées. Pour des épaisseurs de l'ordre d'une à quelques dizaines de nanomètres, il peut y avoir des couplages avec des sous-couches, ce qui a tendance à améliorer de façon significative les propriétés magnétiques [27]. On peut obtenir cependant de bonnes propriétés magnétiques pour des épaisseurs de l'ordre du micron [22].

#### IV.2.3.7 Effet des recuits

Le recuit des couches est relativement courant dans la littérature [23]. Son objectif est de favoriser la cristallisation des couches et d'améliorer leurs propriétés magnétiques, ce qui est le cas pour des températures de recuit supérieures à 600°C et des durées supérieures à une heure.

Des recuits sous champ peuvent également être utilisés pour des applications spécifiques comme des circuits intégrés nécessitant des anisotropies fortes dans le plan des couches [26]. Ainsi, des recuits à 270°C sous champ magnétique de 40 kA/m ont permis de créer de fortes anisotropies planaires nécessaires à la fabrication d'un détecteur de champ magnétique.

### IV.2.4 Conclusion

De cette étude bibliographique, il ressort des paramètres très influents sur les propriétés des couches de Samarium-Cobalt : la température de substrat, la pression d'Argon lors de la phase de dépôt et les recuits. Ces informations, permettant de sérier les domaines de valeurs des paramètres à utiliser pour les dépôts, nous seront très précieuses dans l'étude que nous présenterons dans la quatrième partie.

Il reste que, dans la littérature, toutes les couches de Samarium-Cobalt réalisées par pulvérisation cathodique ont une anisotropie planaire : nous devons donc, compte-tenu de

l'application que nous visons, envisager des moyens nouveaux pour orienter l'axe facile de  $\text{SmCo}_5$  perpendiculairement au plan des couches.

### IV.3 Couches de Néodyme-Fer-Bore

La principale technique utilisée pour déposer les couches de Néodyme-Fer-Bore est la pulvérisation cathodique, qu'elle soit magnétron ou radiofréquence [29, 30].

#### IV.3.1 Orientation cristallographiques des couches

Il est possible de créer une anisotropie perpendiculaire au plan du film [31], sur des substrats de Silice et de Titane chauffés à 600°C, sous 0,8 Pa d'Argon et pour différentes épaisseurs. Des résultats similaires ont pu être obtenus, après recuits sous vide entre 500°C et 700°C, sur d'autres substrats comme le Molybdène [32] : des orientations (00 $\ell$ ) nettes apparaissent alors. Cela signifie que l'axe de facile aimantation est orienté, dans ce cas, perpendiculairement à la surface des couches.

#### IV.3.2 Propriétés magnétiques

La température de substrat, la pression et la puissance de pulvérisation sont les paramètres principaux qui influent très fortement sur les propriétés magnétiques. De très bons résultats ont ainsi pu être obtenus :

- des champs coercitifs très élevés dans certains cas, jusqu'à 1350 kA/m [33],
- des aimantations rémanentes jusqu'à 1,33 Tesla [34],
- des rapports aimantation rémanente sur aimantation à saturation proches de 1 [35].

L'épaisseur et la nature d'une sous-couche peuvent s'avérer être des paramètres très importants : les champs coercitifs peuvent varier du simple au triple selon la sous-couche [35]. Ainsi, une sous-couche de 540 nm de Molybdène permettra d'atteindre des champs coercitifs de 955 kA/m, alors qu'une même épaisseur de Tantale ne permet pas d'excéder 300 kA/m.

#### IV.3.3 Protocoles expérimentaux en pulvérisation cathodique

Les protocoles expérimentaux sont, dans la majorité des cas, beaucoup moins lourds que ceux utilisés pour les dépôts d'aimants de Samarium-Cobalt. Il est par exemple très fréquent de pulvériser une seule cible, directement sur les substrats sans sous-couche et ce dans les conditions suivantes :

- les puissances de pulvérisation sont dans la même gamme que celles rencontrées pour les Samarium-Cobalt (quelques  $\text{W}/\text{cm}^2$ ) [35],
- les températures de substrat permettant d'obtenir des dépôts cristallisés avoisinent  $440^\circ\text{C}$  [31],
- les pressions de pulvérisation varient entre 0,4 et 1 Pa dans l'ensemble des articles.

De bons résultats cristallographiques et magnétiques peuvent ainsi être obtenus en l'absence d'un recuit post-dépôt. Des recuits rapides ont cependant donné des résultats très bons : des champs coercitifs de l'ordre de  $1600 \text{ kA}/\text{m}$  ont ainsi pu être atteints [31].

#### IV.3.4 Problème du déficit en Néodyme

Il ressort de la littérature un problème important : celui du déficit de Néodyme dans les couches réalisées. Le manque d'atomes de Néodyme défavorise fortement la formation de la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , et affaiblit donc les propriétés magnétiques des couches réalisées. Cela est résolu, dans plusieurs articles, par la fabrication de cibles de pulvérisation enrichies en Néodyme, par exemple de composition  $\text{Nd}_{15}\text{Fe}_{69}\text{B}_{16}$  [32].

#### IV.3.5 Expérience de l'équipe C2M

En 1999, une pré-étude concernant les dépôts de Néodyme-Fer-Bore par la technique d'évaporation au canon à électrons a été réalisée au sein de l'équipe C2M de l'IRCOM [8]. La phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  n'a pu être formée ; seule des phases  $\text{FeNdO}_3$  ont pu être caractérisées aux rayons X et ce après recuit sous Argon à  $800^\circ\text{C}$  pendant 2 heures. Enfin, toutes les couches réalisées se sont vues déficitaires en Fer (le rapport atomique Fe/Nd varie entre 3 et 5).

### IV.4 Conclusion de l'étude bibliographique

Deux candidats principaux peuvent donc, sous forme de couche, « polariser magnétiquement » une couche de ferrite doux. Nous avons vu que les aimants Samarium-Cobalt présentaient une tendance naturelle à orienter leur axe facile dans le plan des couches alors que les Néodyme-fer-Bore pouvaient orienter, dans certaines conditions, leur axe  $\bar{c}$  perpendiculairement à ce plan. Ces phénomènes sont encore mal expliqués et suscitent des débats.

En ce qui concerne les Samarium-Cobalt, l'étude bibliographique montre que certaines solutions pour orienter différemment les couches n'ont pas encore été essayées : on peut citer notamment l'application d'une induction lors de la phase de dépôt. En outre, l'influence des sous-couches est souvent abordée d'un point de vue magnétique et non cristallographique. Or nous savons

que l'un et l'autre sont très liés et qu'une approche cristallographique des sous-couches, c'est-à-dire en s'intéressant aux adaptations possibles des paramètres de maille entre matériaux et substrats bien adaptés, pourrait apporter des solutions au problème de l'orientation de ces couches. Ces différentes raisons nous ont conduit à étudier les dépôts de Samarium-Cobalt par pulvérisation cathodique magnétron dans le but d'orienter l'axe facile perpendiculairement au plan des substrats.

Les résultats sur les couches de Néodyme-Fer-Bore sont souvent intéressants des points de vue magnétique et cristallographique puisqu'il semble plus facile d'obtenir une bonne orientation cristallographique pour ce type d'aimants. Le principal problème concerne l'obtention de couches présentant les bons rapports atomiques entre les différents éléments constitutifs de la phase magnétique  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ .

Dans la deuxième partie, nous présentons, à l'aide de la théorie de la non-réciprocité introduite précédemment et d'un logiciel de simulation, la prévision du comportement d'une antenne à ferrite intégrée.

### **Bibliographie de la première partie**

[1] : BRINEY E., *Contribution à l'intégration d'un circulateur HF : caractérisations magnétiques de couches de ferrite*, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, n° 42.2002, Université de Limoges, 2002.

[2] : VERITE M., *Etude de dépôts de ferrite pour dispositifs intégrés micro-ondes non réciproques*, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, n° 50.2002, Université de Limoges, 2002.

[3] : WANE E., *Etude, réalisation et caractérisation de couches de ferrites destinées à des dispositifs intégrés micro-ondes non réciproques*, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, n° 30.2000, Université de Limoges, 2000.

[4] : THOUREL L., *Dispositifs à ferrites pour micro-ondes*, Paris, Masson, 1969.

[5] : BERTHOU K., *Contribution à la modélisation des ferrites non saturés en hyperfréquences*, Thèse de doctorat en électronique, n°440, Université de Bretagne Occidentale, 1996.

[6] : COMBES P.F., *Micro-ondes tome 2, Circuits passifs, propagation, antennes*, Dunod, 1997.

[7] : MELON C., *Contribution à la modélisation des ferrites par la méthode des différences finies en régime transitoire : applications à l'étude des dispositifs micro-ondes à ferrite*, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, n° 14.1996.

[8] : YIM J.B., *Etude de la faisabilité d'une structure multicouche pour application aux antennes à polarisation circulaire*, Stage de D.E.A. d'électronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, 1999.

[9] : KHAN Y., Proc. 11<sup>th</sup> Rare Earth Res.Conf., 11, 652, 1974.

[10] : BUSCKOW K.H.J., VAN DER GOOT A.S., Journal of Less-Common Metals, 14, 1968, 323.

[11] : CATALDO L., *Contribution à l'élaboration et à l'optimisation d'alliages magnétiques permanents Sm-Co-Cu-Fe-Zr*, pp 38 et sq, Thèse de doctorat, Université Claude-Bernard-Lyon I, année 1996, n° d'ordre 206-96.

[12] : DU TREMOLET DE LACHEISSERIE E., *Magnétisme, Tome II : Matériaux et applications*, Collection Grenoble Sciences, 1999.

[13] : LIERSERT S., *Analyse physico-chimique des paramètres du développement d'une microstructure coercitive et anisotrope dans des poudres pour aimants liés puissants par application du procédé H.D.D.R. au Néodyme-Fer-Bore*, Thèse de l'Université Joseph Fourier-Grenoble, 1998.

[14] : SHOEMAKER C.B., SHOEMAKER D.P., FRUCHART R., *The structure of a new magnetic phase related to the sigma phase : Iron Neodymium Boride Nd<sub>2</sub>Fe<sub>14</sub>B*, Acta Crystalligraphia, C40, 1984, pp. 1668-1670.

[15] : RICHARDT A., DURAND A.M., *Le vide, les couches dures, les couches minces*, Editions In Fine, 1994.

- [16] : RICHARDT A., DURAND A.M., *La pratique du vide et des dépôts de couches minces*, Editions In Fine, 1995.
- [17] : CADIEU F.J., *High coercitive force and large remanent moment magnetic films with special anisotropies*, Journal of applied physics, 1987, 61, 8, pp 4105-4110.
- [18] : FULLERTON E.E., JIANG J.S., REHM C., BADER S.D., PATEL J.B., WU X.Z., *High coercivity, epitaxial Sm-Co with uniaxial in-plane anisotropy*, Applied physics letter 71, 1997, pp 1579-1581.
- [19] : TAKEI S., OTAGIRI Y., MORISAKO A., MATSUMOTO M., *Dependance of magnetic properties on magnetic layer thickness in SmCo/Cr films*, Journal of applied physics, 1999, 85, 8, pp 6145-6147.
- [20] : KITTEL C., *Physique de l'état solide*, Dunod, 1983.
- [21] : YAMAZAKI Y., TAKANO K., TAKAMURA H et al., *Magnetic properties of SmCoCu and SmCoCu/Co exchange spring films with high coercivity*, Materials Transactions, 1998, 39, 2, pp 302-307.
- [22] : RANI R., CADIEU F.J., *SmCo based sputtered films with CaCu<sub>5</sub> and TbCu<sub>7</sub> structures*, Journal of applied physics, 1997, 81, 8, pp 5634-5636.
- [23] : YAMAZAKI Y., TAKANO K., TAKAMURA H et al., *Magnetic properties of SmCoCu and SmCoCu/Co exchange spring films with high coercivity*, Materials Transactions, 1998, 39, 2, pp 302-307.
- [24] : CHEN L., CADIEU C.F., THEODOROPOULOS T., CADIEU F.J., *Nanophase dispersed SmCo films with high remanence and corrosion resistance*, Journal of Applied Physics, 2000, 87, 9.
- [25] : ZANGARI G., LU, B., LAUGHLIN D.E., LAMBETH D.N., *Structure and magnetic properties of SmCo thin films of Cr/ag/Si Templates*, Journal of applied physics, 1999, 8, pp 5759-5761.
- [26] : TAKEZAWA M., KIM Y.H., ISHIYAMA K., BABA M., AJIRO N., YAMAGUCHI M., ARAI K.I., *Integration of high-frequency carrier-type thin-film magnetic field sensor with SmCo thin film bias magnet*, IEEE, 1999, 35, 5.

[27] : ROMERO S.A., CORNEJO D.R., RHEN F.M., *Magnetic properties and underlayer thickness in SmCo/ Cr films*, Journal of applied physics, 2000, 87, 9, pp 6965-6967.

[28]: JI Z.G., *Copper phthalocyanine film grown by vacuum deposition under magnetic field*, Thin Solid Films, 2002, 402, pp 79-82.

[29] : KAPITANOV B.A.,KORNILOV N.V., LINETSKY Y.L. et al., *Sputtered permanent Nd-Fe-B magnets*, Journal of magnetism and magnetic materials, 1993, 127, pp 289-297.

[30] : HOMBURG H., SINNEMANN T., METHFESSEL S. et al., *Sputtered NdFeB films of high coercivity*, Journal of magnetism and magnetic materials, 1993, 83 , pp 231-233.

[31] : YAMASHITA S., YAMASAKI J., IKEDA M., IWABUCHI N., *Anisotropic Nd-Fe-B thin films magnets for milli-size motor*, Journal of applied physics, 1991, 70, 10, pp 6627-6629.

[32] : NAKANISHI A., UEDA M., OKUDA T., MIZUTANI N., NISHIYAMA J., MOTOKAWA M., WANG Z., ADACHI N., OHSATO H., *Compositional and structural study of rf-sputtered Nd-FE-B thin film*, Journal of magnetism ans magnetic materials, 1999, 196-197, pp 295-296.

[33] : JIANG H., O'SHEA M.J., *Coercivity and its temperature dependance in NdFeB thin films with Cr, Mo, Ti buffer layers*, Journal of applied physics, 2000, 87, 9, pp 6131-6133.

[34] : SUN H., TOMIDA T., HIROSAWA S., MAEHARA Y., *Magnetic properties and microstructures studies of Nd-Fe-B thin films*, Journal of magnetism and magnetic materials, 1996, 164, pp 18-26.

[35] : JIANG H., O'SHEA M.J., *Structure and magnetic properties of Ndfcb thin films with Cr, Mo, Nb, Ta, Ti and V buffers*, Journal of magnetism and magnetic materials, 1999, 212, pp 59-68.

Deuxième partie : simulation du comportement  
d'une antenne intégrée à ferrite



# I Introduction et contexte de l'étude

L'équipe Composants et Circuits Micro-électroniques et Micro-optiques (C2M) de l'Institut de Recherche en Communications Optiques et Micro-ondes (IRCOM) s'efforce depuis plusieurs années de concevoir un circulateur micro-onde intégré fonctionnant aux alentours de 70 GHz. Ces composants existant depuis longtemps à l'état massif, l'intégration est avantageuse en termes d'encombrement et de coût. Le fonctionnement des circulateurs est basé sur la propriété de non-réciprocité intrinsèque aux ferrites, comportement qui a été évoqué dans le paragraphe V de la première partie. D'autres composants tels que les antennes à ferrite font appel à même propriété. Nous avons vu que ce comportement ne pouvait exister sans l'application d'un champ magnétostatique. Ce champ peut être créé de deux manières :

d'une part, le champ « polarisant » est appliqué par une couche de ferrite sur elle-même, dans le cas où le milieu de propagation est un ferrite dur : c'est ce que nous appellerons la première approche. Trois thèses ont déjà été soutenues sur le sujet à l'Université de Limoges : deux sur l'élaboration et la caractérisation physico-chimique des couches de ferrite [1, 2] et une troisième concernant leur caractérisation hyperfréquence [3].

d'autre part, le champ « polarisant » est apporté par une couche spécialement réalisée dans ce but : c'est ce que nous appellerons la seconde approche. L'ensemble est alors constitué de la superposition d'une couche de ferrite doux (milieu propageur) et d'une couche d'aimant qui crée le champ.

C'est la seconde approche qui fait l'objet de cette étude. Il s'agit donc d'élaborer la couche d'aimant permanent présentant de bonnes propriétés cristallographiques et magnétiques susceptibles de polariser la couche de ferrite doux qui lui est adjointe. Ce travail s'inscrit dans l'un des objectifs de l'équipe : la réalisation d'un circulateur intégré. Nous allons donc commencer par rappeler brièvement l'ensemble des travaux réalisés sur le sujet.

## II Bilan des travaux d'Ibrahima Wane, de Marc Vérité et d'Emmanuel Briney

### II.1 Travaux d'Ibrahima Wane [1]

Durant sa thèse, soutenue en juillet 2000, Ibrahima Wane s'est efforcé de réaliser des couches épaisses (quelques dizaines de microns) de ferrites durs d'hexaferrite de strontium ( $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$ ) d'une part et d'hexaferrite de baryum ( $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ ) d'autre part, par évaporation au canon à électrons. En outre, une brève étude sur un ferrite doux de type Nickel-Zinc ( $\text{Ni}_{0,65}\text{Zn}_{0,35}\text{Fe}_2\text{O}_4$ ) a été faite.

#### II.1.1 Couches de ferrite de baryum et de ferrite de strontium

Les dépôts réalisés à partir d'hexaferrite de strontium obtenus par Ibrahima Wane possèdent une importante intensité d'aimantation à saturation (0,6 Tesla) et un rapport de rémanence de 0,5. Les champs coercitifs obtenus n'excèdent pas 40 kA/m et la phase  $\text{SrFe}_{12}\text{O}_{19}$  n'a pu être formée ; seules les phases de la magnétite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ), de la wüstite ( $\text{FeO}$ ) et de l'hématite ( $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ) ont pu être formées.

Par la suite, Ibrahima Wane a étudié l'hexaferrite de baryum. Il a pu trouver les conditions expérimentales adéquates (température, pression,...) permettant la formation de la phase magnétique  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$ . Les propriétés magnétiques obtenues sont satisfaisantes : les champs coercitifs atteignent 350 kA/m et les intensités d'aimantation à saturation 0,24 Tesla. L'étude a montré également que l'empilement de deux sous-couches, l'une de titane, l'autre d'or étaient nécessaires pour améliorer l'adhérence de l'hexaferrite de baryum sur le substrat de silicium. La couche d'or pourra en outre servir de plan de masse pour le circulateur.

#### II.1.2 Couches de Nickel-Zinc

Dans le cadre de la seconde approche, Ibrahima Wane a réalisé quelques dépôts de ferrite de Nickel-Zinc. Des propriétés magnétiques acceptables ont pu être obtenues par évaporation au canon à électrons, à partir d'un lingot de  $\text{Ni}_{0,65}\text{Zn}_{0,35}\text{Fe}_2\text{O}_4$  polycristallin : les intensités d'aimantation à saturation atteignent 0,37 Tesla (contre 0,46 Tesla pour le massif) pour des champs coercitifs

inférieurs à 10 kA/m. Ce ferrite doux pourrait donc être un bon candidat pour le milieu propagatif de la deuxième approche.

## II.2 Thèse de Marc Vérité [2]

Le travail de Marc Vérité s'inscrit dans la continuité de celui d'Ibrahima Wane. Durant sa thèse, soutenue en novembre 2002, il a étudié l'influence des paramètres de dépôts (nature et température des substrats, vitesse de dépôt, épaisseur des couches) sur les différentes propriétés (structure cristallographique, magnétisme et composition) des couches d'hexaferrite de baryum qu'il a élaborées. Il a notamment mis en évidence un phénomène d'évaporation préférentielle durant la phase de dépôt. Sa conclusion est qu'il est nécessaire, pour s'affranchir de ce phénomène, de réaliser les couches à partir de l'évaporation de deux sources indépendantes, l'une d'oxyde de baryum et l'autre d'oxyde de fer.

## II.3 Travaux d'Emmanuel Briney [3]

Emmanuel Briney a soutenu sa thèse en novembre 2002. Son travail s'est divisé en deux parties. Dans un premier temps, il s'est attaché à élaborer, par pulvérisation cathodique magnétron, les sous-couches d'accrochage d'or et de titane évoquées au paragraphe II.1.1, puis à les caractériser. Son travail a consisté à optimiser les conditions de dépôt des sous-couches de façon à réduire les craquelures de surface sur les couches de  $\text{BaFe}_{12}\text{O}_{19}$  d'Ibrahima Wane et de Marc Vérité. Il a également montré que l'or peut faire office de plan de masse du circulateur intégré.

La deuxième partie de sa thèse a consisté à mettre au point un dispositif de caractérisation micro-onde adapté aux couches de ferrites. Il a ainsi pu, par résolution analytique des équations de Maxwell, mettre au point une méthode originale de caractérisation hyperfréquence en cavité métallique. Son travail a été validé par la mesure, à 57 GHz, de la largeur de raie de gyrorésonance de l'hexaferrite de strontium. Un matériau parfaitement orienté et monocristallin étant nécessaire à l'expérience, il a utilisé, en première approximation, des disques usinés dans une pastille massive d'hexaferrite de strontium d'épaisseur 100  $\mu\text{m}$ . Des largeurs de raie voisines de 200 kA/m ont ainsi pu être mesurées.

Le circulateur intégré est donc un des objectifs poursuivis par l'équipe C2M. Comme nous l'avons vu dans la première partie, les antennes à ferrite peuvent également être une application potentielle des couches magnétiques. Nous présentons dans la suite les résultats d'une simulation du comportement d'une antenne à ferrite intégrée.

# III Simulation du comportement d'une antenne à ferrite intégrée

Nous avons vu dans la première partie que deux des principales applications de la non-réciprocité sont les circulateurs micro-ondes et les antennes à polarisation circulaire. Ces dernières ont fait l'objet de plusieurs études à l'état massif [4, 5]. Nous présentons ici le comportement fréquentiel attendu d'une antenne à polarisation circulaire dont la structure a été présentée sur la figure I.24 de la première partie ; ces résultats ont été obtenus grâce au logiciel *Linecalc* développé par *Agilent Technologies*. Les phénomènes étudiés se situent au niveau du ferrite doux soumis à un champ magnétostatique créé par une couche d'aimant parfaitement orientée. Dans cette étude, nous négligerons en première approximation les perturbations électromagnétiques introduites par la couche d'aimant, ce qui veut dire que la simulation n'est valable que pour l'ensemble patch-ferrite doux-plan de masse. Par conséquent, les valeurs numériques obtenues ne peuvent malheureusement être considérées comme parfaitement exactes en raison des phénomènes de rayonnement non pris en compte. Notre travail n'est donc qu'une première approche du comportement attendu d'une antenne patch à ferrite. Avant de présenter les travaux de simulation, nous allons rappeler quelques définitions.

## III.1 Définitions préliminaires

### III.1.1 Notion de longueur d'onde guidée

Une antenne est caractérisée, entre autres, par sa fréquence de fonctionnement (i.e. la fréquence de l'onde qu'elle émet ou reçoit), et donc par sa longueur d'onde  $\lambda$ , qui devient, dans l'antenne,  $\lambda_g$ , longueur d'onde guidée. Son existence est liée au fait qu'une onde électromagnétique se propage plus lentement dans un diélectrique que dans le vide.  $\lambda_g$  et  $\lambda$  sont liées par la relation :

$$\lambda_g = \frac{\lambda}{\sqrt{\epsilon_{r\text{ effectif}} \mu_{r\text{ effectif}}}} = \frac{\lambda}{\sqrt{K_{\text{ effectif}}}} \quad (\text{II. 1})$$

où  $\epsilon_{r\text{ effectif}}$  et  $\mu_{r\text{ effectif}}$  sont respectivement la permittivité diélectrique relative effective et la perméabilité magnétique relative effective du ferrite doux. Ces valeurs peuvent être estimées grâce au logiciel *Linecalc* ; elles diffèrent de la permittivité et de la perméabilité classiques du diélectrique

de l'antenne (répertoriées dans les tables) en raison de la répartition particulière de l'énergie. Cette répartition énergétique est liée directement à la façon dont est construite l'antenne (position des différents éléments, alimentation).  $\epsilon_{r\text{effectif}}$  et  $\mu_{r\text{effectif}}$  sont donc deux paramètres propres à l'antenne.

### III.1.2 Dimensions d'une antenne

Les dimensions d'une antenne ne sont pas quelconques : elles sont liées aux conditions d'utilisation. Pour pouvoir travailler sur le mode fondamental, c'est-à-dire sans rayonner des modes parasites, la largeur et la longueur du patch doivent être de l'ordre de la demi-longueur d'onde. De même, l'épaisseur idéale du diélectrique est  $\frac{\lambda}{20}$  même si  $\frac{\lambda}{10}$  est acceptable.

## III.2 Propriétés de l'antenne patch simulée

### III.2.1 Ferrite doux utilisé

Le diélectrique de l'antenne est ici un ferrite doux monocristallin de Nickel-Zinc fourni par la société TEMEX. Sa formule générale est  $\text{Ni}_{0,65}\text{Zn}_{0,35}\text{Fe}_2\text{O}_4$ . Ses principales propriétés indispensables pour la simulation sont :

sa permittivité diélectrique relative  $\epsilon_r = 14,1$ ,

sa perméabilité relative en champ appliqué nul  $\mu_{r0} = 1$ ,

son aimantation à saturation :  $\mu_0 M_s = 0,55 \text{ T}$ , donnée sur la figure II.1, qui représente la courbe de première aimantation du matériau, obtenue expérimentalement à l'hystérésismètre,

sa largeur de raie de résonance :  $\Delta H = 15 \text{ kA/m}$ ,

sa tangente de perte, qui vaut  $10^{-3}$ .

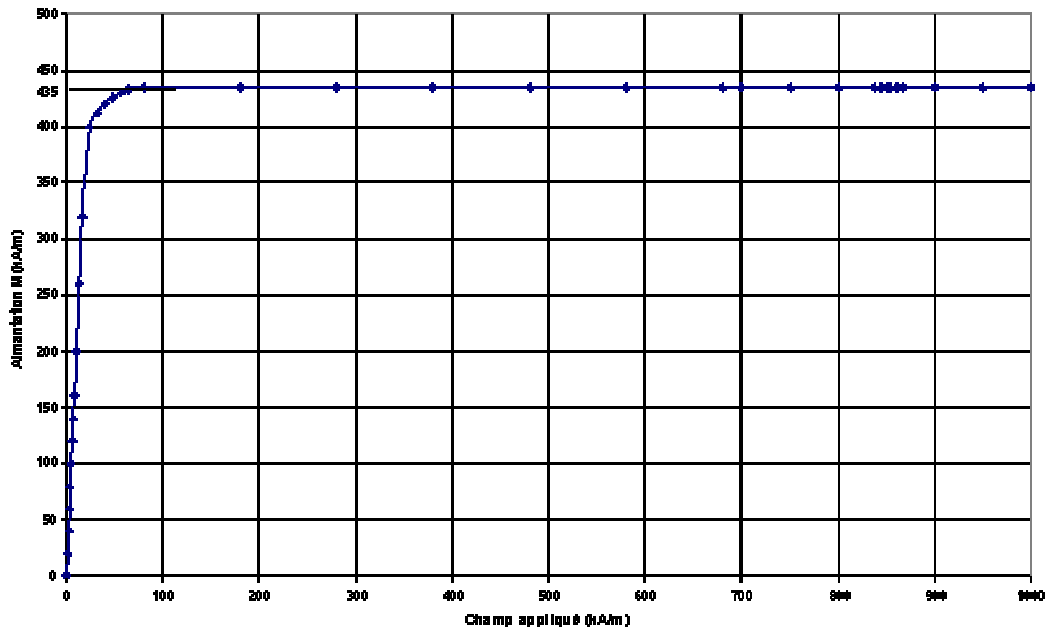


Figure II. 1 : Courbe de première aimantation du ferrite de Nickel-Zinc de Temex

### III.2.2 Dimensions de l'antenne en champ magnétostatique nul

La structure envisagée pour cette étude est celle d'une antenne patch carrée intégrée semblable à celle de la figure I.24 de la première partie. Dans le domaine d'utilisation possible, nous avons choisi une fréquence de fonctionnement de 40 GHz. Seul le mode fondamental doit être rayonné : cette condition sera introduite dans le simulateur (voir paragraphe III.4.1). Pour une antenne fonctionnant à 40 GHz (soit  $\lambda = 7,5$  mm), la dimension du patch est (formule (III.1)):

$$d = \frac{\lambda_g}{2} = \frac{7,5}{2\sqrt{K_{\text{effectif0}}}} \cong \frac{7,5}{2\sqrt{14,1}} \cong 1 \text{ mm}, K_{\text{effectif0}} \text{ est la valeur de } K_{\text{effectif}} \text{ en champ magnétique}$$

appliqué nul ; nous supposons ici, en première approximation, que la permittivité diélectrique relative effective du diélectrique est égale à la permittivité relative du ferrite, soit 14,1. Un patch carré de 1 mm de côté est donc acceptable pour les applications intégrées envisagées.

Nous verrons dans la suite que l'épaisseur adéquate de ferrite est déterminée par le simulateur. Avant cela, nous allons présenter le modèle d'Igarashi et Naïto utilisé dans la simulation.

### III.3 Modèle de Igarashi et Naïto [6,7]

#### III.3.1 Introduction

Le modèle de Polder que nous avons vu dans la première partie décrit le comportement des ferrites saturés : c'est donc un cas idéal. Dans de nombreux cas, les ferrites doux utilisés en hyperfréquences ne sont pas complètement saturés. Il convient donc d'introduire un modèle plus proche de la réalité, c'est-à-dire non saturé. Nous avons choisi le modèle d'Igarashi et Naïto pour sa

facilité d'utilisation. Une présentation complète de ce modèle non-saturé est donné dans la thèse de Karine Berthou-Pichavant [6]. La différence fondamentale avec le modèle précédent est donc que dans ce cas la composante selon (Oz) du tenseur de perméabilité relative  $\mu_{rz}$  (voir paragraphe V.2.2 de la première partie) est différent de 1.

### III.3.2 Grandes lignes du modèle d'Igarashi et Naïto

Le principe repose sur le calcul de la direction moyenne de l'aimantation afin d'obtenir la valeur de  $\mu_{rz}$  en fonction de l'aimantation du matériau [7]. L'équation de départ est celle de Gilbert (équation (I.49)), où :

$$\vec{A} = \frac{\alpha}{M_S} \vec{M} \wedge \frac{d\vec{M}}{dt} \quad (\text{II. 2})$$

où  $\vec{A}$  est un terme d'amortissement et  $\alpha$  est le coefficient d'amortissement (paragraphe V.2.2.3 de la première partie). Soit  $\vec{u} \begin{pmatrix} \alpha_1 \\ \alpha_2 \\ \alpha_3 \end{pmatrix}$  un vecteur colinéaire à  $\vec{M}_S$  en un point quelconque de l'échantillon de ferrite.  $\vec{u}$  est supposé normé :  $\alpha_1^2 + \alpha_2^2 + \alpha_3^2 = 1$ .

La résolution de l'équation de Gilbert conduit à l'expression du tenseur de perméabilité relative :

$$[\mu_r] = \begin{pmatrix} \chi(1-\alpha_1^2) & -\chi\alpha_1\alpha_2 - j\kappa\alpha_3 & -\chi\alpha_1\alpha_3 + j\kappa\alpha_2 \\ -\chi\alpha_2\alpha_1 + j\kappa\alpha_3 & \chi(1-\alpha_2^2) & -\chi\alpha_2\alpha_3 - j\kappa\alpha_1 \\ -\chi\alpha_3\alpha_1 - j\kappa\alpha_2 & -\chi\alpha_3\alpha_2 + j\kappa\alpha_1 & \chi(1-\alpha_3^2) \end{pmatrix} \quad (\text{II. 3})$$

$$\text{avec } \chi = \frac{\omega_m(\omega_0 + j\omega\alpha)}{-\omega^2 + (\omega_0 + j\omega\alpha)^2} \quad (\text{II. 4})$$

$$\text{et } \kappa = \frac{-\omega\omega_m}{-\omega^2 + (\omega_0 + j\omega\alpha)^2} \quad (\text{II. 5})$$

où  $\gamma$  est le rapport gyromagnétique,

$\omega_m = \gamma M_S$ ,  $M_S$  étant l'aimantation à saturation du ferrite doux,

$\omega_0 = \gamma H_0$ ,  $H_0$  étant le champ statique appliqué,

$\omega = 2\pi f$ ,  $f$  étant la fréquence du champ micro-onde dans le ferrite.

Si l'orientation des domaines magnétiques dans le matériau est suffisamment aléatoire, ce qui est le cas dans un ferrite doux loin de la saturation, les valeurs moyennes de  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  sont :

$$\begin{aligned}
\langle \alpha_1 \rangle &= 0 \\
\langle \alpha_2 \rangle &= 0 \quad \text{et} \quad \langle \alpha_1^2 \rangle = \langle \alpha_2^2 \rangle = \frac{1}{2}(1 - \langle \alpha_3^2 \rangle) \\
\langle \alpha_3 \rangle &= \frac{M}{M_S}
\end{aligned} \tag{II. 6}$$

En faisant l'approximation que  $\langle \alpha_1 \rangle = \alpha_1$  et que  $\langle \alpha_2 \rangle = \alpha_2$  et  $\langle \alpha_3 \rangle = \alpha_3$ , le tenseur se résume donc à :

$$[\mu_r] = \begin{pmatrix} \chi & -j\kappa\alpha_3 & 0 \\ +j\kappa\alpha_3 & \chi & 0 \\ 0 & 0 & \chi(1 - \alpha_3^2) \end{pmatrix} \tag{II. 7}$$

Les solutions de l'équation de Gilbert, en tenant compte de l'amortissement, sont :

$$\begin{cases} \mu_{r+} = \mu'_{r+} - j\mu''_{r+} = \chi + \kappa\alpha_3 = \frac{\omega_m(\omega_0 + j\omega\alpha)}{-\omega^2 + (\omega_0 + j\omega\alpha)^2} - \frac{\omega\omega_m}{-\omega^2 + (\omega_0 + j\omega\alpha)^2} \frac{M}{M_S} \\ \mu_{r-} = \mu'_{r-} - j\mu''_{r-} = \chi - \kappa\alpha_3 = \frac{\omega_m(\omega_0 + j\omega\alpha)}{-\omega^2 + (\omega_0 + j\omega\alpha)^2} + \frac{\omega\omega_m}{-\omega^2 + (\omega_0 + j\omega\alpha)^2} \frac{M}{M_S} \end{cases} \tag{II. 8}$$

où  $\mu_{r+}$  et  $\mu_{r-}$  sont respectivement les perméabilités magnétiques correspondant à la polarisation droite et à la polarisation gauche de l'onde rayonnée (voir première partie).

Les valeurs de  $\mu_{r+}$  et  $\mu_{r-}$  sont ici complexes car elles tiennent compte des pertes introduites par ce modèle. La valeur de  $M$ , liée à  $\omega_0$  (et donc au champ magnétostatique appliqué  $\vec{H}_0$ ) est obtenue grâce à la courbe de première aimantation du ferrite doux (figure II.1).

### III.4 Simulation à partir du logiciel *Linecalc*

Le logiciel *Linecalc*, permet de calculer, à partir de formules empiriques, les dimensions de lignes micro-ondes (et des antennes) à impédance et permittivité diélectrique du substrat données ; réciproquement, en donnant les dimensions et la permittivité diélectrique, le logiciel renvoie l'impédance de la ligne et la permittivité diélectrique effective de la ligne. L'antenne sera donc ici considérée comme une ligne microstrip dont la longueur est égale à la largeur (patch carré).

#### III.4.1 Antenne en champ magnétostatique appliqué nul

Avant d'étudier le comportement de l'antenne pour différentes valeurs de champ, il convient de le simuler en champ magnétique appliqué nul. La fenêtre de simulation est présentée sur la figure II.2.



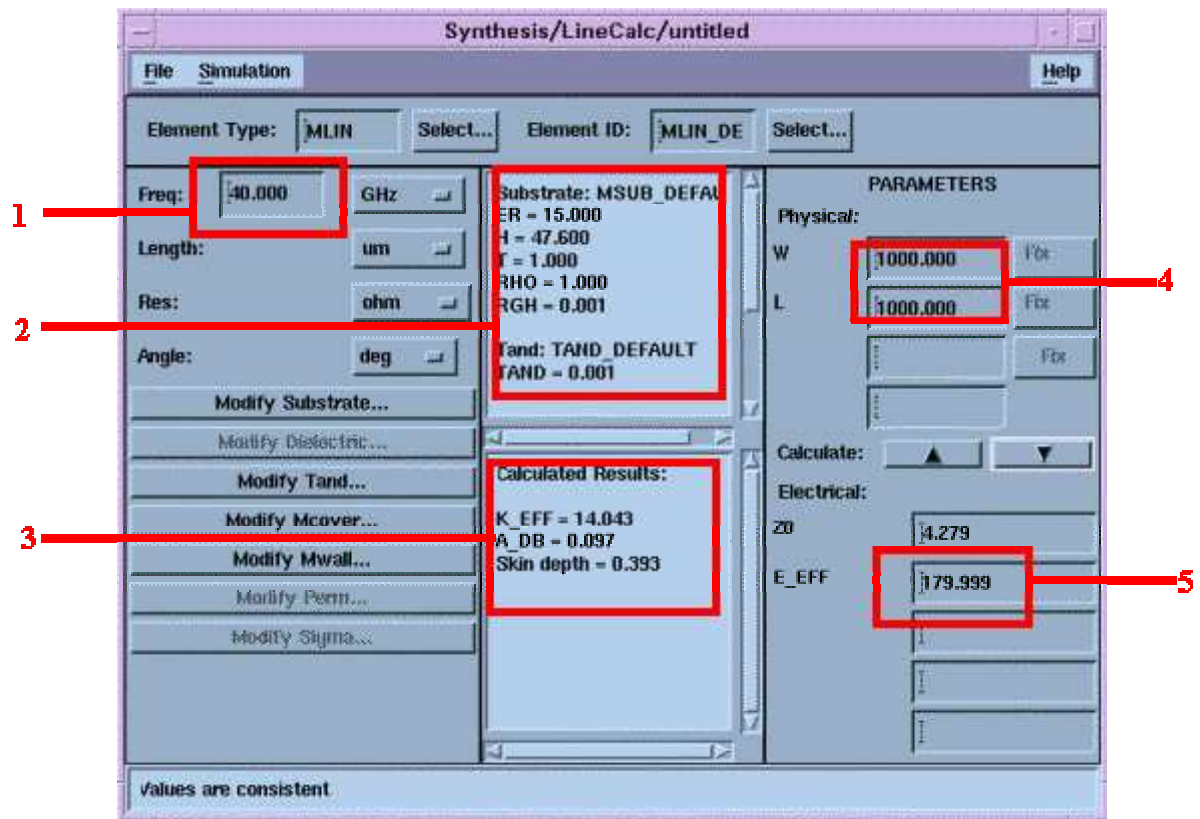


Figure II. 2 : Fenêtre de simulation du logiciel *Linecalc*

Dans cette fenêtre, nous pouvons régler :

- la fréquence de fonctionnement (cadre 1),
- les différentes propriétés du ferrite : permittivité relative (notée ER dans le cadre 2), et tangente de perte (notée TAND dans le cadre 2),
- l'épaisseur de métal du patch en microns, noté T dans le cadre 2,
- les dimensions géométriques du patch (1 mm\* 1mm, cadre 4).

L'épaisseur du ferrite (notée H dans le cadre 2) est ajustée de manière à obtenir une longueur électrique effective ( $E\_EFF$ ) de  $180^\circ$  (cadre 5) Cette dernière valeur de  $180^\circ$ , égale au produit du facteur de propagation (classiquement noté  $\beta$ ) par la longueur de la ligne (ici, il s'agit de la dimension du patch, soit 1 mm), indique que l'antenne est utilisée sur son mode fondamental. Dans le cadre 3, les résultats affichés correspondent à l'atténuation de la ligne en dB ( $A\_DB$ ), à l'épaisseur de peau dans le patch (skin Depth) et  $K_{\text{effectif } 0}$ .

Les caractéristiques générales de l'antenne patch en champ nul sont résumées dans le tableau III.1.

Dimensions du patch carré	1 mm par 1 mm
Fréquence de fonctionnement	40 GHz
Epaisseur de ferrite	47,6 μm
Epaisseur de métal du patch	1 μm
Valeur de $K_{\text{effectif}}$	14,093

Tableau II. 1 : Propriétés de l'antenne patch en champ appliqué nul

### III.4.2 Etude en fréquence

Une fois les propriétés de l'antenne établies en champ nul, nous calculons, à l'aide du système II.8,  $\mu_{r+}$  et  $\mu_{r-}$  pour chaque valeur de  $\omega_0$  (c'est-à-dire pour chaque valeur de champ statique  $H_0$ ). Le simulateur nous renvoie les valeurs de  $K_{\text{effectif}+}$  et  $K_{\text{effectif}-}$  correspondant respectivement à  $\mu_{r+}$  et  $\mu_{r-}$ . On déduit les longueurs d'onde rayonnées à partir de l'équation (II.1) :

$$\text{en champ appliqué nul : } \lambda_{g0} = \frac{\lambda}{\sqrt{K_{\text{effectif}0}}} ; \quad (\text{II. 9})$$

$$\text{et pour chaque valeur de } \mu_{r+} \text{ et } \mu_{r-} : \lambda_{g\pm} = \frac{\lambda}{\sqrt{K_{\text{effectif}\pm}}} , \quad (\text{II. 10})$$

où  $K_{\text{effectif}0}$  est la valeur de  $K_{\text{effectif}}$  en champ nul.

Soit, en faisant le rapport de (II.9) avec (II.10) :

$$\lambda_{g\pm} = \lambda_{g0} \frac{\sqrt{K_{\text{effectif}0}}}{\sqrt{K_{\text{effectif}\pm}}} . \quad (\text{II. 11})$$

On en déduit les fréquences de fonctionnement de l'antenne :

$$f^{\pm} = f_0 \frac{\sqrt{K_{\text{effectif}0}}}{\sqrt{K_{\text{effectif}\pm}}} \quad (\text{II. 12})$$

où  $f_0$  la fréquence de fonctionnement de l'antenne en champ nul.

### III.4.3 Résultats de la simulation

#### III.4.3.1 Valeurs des perméabilités magnétiques

Le tableau II.2 présente les valeurs de perméabilités magnétiques obtenues avec les modèles d'Igarashi et Naïto et de Polder (système II.8 et formules I.15 et I.16 de la première partie). Bien que le ferrite doux soit loin de la saturation au vu des valeurs de champ, il est intéressant de noter que l'écart relatif entre les deux modèles est faible (tableau II.3) : les deux modèles sont équivalents (à  $10^{-3}$  près) en ce qui concerne la partie propagation de l'onde ( $\mu_{r+} \cong \mu'_{r+}$  et  $\mu_{r-} \cong \mu'_{r-}$ ).

$H_0$ /m	Modèle de Polder		Modèle de Igarashi & Naïto			
	$\mu_{r+}$	$\mu_{r-}$	$\mu'_{r+}$	$\mu'_{r-}$	$\mu''_{r+}$	$\mu''_{r-}$
0	1	1	1	1	-0,002526587	-0,002526587
1	0,982384508	1,017584516	0,982230449	1,01743199	-0,002526798	-0,002526389
2	0,964737958	1,035138137	0,964458679	1,034861925	-0,002527428	-0,002525793
3	0,947060269	1,052660946	0,946682472	1,052287749	-0,00252848	-0,0025248
4	0,929351356	1,070153022	0,928899608	1,069707407	-0,002529952	-0,00252341
5	0,911611138	1,087614448	0,911107869	1,087118845	-0,002531845	-0,002521623
6	0,893839532	1,105045302	0,893305035	1,104520005	-0,002534159	-0,002519438
7	0,876036453	1,122445667	0,875488888	1,121908834	-0,002536893	-0,002516856
8	0,85820182	1,13981562	0,857657208	1,139283274	-0,002540048	-0,002513877
10	0,822437549	1,174464615	0,821938369	1,173980765	-0,002547622	-0,002506727
13	0,768552368	1,226212009	0,76818811	1,225867679	-0,002562139	-0,00249302
16	0,714378609	1,277689971	0,714178143	1,277514028	-0,002580448	-0,002475733
24	0,640405565	1,344719336	0,640364391	1,3447088	-0,00262819	-0,002431751

Tableau II. 2 : Valeurs des perméabilités selon les modèles de Polder et d'Igarashi et Naïto

<b>Ecart relatif en %</b>		
<b>H<sub>0</sub></b> <b>(kA/m)</b>	<b>Re (μ<sub>r+</sub>)</b>	<b>Re (μ<sub>r-</sub>)</b>
0	0	0
1	0,015682179	0,014989024
2	0,028948734	0,026683668
3	0,039891542	0,035452733
4	0,048608979	0,041640318
5	0,055206583	0,045567904
6	0,059797804	0,047536247
7	0,062504845	0,04782707
8	0,063459619	0,046704602
10	0,060695179	0,041197429
13	0,047395254	0,028080751
16	0,028061581	0,013770377
24	0,006429452	0,000783494

Tableau II. 3 : Ecart relatif des parties réelles de perméabilités magnétiques entre les modèles de Polder et d'Igarashi et Naïto

#### III.4.3.2 Séparation fréquentielle

La figure II.3 représente les fréquences rayonnées par l'antenne patch soumise à un champ magnétique statique appliqué au ferrite doux.

Il apparaît une séparation entre les fréquences rayonnées par les deux ondes à polarisation circulaire, l'une liée à  $\mu_{r+}$ , l'autre liée à  $\mu_{r-}$ , et ce dès les champs faibles.

#### III.4.4 Discussion

##### III.4.4.1 Cas d'un champ magnétique appliqué variable

La principale conséquence de la séparation fréquentielle dans les antennes à ferrite est l'accordabilité en fréquence. En effet, si l'on peut disposer d'un champ magnétique appliqué variable, l'antenne rayonne ainsi deux fréquences très séparées sur une gamme continue. Ce comportement a déjà été étudié pour des antennes massives par Christian Melon [4]. Des mesures ont également été réalisées par J.B. Yim [5] sur une antenne à ferrite et à patch circulaire (contrairement à notre cas, où le patch est carré) placée dans un électroaimant. Cette antenne est constituée d'un plan

de masse métallique sur lequel repose une pastille de grenat d'Yttrium ; cette pastille est recouverte d'une fine plaque de laiton faisant office de patch. Les dimensions de l'ensemble ainsi que les propriétés du ferrite apparaissent dans le tableau II.4.

<b>Dimensions de l'antenne</b>	<b>Propriétés du ferrite utilisé (Y 209)</b>
Diamètre du patch en laiton : 25 mm	Permittivité relative : 14,2
Epaisseur de ferrite : 3 mm	Aimantation à saturation : 0,09 T
Dimension du plan de masse : 150 mm par 150 mm	

Tableau II. 4 : propriétés de l'antenne caractérisée par J.B. Yim

Le comportement hyperfréquence de cette antenne est présenté sur la figure II.4.

Sur la bande [0, 15,9] kA/m, en dépit de la nature différente des ferrites utilisés, le comportement obtenu pour l'antenne massive (figure II.4) est comparable à celui prévu par la simulation sur une antenne intégrée (figure II.3). La séparation des fréquences due aux deux polarisations circulaires, l'une gauche, l'autre droite, apparaît dans les deux cas. Notre travail de simulation est donc partiellement validé : en effet, les valeurs des fréquences que nous avons obtenues ne peuvent être considérées comme exactes, puisque nous n'avons pas tenu compte de la couche d'aimant dans la simulation, qui modifierait probablement la valeur des fréquences et les propriétés du rayonnement. Ce travail reste cependant une base sérieuse pour des développements ultérieurs.

#### III.4.4.2 Cas d'un champ magnétostatique appliqué fixe

Il semble actuellement très hypothétique de réaliser un dispositif intégré sur le substrat de l'antenne capable de fournir un champ magnétostatique variable. L'accordabilité en fréquence des antennes à ferrite intégrées semble donc compromise. En revanche, il est tout à fait envisageable de réaliser une antenne intégrée à polarisation circulaire bi-bande (i.e. qui fonctionne à deux fréquences différentes et qui présente les mêmes caractéristiques en rayonnement) : il suffit d'appliquer un champ statique qui agit directement sur les fréquences de travail de l'antenne. Ce champ peut être apporté par une couche d'aimant dont l'axe de facile aimantation est orienté perpendiculairement à

sa surface et dont l'effet magnétique et les dimensions peuvent être évalués théoriquement (annexe III) : la réponse fréquentielle est donc théoriquement prévisible.

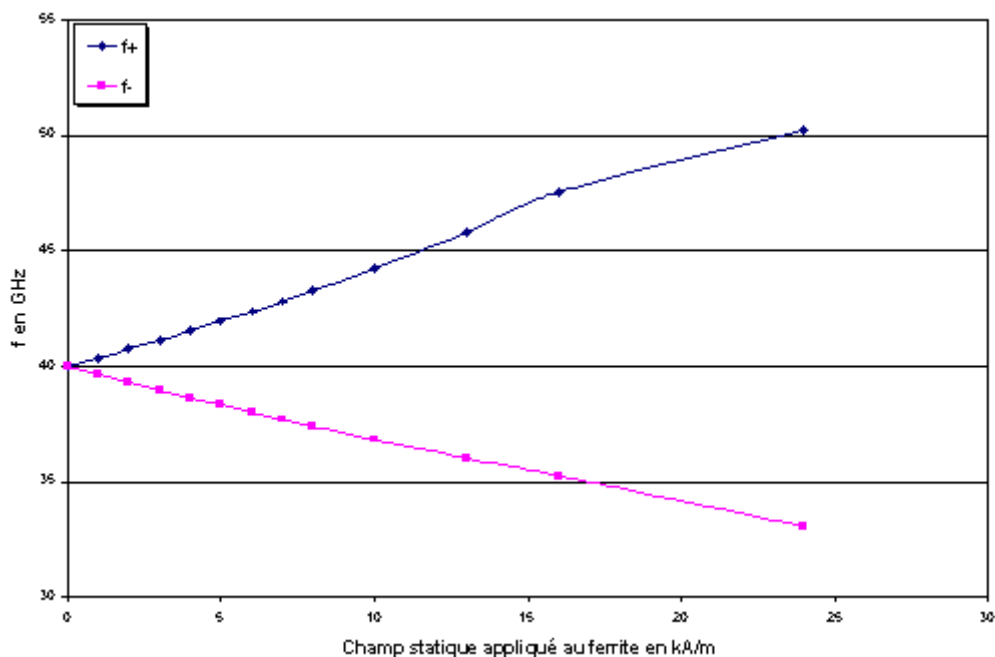


Figure II. 3 : Séparation des fréquences émises sous l'action du champ magnétique statique appliqué au ferrite doux

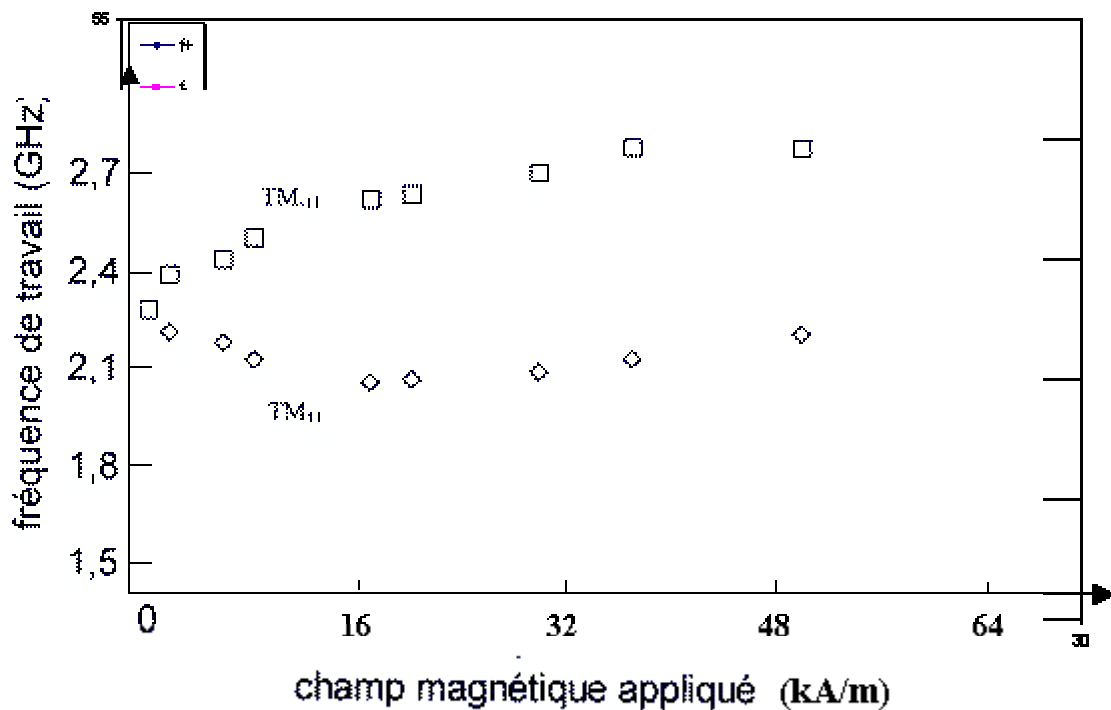


Figure II. 4 : Comportement hyperfréquence de l'antenne réalisée par J.B. Yim

Pour la conception de cette antenne intégrée, il convient donc de réaliser des couches d'aimant convenablement orientées et de les caractériser. Pour ce faire, il est nécessaire de disposer d'un bâti de dépôt et de plusieurs méthodes caractérisation. Nous présentons ces moyens dans la troisième partie.

### **Bibliographie de la deuxième partie**

[1] : WANE E., *Etude, réalisation et caractérisation de couches de ferrites destinées à des dispositifs intégrés micro-ondes non réciproques*, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, n° 30.2000.

[2] : VERITE M., *Etude de dépôts de ferrite pour dispositifs intégrés micro-ondes non réciproques*, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, n° 50.2002.

[3] : BRINEY E., *Contribution à l'intégration d'un circulateur HF : caractérisations magnétiques de couches de ferrite*, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, juillet 2000, n° 42.2002.

[4] : MELON C., *Contribution à la modélisation des ferrites par la méthode des différences finies en régime transitoire : applications à l'étude des dispositifs micro-ondes à ferrite*, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, n° 14.1996.

[5] : YIM J.B., *Etude de la faisabilité d'une structure multicouche pour application aux antennes à polarisation circulaire*, Stage de D.E.A. d'Electronique des hautes fréquences et optoélectronique, IRCOM, juillet 1999.

[6] : BERTHOU-PICHAVANT Karine, *Contribution à la modélisation des ferrites non saturés en hyperfréquences*, Thèse de doctorat n°440, Université de Bretagne Occidentale, 1996.

[7] : IGARASHI et NAITO, *Parallel component  $\mu_z$  of partially magnetized microwave ferrites* ; IEEE MTT, vol 29, n°6, juin 1981.

Troisième partie : dispositif expérimental de dépôt  
et moyens de caractérisations des couches



Nous allons dans cette partie présenter le matériel nécessaire à l'élaboration et à la caractérisation de couches minces d'aimants. Nous verrons tout d'abord les différents éléments constitutifs du dispositif expérimental de dépôt puis les différents moyens de caractérisation des couches réalisées.

# I Dispositif expérimental de dépôt

Le dispositif expérimental est constitué :

- d'une enceinte à vide et de ses groupes de pompage,
- d'un porte-substrats couplé à un dispositif de chauffage,
- d'une cathode magnétron,
- d'un générateur radiofréquence associé à un adaptateur d'impédance,
- d'un dispositif permettant l'introduction du gaz.

La figure III.1 représente ces différents éléments. Ils seront décrits en détail par la suite.

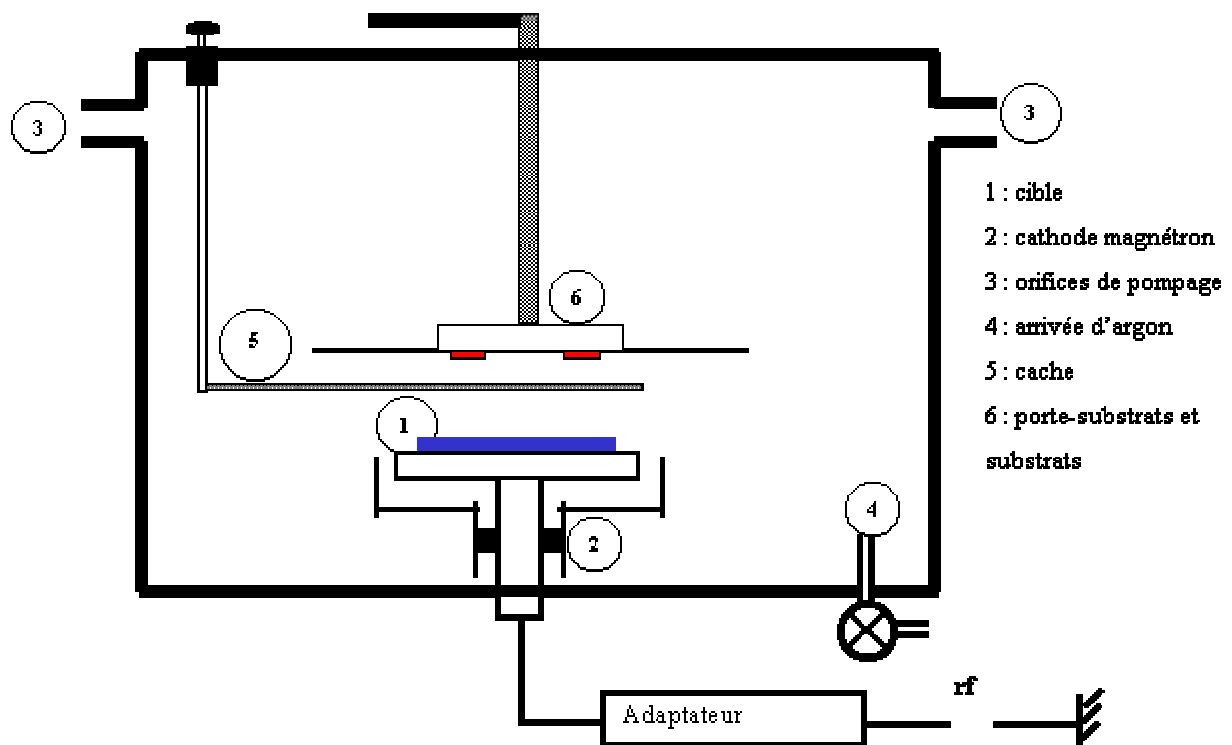


Figure III. 1 : Dispositif expérimental de dépôt

## I.1 Enceinte à vide et groupes de pompage

L'enceinte est constituée d'un cylindre en acier inoxydable fermé à ses extrémités. Le couvercle supérieur est amovible, ce qui permet d'accéder à l'intérieur de l'enceinte. La hauteur du dispositif vaut 77 cm et le diamètre intérieur 57 cm. Plusieurs hublots permettent d'observer les

échantillons lors des dépôts et des passages étanches existent pour raccorder les appareils de mesures et les dispositifs de refroidissement.

Le vide dans l'enceinte est généré par deux groupes de pompage indépendants. Le premier est composé d'une pompe à palettes ALCATEL de type 2033 de débit  $35 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  et d'une pompe à diffusion d'huile ALCATEL Crystal 200 de débit  $4320 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ . Le second groupe sert essentiellement d'auxiliaire au premier. Il est constitué d'une pompe primaire à palettes ACATEL 2020 de débit  $20 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$  associée à une pompe à diffusion d'huile ALCATEL 160 de débit  $2160 \text{ m}^3 \cdot \text{h}^{-1}$ . L'ensemble des pompes permet d'atteindre un vide de  $5 \cdot 10^{-5} \text{ Pa}$  en une quinzaine d'heures.

## I.2 Porte-substrats et dispositif de chauffage (n°6 sur la figure III.1)

Le porte-substrats, constitué de duralumin, comporte deux emplacements dans lesquels prennent place des substrats de différentes dimensions (8 mm par 12 mm ou 5 mm par 5 mm). A l'arrière de cet ensemble se trouve un dispositif chauffe-substrats. Il comporte un élément chauffant THERMOCOAX SEI 20/50 et son support. L'ensemble est refroidi grâce à un circuit d'eau. Cet élément chauffant permet d'atteindre des températures voisines de  $950^\circ\text{C}$  au niveau du porte-substrats.

## I.3 Cathode magnétron et cible de pulvérisation (n<sup>os</sup> 1 et 2 sur la figure III.1)

La cathode magnétron a été spécialement conçue par la société MECA 2000 pour la pulvérisation de matériaux magnétiques : il s'agit du modèle 320 MO. L'aimant central du magnétron est ici remplacé par une pièce en acier doux, ce qui affaiblit le champ magnétique au niveau de la cible. Cette modification rend cette structure favorable aux dépôts magnétiques (figure III.2 (a)).

La cible de pulvérisation, quelle que soit la nature du matériau à pulvériser, doit avoir des dimensions adaptables à la cathode magnétron. En l'occurrence, elle est constituée d'un cylindre de hauteur 3,25 mm et de diamètre 5 cm. Une vue en coupe de la cathode est donnée sur la figure III.2 (b).

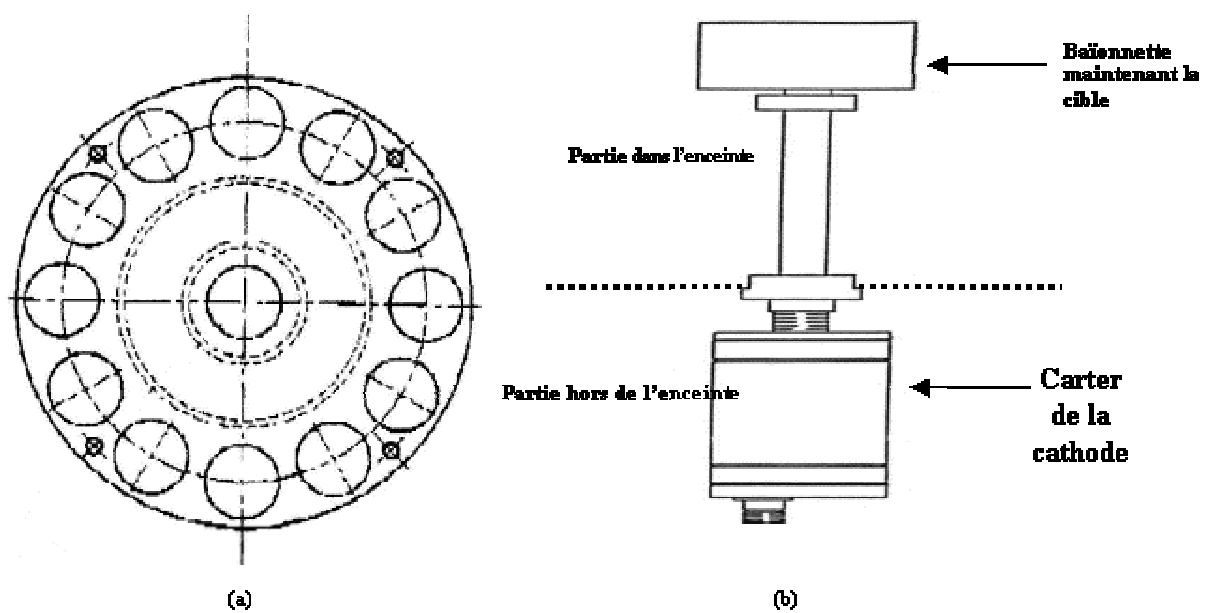


Figure III. 2 : (a) Position des aimants (cercles en traits pleins) et de la pièce en acier doux (au centre) dans la cathode MECA 2000 320 MO ; (b) vue en coupe de la cathode

#### I.4 Générateur radiofréquence et adaptateur d'impédance

Pour alimenter la cathode magnétron, nous avons choisi le générateur radiofréquence RFX-600 d'ADVANCED ENERGY. Dans ce modèle, un cristal piézoélectrique oscille à la fréquence de 13,56 MHz. Ce type de générateurs est particulièrement bien adapté aux matériaux à faible conductivité électrique : une cible non conductrice se charge ainsi de façon moindre, ce qui évite une accumulation de charges néfastes pour le plasma.

L'adaptateur d'impédance (modèle ATX 600 d'ADVANCED ENERGY) est constitué d'un jeu de capacités variables (notées  $C_v$  sur la figure III.3) et d'une capacité fixe (notée  $C$  sur la figure III.3) ainsi que d'inductances (notées  $L$  figure III.3). Il a pour rôle la protection du générateur. Il permet en effet d'empêcher le reflux de l'énergie électromagnétique, de sorte que la puissance reçue par le générateur est quasi-nulle.

#### I.5 Dispositif d'introduction du gaz et de mesure de pression

Le débit d'argon introduit dans l'enceinte est mesuré par un débitmètre MKS 1259 couvrant la gamme 0-200 sccm ( $1 \text{ sccm} = 1,66 \cdot 10^{-3} \text{ Pa} \cdot \text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}$ ). La lecture et la commande de débit se font sur un appareil 4 canaux MKS 247 B. La mesure de la pression se fait grâce à trois jauges différentes : sous vide primaire, c'est une jauge Pirani qui donne la valeur de cette pression ; en vide secondaire, une jauge Penning prend le relais de la précédente ; enfin, pour mesurer la pression d'argon dans

l'enceinte lors du dépôt, on utilise une jauge capacitive MKS BARATRON 220 B, dont la gamme est  $10^{-2}$ -100 Pascals, connectée à un afficheur MKS LAF 240.

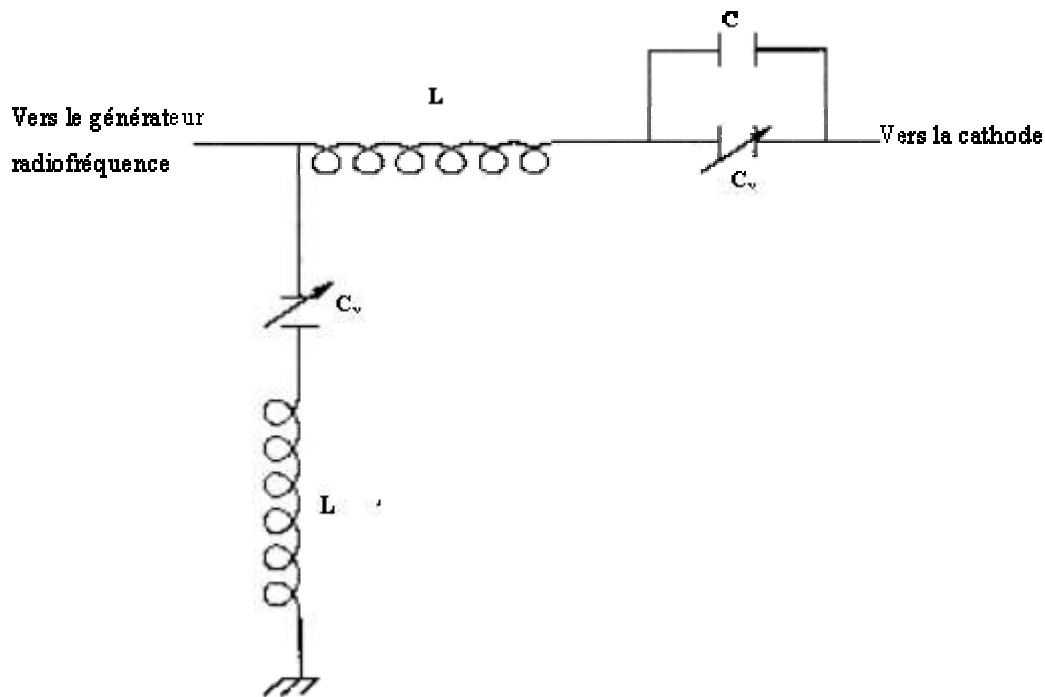


Figure III. 3 : schéma de principe de l'adaptateur d'impédance

## I.6 Préparation et déroulement des dépôts

### I.6.1 Préparation des substrats

Les substrats se présentent sous la forme de rectangles de 8 mm par 12 mm ou de carrés de côté 5 mm. Ils sont nettoyés au préalable ex situ au moyen de deux solvants : d'abord de l'acétone à 99% puis de l'éthanol absolu dénaturé. Ces deux traitements permettent d'éliminer poussières et contaminants divers.

### I.6.2 Chauffage des substrats

L'utilisation de l'élément chauffant permet d'atteindre la température de dépôt souhaitée.

### I.6.3 Phase de dépôt

Avant la phase de dépôt proprement dite, il faut amorcer une décharge dans l'argon, préalablement introduit dans l'enceinte à vide grâce au débitmètre MKS 1259. Une pression minimale de 4 Pa est nécessaire pour créer un plasma ; on diminue ensuite le flux gazeux afin d'atteindre la pression de dépôt souhaitée. Les substrats sont alors protégés par le cache (numéro 5

sur la figure III.1). Ce n'est qu'ensuite que le cache est retiré : la décharge existe alors entre la cathode et le porte-substrats et le dépôt commence à cet instant-là.

## II Moyens de caractérisation des couches

Une fois les dépôts réalisés, il est indispensable de les caractériser afin de connaître certaines propriétés : leur épaisseur, leur structure, leur morphologie, leur composition et leurs propriétés magnétiques.

### II.1 Mesure de l'épaisseur : utilisation du profilomètre

Le profilomètre utilisé est un DEKTAK IIA. Il permet de mesurer des épaisseurs jusqu'à un minimum de quelques dizaines de nm. Dans le cas où les substrats ne présentent pas un bon état de surface, les mesures sont effectuées sur un échantillon témoin en verre, placé au voisinage des substrats de Silicium. Le principe de fonctionnement de l'appareil est le suivant : un stylet à pointe diamantée très sensible balaie la surface de l'échantillon ; les irrégularités de la surface du dépôt analysé se traduisent immédiatement par une variation dans la position verticale de ce stylet, qui est alors transformée en tension électrique grâce à un transformateur différentiel ; un convertisseur analogique-numérique, permettant de stocker les résultats dans la mémoire de l'appareil, assure alors le lien avec le logiciel. On obtient alors sur l'écran de contrôle la variation verticale de la position du stylet en fonction de la distance qu'il a parcourue sur l'échantillon.

En pratique, il suffit de créer, lors de la phase de dépôt, une « marche » entre une zone recouverte de dépôt et une autre non recouverte pour connaître son épaisseur (figure III.4). Cette marche est obtenue grâce à un cache placé sur une extrémité du substrat avant dépôt.

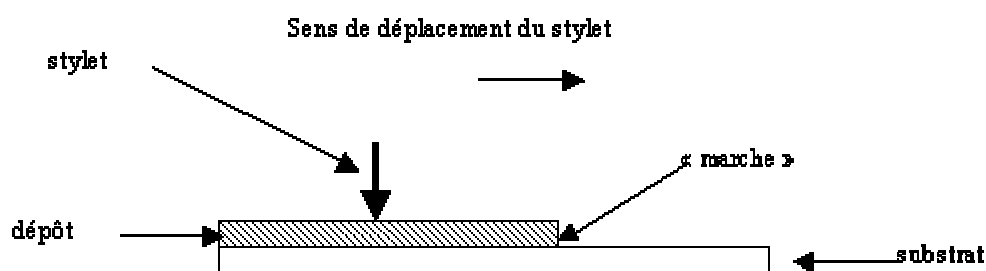


Figure III. 4 : principe de mesure d'une épaisseur

## II.2 Analyse structurale des dépôts : utilisation d'un diffractomètre

La structure cristalline des dépôts est obtenue par diffraction des rayons X (XRD). L'appareil utilisé, de conception Bragg-Brentano  $\theta$ - $2\theta$ , est un SIEMENS D5000. Son schéma de principe est représenté sur la figure III.5. La source de rayons X est, dans ce dispositif, fixe, tandis que l'échantillon à analyser et le détecteur (D) effectuent une rotation progressive autour d'un axe passant par le centre de l'échantillon. L'appellation  $\theta$ - $2\theta$  signifie que, lorsque l'échantillon effectue une rotation sur lui-même d'un angle  $\theta$  pendant un temps  $t$ , alors le détecteur tourne d'un angle  $2\theta$  pendant  $t$ . Les plans qui diffractent sont alors repérés par l'angle  $2\theta$ .

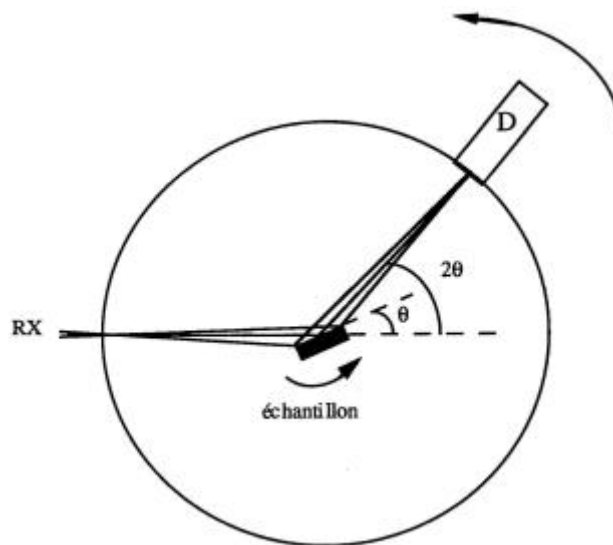


Figure III. 5 : principe d'un montage Bragg-Brentano

Dans un dispositif de ce type, seuls les plans réticulaires parallèles à la surface de l'échantillon diffractent. Les différentes réflexions sont régies par la loi de Bragg :

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

où  $d_{hkl}$  est la distance inter réticulaire, c'est-à-dire la distance séparant les plans parallèles d'une même famille repérée par les indices de Miller  $h$ ,  $k$  et  $l$ ,

$\lambda$  est la longueur d'onde du faisceau X incident (sur le D5000,  $\lambda = 1,5406 \text{ \AA}$ , correspondant à la raie  $K_{\alpha}$  du cuivre),

$\theta$  est l'angle de diffraction,

et  $n$  l'ordre de la réflexion dans la famille de plans parallèles.



Une fois l'analyse effectuée, on obtient un diagramme de diffraction, représentant le nombre de coups vus par le détecteur en fonction de l'angle de détection  $2\theta$ . Les pics mis en évidence doivent alors être comparés aux tables internationales du *Joint Committee on Powder Diffraction Standards* (JCPDS), qui recensent toutes les réponses aux rayons X des structures connues. On peut alors, par comparaison avec ces fiches, établir la structure et l'orientation des couches réalisées. Nos études ont été réalisées sur la plage  $2\theta = 20-90^\circ$  : elle est suffisante pour l'identification des principaux pics. Une extension de cette gamme est possible si besoin est.

Sur la figure III.6 est donnée à titre d'exemple, la fiche JCPDS du Samarium. Elle est repérée par son numéro, ici 51-1170. On peut y trouver l'intensité des pics de diffraction (I) des différents plans repérés par leurs indices de Miller (h, k et l). A chaque ligne correspond un angle de diffraction  $2\theta$  ou, comme sur l'exemple donné, une distance inter réticulaire propre à la famille de plans considérée (notée d).

Des renseignements complémentaires y apparaissent : le groupe d'espace auquel appartient le matériau (ici  $P6_3/mmc$ ), la nature de la maille élémentaire (lattice), les différents paramètres de maille (a et c), le volume du motif élémentaire ainsi que le nombre d'atomes (Z) qu'il contient.

La fiabilité de la fiche (quality) et les références bibliographiques qui ont permis d'obtenir ces données sont également des informations très importantes.

Pattern : 51-1170		Radiation = 1.540598		Quality : High	
Sm		<b>d (Å)</b>	<b>h</b>	<b>k</b>	<b>l</b>
Samarium		5.52831	100	0	0
		3.18844	68	1	0
		3.06432	92	1	0
		2.76210	15	1	0
		2.41010	5	1	0
		2.08693	9	1	0
		1.84069	23	1	1
		1.81569	39	1	0
		1.74648	6	1	1
		1.59387	17	2	0
		1.53186	6	2	0
		1.41420	85	1	0
		1.38036	4	0	0
		1.30123	6	1	1
		1.17717	2	2	1
		1.12135	2	2	0
		1.05810	4	3	0
		1.04396	1	3	0
		1.00828	5	2	1
<b>Lattice :</b> Hexagonal <b>S.G. :</b> P63/mmc (194) <b>a =</b> 3.68200 <b>c =</b> 11.04300 <b>Z =</b> 4		<b>Mol. weight =</b> 150.40 <b>Volume [CD] =</b> 129.65 <b>Dx =</b> 7.705			
SAMPLE SOURCE OR LOCALITY : Sample from Pfaltz Bauer. COLOR : Gray DATA COLLECTION FLAG: Ambient.					
CAS: 7440-19-9 *ICDD Grant-in-Aid. (1999) primary reference (Muller, 1999) Mayo, W., H.M Analytical Services, Inc., Allentown, NJ, USA. *J. Less-Common Met., volume 113, page 0, (1965) unit cell data : Shi, N., Fort, D. (Muller, 1999)					
<b>Radiation :</b> CuKα1 <b>Lambda :</b> 1.54060 <b>SS/FOM :</b> F19= 47(0.0098,41)		<b>Filter :</b> Beta <b>d-sp :</b> Diffractometer			

Figure III. 6 : fiche JCPDS du Samarium

En effet, ils permettent d'évaluer si le matériau est bien connu ou non et de connaître ses conditions physico-chimiques d'élaboration.

## II.3 Morphologie et composition des couches : utilisation d'un microscope électronique à balayage (M.E.B.) et d'un système d'analyse de composition par dispersion en énergie des rayons X (E.D.X.)

### II.3.1 Les différents types d'interaction électron-matière [1]

Lorsqu'un électron suffisamment énergétique rencontre de la matière, plusieurs types de rayonnements peuvent être induits :

- les électrons rétrodiffusés, qui proviennent d'une collision élastique avec l'échantillon, et qui sont renvoyés vers la source ;
- les électrons Auger, issus d'un processus « d'autoionisation » des atomes excités de l'échantillon : l'atome, dans un état excité après irradiation par le faisceau, se désexcite en émettant un rayonnement X dont l'énergie est utilisée par un autre électron (dit Auger) d'une autre couche pour s'éjecter ;
- les électrons transmis, qui traversent l'échantillon de part en part ;
- les électrons secondaires, qui proviennent des couches situées près de la surface;
- la cathodoluminescence, qui est l'émission de photons (de l'infrarouge à l'ultraviolet) dans certains matériaux ;
- enfin, le rayonnement X, qui provient de la désexcitation de certains atomes.

Chaque type de rayonnement est exploitable pour connaître la nature d'un matériau. Nous ne nous intéresserons qu'à l'émission des rayons X et à l'émission d'électrons secondaires et rétro diffusés.

### II.3.2 Principe général d'un microscope électronique à balayage

Dans le cas de l'imagerie par M.E.B., ce sont les électrons secondaires et les électrons rétro diffusés qui sont exploités. L'observation de la surface des couches se fait grâce à un microscope électronique XL 20.. Un schéma de principe de cet appareil d'analyse est présenté sur la figure III.7. Les électrons sont créés dans le canon (1) au potentiel  $-V_0$ , accélérés par une anode mise à la masse (2), focalisés par un condenseur (3), guidés latéralement sur le matériau à étudier par un système de déflexion/balayage (4), concentrés par un objectif (5) à la surface de l'échantillon qui est lui-même placé sur un goniomètre (6).

Différents détecteurs sont ajoutés à l'ensemble afin de permettre, avec une correspondance point par point de l'écran et de l'objet, la formation de l'image : un détecteur d'électrons à scintillation (7), d'électrons rétrodiffusés à semi-conducteur (8), d'électrons transmis (10). La mesure du courant reçu par l'échantillon est faite par un micro-ampèremètre (10). Enfin, l'ensemble des données collectées est exploité par un logiciel de visualisation d'images (12).

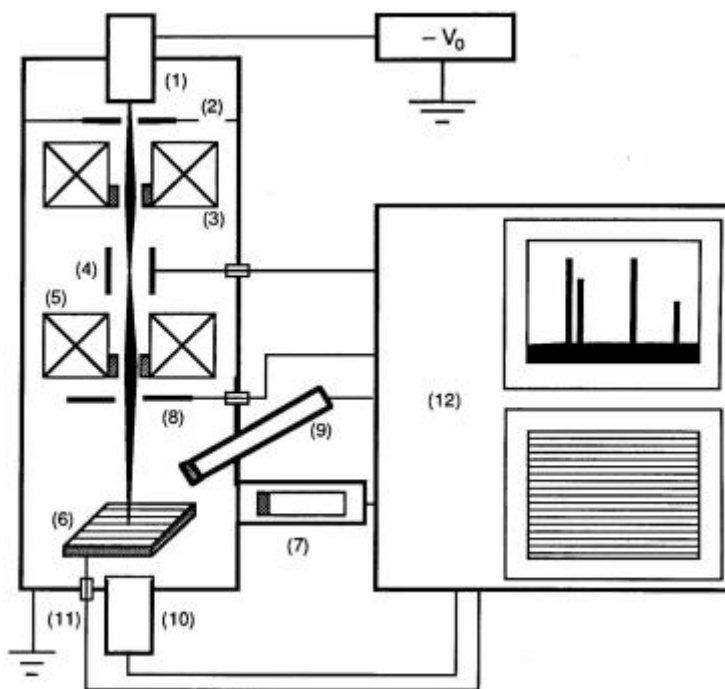


Figure III. 7 : Principe d'un M.E.B.

### II.3.3 L'analyse par dispersion des rayons X

Dans ce cas, ce sont les photons X issus des transitions K et L des atomes issus de l'échantillon qui sont exploités. On peut en tirer une analyse quantitative des éléments présents dans une poire d'interaction faisceau d'électrons-échantillon dont les dimensions sont de l'ordre du micromètre environ. Le résultat se présente sous la forme d'un spectre où l'axe des abscisses représente l'énergie et celui des ordonnées le nombre d'impulsions enregistrées. Un exemple, pour  $\text{SmCo}_5$ , est donné sur la figure III.8. Sous le spectre, la troisième colonne (encadrée), notée At %, permet de connaître les rapports atomiques des différents atomes dans la poire d'interaction.

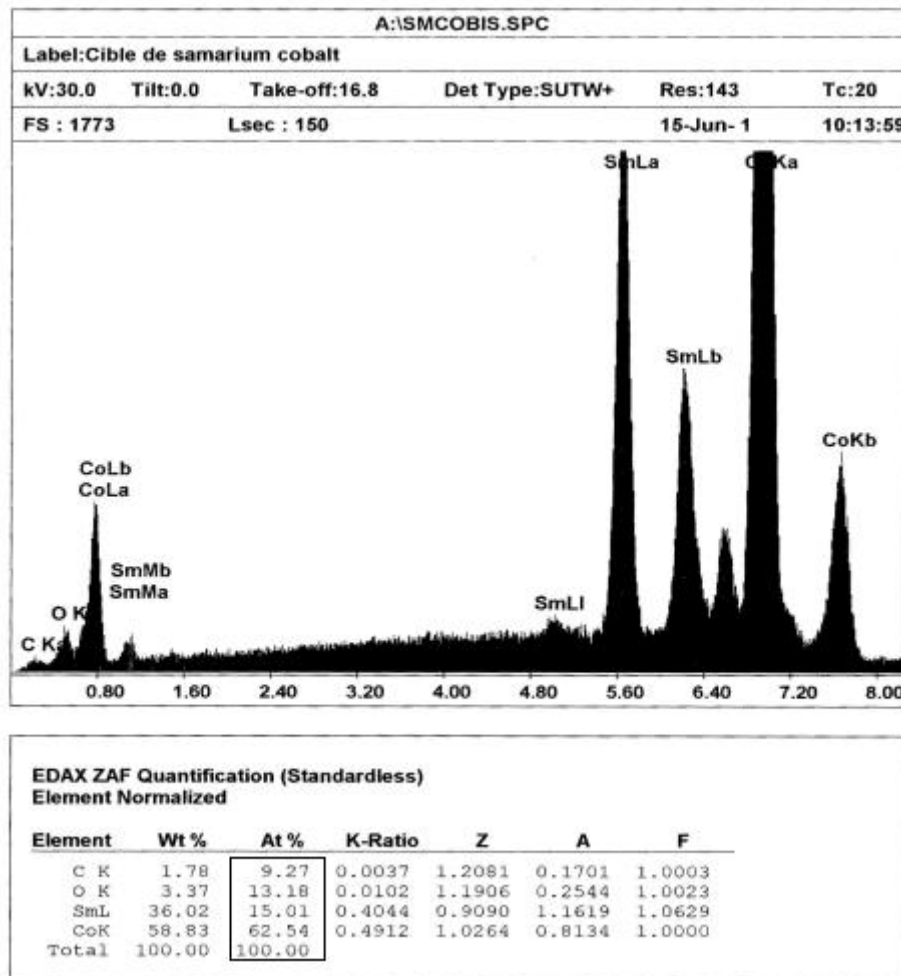


Figure III. 8 : exemple de spectre EDX

## II.4 Mesure des propriétés magnétiques : utilisation d'un hystérésismètre

L'hystérésismètre utilisé est un M2100 commercialisé, sous licence CNRS, par la société *Systèmes Informatiques Industriels et Scientifiques (S2IS)*. Il permet de connaître les propriétés magnétiques d'une couche magnétique perpendiculairement ou parallèlement à sa surface : aimantation à saturation  $M_S$ , aimantation rémanente  $M_R$ , champ coercitif  $H_c$  et rectangularité RR du cycle d'hystérésis.

L'échantillon à analyser est soumis à un champ magnétique alternatif (de fréquence 50 Hz) dont la valeur peut atteindre 1600 kA/m. Ce champ induit dans un bobinage de référence une force électromotrice  $e_1$  qui sert de signal de référence. Cette f.é.m. se trouve modifiée par la présence de l'échantillon magnétique étudié : sa valeur devient alors  $e_2$  ; la f.e.m.  $e_1$  est mesurée aux bornes de la

résistance shunt (voir figure III.9). C'est le déphasage de  $e_2$  par rapport à  $e_1$  qui est ensuite traité par l'échantillonneur-bloqueur (e/b) puis par le convertisseur analogique numérique (A/D). Ces données numérisées sont alors traitées par une unité de calcul (UC) : le cycle d'hystérésis est alors tracé sur le moniteur.

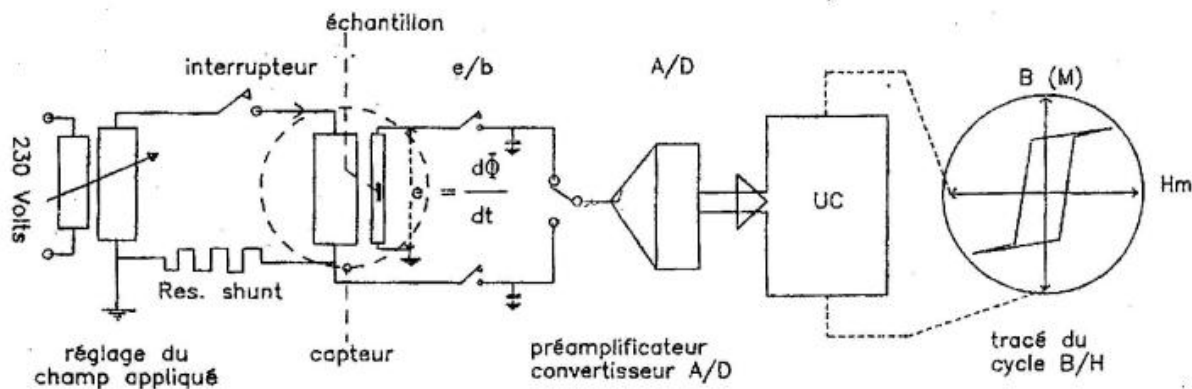


Figure III. 9 : Principe de fonctionnement d'un hystérésimètre

Un exemple de cycle d'hystérésis est donné sur la figure III.10, dans le cas d'un hexaferriite de baryum. La fenêtre centrale concerne le cycle proprement dit et le cadre supérieur gauche résume les propriétés de la couche étudiée. Dans la partie droite les résultats sont donnés en unités CGS (sur l'exemple donné). Le carré inférieur droit représente la fenêtre « signal », c'est-à-dire la réponse du matériau (deux pics noirs) au champ sinusoïdal appliqué.

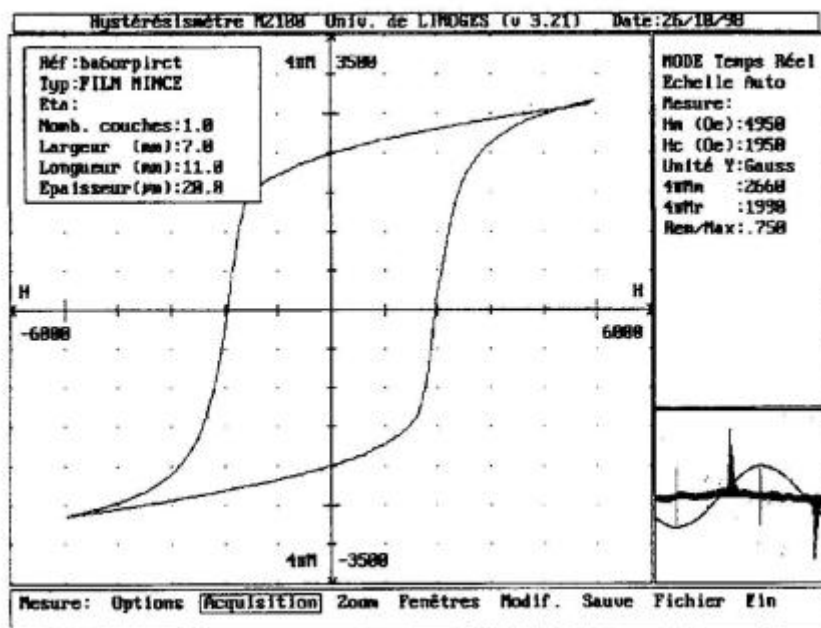


Figure III. 10 : Exemple de cycle d'hystérésis [2]

Nous avons donc décrit, dans cette partie, le dispositif de dépôt utilisé ainsi que les moyens nécessaires pour caractériser les couches réalisées. Dans la quatrième partie, nous allons présenter les résultats obtenus avec ces moyens sur des couches de Samarium-Cobalt.

### **Bibliographie de la troisième partie**

[1] : EBERHART J.-P., *Analyse structurale et chimique des matériaux*, Dunod, 1997.

[2] : VERITE M., *Etude de dépôts de ferrite pour dispositifs intégrés micro-ondes non réciproques*, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, n° 50.2002, Université de Limoges, 2002.

Quatrième partie : simulation et conception d'un  
dispositif de dépôt sous champ magnétique ; étude  
des couches de Samarium-Cobalt



Dans cette partie, nous allons présenter les propriétés des couches de Samarium-Cobalt obtenues par pulvérisation radiofréquence magnétron. Notre démarche expérimentale est présentée dans sa globalité sous forme chronologique, de manière à mettre en exergue les principaux problèmes rencontrés, ainsi que, si elles existent, les solutions proposées pour les résoudre. Les paramètres expérimentaux étudiés sont la nature et la température des substrats, la pression d'Argon dans l'enceinte, la vitesse de dépôt, la distance cible-substrat, le recuit ou non des couches et l'application ou non d'une induction magnétique pendant la phase de dépôt. Nous avons particulièrement étudié l'épaisseur des couches, leur structure, leur composition et leurs propriétés magnétiques.

# I Principales caractéristiques de la cible de pulvérisation de Samarium-Cobalt

Compte tenu de l'expérience de l'équipe C2M en matière de dépôts d'aimants (difficulté pour obtenir des couches de Néodyme-Fer-Bore par évaporation au canon à électrons [1]), notre choix s'est porté sur un matériau constitué de deux éléments différents seulement. La pulvérisation cathodique magnétron radiofréquence fait intervenir des processus de collisions atomiques (voir annexe II), ce qui signifie que les atomes de la cible arrivent indépendamment sur les substrats. Les matériaux à faible nombre d'atomes se recombinaient théoriquement plus aisément sur les substrats pour cristalliser d'une manière proche de la cible [2]. Ce phénomène explique le choix de  $\text{SmCo}_5$  comme matériau cible plutôt que d'autres types d'aimants tels que les hexaferrites et les Néodyme-Fer-Bore. En outre, ses excellentes propriétés magnétiques (voir paragraphe III.1 de la première partie) comme sa bonne résistance à l'oxydation et sa tenue à température élevée plaident en sa faveur. La cible utilisée est une cible frittée de composition nominale  $\text{SmCo}_5$  fabriquée par la société CERAC<sup>TM</sup>. Elle se présente sous la forme d'un disque de diamètre 5 cm environ et d'épaisseur 3,25 mm. Les résultats qui suivent sont le fruit de l'analyse préliminaire de cette cible.

## I.1 Diagramme de diffraction

La figure IV.1 représente le diagramme de diffraction de la cible de  $\text{SmCo}_5$  obtenu au diffractomètre D5000. Il montre que notre cible est polycristalline et globalement isotrope. En raison de la nature du diffractomètre (Bragg-Bentano, voir paragraphe II.2 de la troisième partie), seuls les plans parallèles à la surface de l'échantillon apparaissent sur la figure IV.1.

C'est le cas notamment pour les plans (001) et (002) de  $\text{SmCo}_5$  (en gras sur le diagramme). Une phase parasite, peut-être  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ , est également présente : le pic apparaissant à  $44,4^\circ$  correspond à une réflexion intense (002) de cette phase.

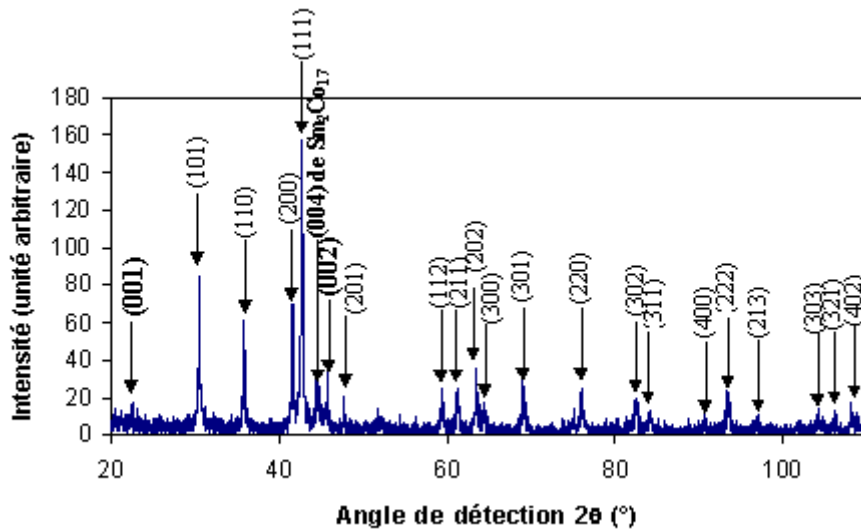


Figure IV. 1 : Diagramme de diffraction  $\theta - 2\theta$  de la cible de  $\text{SmCo}_5$

Ce diagramme servira dans la suite de référence pour l'analyse structurale des dépôts réalisés.

## I.2 Propriétés magnétiques

Comme nous l'avons vu dans la troisième partie, nous disposons au sein de l'équipe C2M d'un hystérésismètre équipé d'une cellule de mesure adaptée aux couches. De ce fait, les dimensions de la cible de pulvérisation empêchent son analyse magnétique. Il est de plus inenvisageable d'en prélever un échantillon sans risquer de la briser. Pour cette raison, les références en matière de propriétés magnétiques seront celles de la littérature. On peut penser que l'aimantation d'un matériau isotrope est égale à la moitié de l'aimantation du même matériau orienté [3]. Le tableau IV.1 rappelle les valeurs théoriques d'aimantation à saturation et de champ coercitif courantes pour des aimants orientés  $\text{SmCo}_5$ ,  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$  et  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ . Pour  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$ , nous ne donnons qu'un ordre de grandeur car cet aimant n'est pas utilisé dans l'industrie et il est donc très difficile d'en connaître les propriétés exactes. Nous retiendrons, pour notre cible de  $\text{SmCo}_5$  une aimantation de 0,45 T.

	SmCo <sub>5</sub>	Sm <sub>2</sub> Co <sub>7</sub>	Sm <sub>2</sub> Co <sub>17</sub>
Champ coercitif courant (kA/m)	2000	de 1000 à 2000	1000
Aimantation à saturation (T)	0,9	voisine de 1	1,15

Tableau IV. 1 : Propriétés magnétiques des aimants orientés classiques

### I.3 Analyses de composition

Les analyses EDX ont été réalisées en trois endroits différents de la cible de pulvérisation, en appliquant une tension d'accélération de 20 kV : les rapports Co/Sm obtenus sont 4,60, 4,93 et 4,97.

Nous obtenons, aux erreurs expérimentales près (10 %), un rapport molaire voisin de 5, ce qui est en accord avec la formule générale de l'alliage SmCo<sub>5</sub>. Cette analyse de composition, en association avec l'analyse structurale montre que notre cible est dans son ensemble très pure, en dépit de la présence d'une phase parasite.

Nous allons maintenant présenter les propriétés des dépôts obtenus à l'aide du dispositif expérimental décrit dans la troisième partie puis nous montrerons la nécessité de modifier ce dispositif.

## II Dépôts préliminaires

### II.1 Mise en œuvre du dispositif expérimental initial

La mise au point du dispositif de dépôt décrit sur la figure III.1 de la troisième partie a consisté tout d'abord à :

- adapter à l'enceinte existante la cathode magnétron décrite dans le paragraphe I.3 de la troisième partie, cathode spécifique pour les dépôts d'aimants,
- adapter sur cette cathode un générateur radiofréquence et un adaptateur d'impédance associé (paragraphe I.4 de la troisième partie),
- associer à l'élément chauffant un générateur de courant (40 V, 90 A) permettant d'atteindre des températures de 800°C au niveau du porte-substrats.

Ce travail a entièrement été réalisé avec les moyens de l'équipe C2M.

### II.2 Résultats cristallographiques préliminaires

Compte tenu des informations partielles que nous avons pu retirer, pour nos préoccupations, de la littérature, nous avons dû réaliser une étude préliminaire afin de définir la gamme de variation des principaux paramètres de dépôt. Les dépôts ont été réalisés sur du Silicium orienté (100). Nous nous sommes tout d'abord attachés à étudier l'influence de la température des substrats et de la pression d'argon dans l'enceinte sur la cristallographie des couches : ces paramètres sont ici étudiés indépendamment l'un de l'autre. La structure est en effet le critère principal pour obtenir un effet magnétique important. La pré-étude qui suit a pour but de déterminer s'il existe une prépondérance de la température par rapport à la pression dans l'action sur la structure cristallographique.

#### II.2.1 Influence de la pression d'Argon

La variation de la pression d'Argon dans l'enceinte de dépôt peut, dans le cas de nombreux métaux, provoquer ou non une cristallisation même à température ambiante [2]. Le but de cette étude préliminaire est ici de cerner l'influence de la pression à 23°C sur la cristallisation des alliages de Samarium-Cobalt. La figure IV.2 présente le résultat cristallographique obtenu pour différentes valeurs de pression. Quelle que soit la pression, seuls apparaissent le pic (100) du substrat à 69° et un défaut à 34 ; ce dernier sera récurrent sur tous les dépôts effectués sur Si(100) et son intensité

augmentera avec la température ; nous n'avons pas pour le moment d'explication à ce défaut. Sur la gamme étudiée, tous les dépôts sont donc amorphes.

Pour étudier l'influence des autres paramètres de dépôt, nous avons choisi de travailler à une pression d'Argon constante de 0,20 Pa qui est une valeur classique en pulvérisation radiofréquence.

## II.2.2 Influence de la température des substrats

La figure IV.3 présente les diagrammes de diffraction des dépôts réalisés à différentes températures.

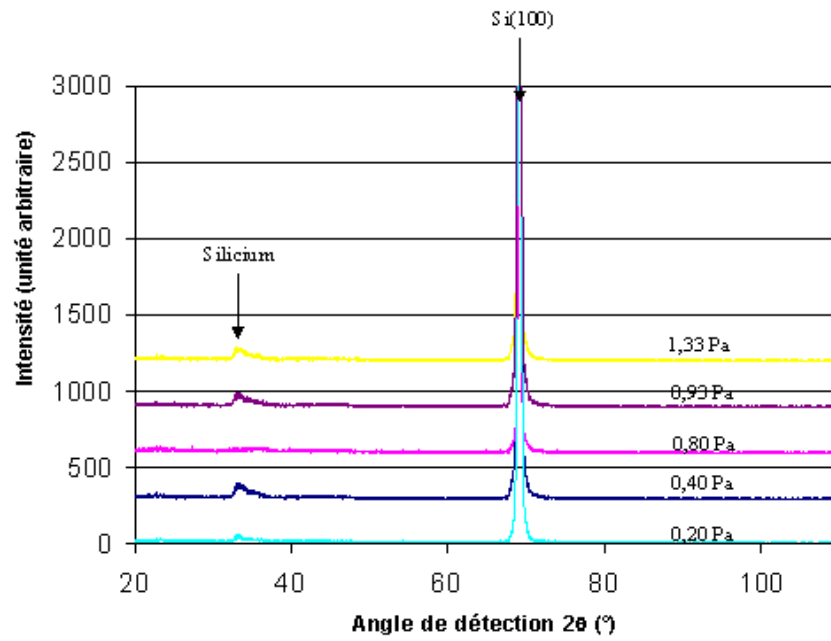


Figure IV. 2 : Influence de la pression d'Argon sur la structure cristallographique des dépôts à  $T = 23^\circ\text{C}$

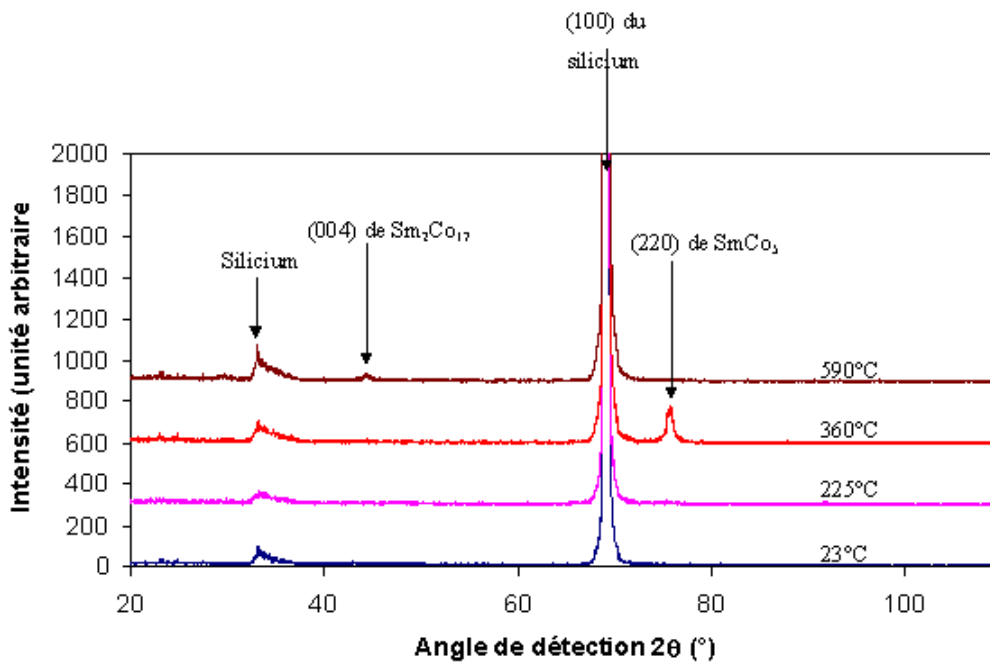


Figure IV. 3 : Résultats cristallographiques des dépôts préliminaires à  $p = 0,20\text{ Pa}$

De la figure IV.3, il ressort que les dépôts sont généralement amorphes hormis à 360°C où apparaît très nettement un pic pouvant être le (220) de  $\text{SmCo}_5$ . Rappelons qu'en raison de la structure intégrée envisagée (paragraphe II de la première partie), l'axe c de facile aimantation des mailles de  $\text{SmCo}_5$  doit être perpendiculaire à la surface des couches afin de reproduire les conditions de non-réciprocité. Cela se traduit dans les dispositifs Bragg-Brentano par la diffraction des pics (00 $\ell$ ). Dans notre cas, l'axe de facile aimantation est donc ici dans le plan de la couche. Cependant, on peut noter une amorce de cristallisation à 590°C qui pourrait, sans information complémentaire, correspondre au pic (004) de  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ . Ce pic ne peut malheureusement pas être considéré comme significatif en raison de la faiblesse de son intensité. Lorsque la température du substrat dépasse 590°C, les dépôts ne sont plus adhérents et il est alors impossible de caractériser leur structure cristallographique.

### II.2.3 Bilan des dépôts préliminaires

Les premiers résultats cristallographiques mettent donc en évidence une influence de la température des substrats et une influence négligeable de la pression d'Argon en tant que paramètre principal c'est-à-dire à température ambiante. La tendance des dépôts à s'orienter dans le plan des couches nous conduit à envisager différents moyens susceptibles de favoriser une orientation (00 $\ell$ ) des couches indispensable pour les applications envisagées. Ces moyens sont essentiellement de deux sortes : d'abord, le choix d'un substrat, dont la symétrie peut favoriser l'épitaxie [4] ; ensuite, l'apport extérieur d'une induction magnétique lors de la phase de dépôt [5]. Dans la suite, nous présentons un dispositif original de dépôt sous champ, simulé et réalisé au sein de l'équipe C2M.



# III Simulation et réalisation d'un dispositif de dépôt sous induction

Afin de favoriser une orientation (00 $\ell$ ), il semble naturel d'appliquer lors du dépôt une induction magnétique dans la direction perpendiculaire à la surface des couches. Ce champ peut être créé à l'aide d'un solénoïde convenablement placé dans l'enceinte.

Le logiciel FLUX 2D 7.50 permet de simuler, par résolution des équations de Maxwell, l'effet d'un tel montage au niveau des substrats. Nous allons d'abord présenter schématiquement l'enceinte modifiée par la mise en place du solénoïde.

## III.1 L'enceinte après modification

L'enceinte est principalement modifiée par l'ajout d'un bobinage autour du porte-substrats, de manière qu'ils aient tous trois même axe de révolution (figure IV.4). La position verticale du porte-substrats est réglable, de sorte que les échantillons peuvent pénétrer plus ou moins profondément au cœur du solénoïde. Le réglage vertical du solénoïde est également indispensable pour minimiser ses effets sur la cathode magnétron.

- Afin de connaître l'effet du bobinage au niveau des substrats, nous effectuons une simulation pour laquelle il est nécessaire de connaître les données suivantes :
- le diamètre des fils (donnée commerciale),
- l'intensité maximale supportée par chacun d'eux (donnée commerciale),
- les dimensions du support de l'enroulement, limitées par la taille de l'enceinte.

On déduit de ces données le nombre de fils que l'on peut juxtaposer sur le support et, en fonction de ce résultat et de l'intensité supportée par les fils, l'induction que l'on peut attendre en fonction du nombre de tours de fils.

Le but de la simulation est donc de déterminer le meilleur compromis entre ces paramètres permettant d'obtenir une bonne direction et une bonne intensité de l'induction au niveau des substrats. Les résultats de la simulation seront :

- la direction de l'induction au voisinage des substrats,

- sa norme,
- la meilleure position verticale du solénoïde et du porte-substrat.

Ces résultats pourront être optimisés avant la conception du dispositif en jouant sur le nombre de tours de fils à effectuer.

### III.2 Utilisation du logiciel de simulation FLUX 2D 7.50

La simulation permet de prévoir, nous l'avons dit, le comportement de l'induction magnétique au niveau des substrats pendant le dépôt ; elle tient notamment compte de l'effet de la cathode magnétron, qui est source d'une autre induction au niveau des substrats.

Flux 2D permet de modéliser, entre autres, des problèmes de magnétostatique et d'électrostatique. Une fois que les données géométriques sont saisies, Flux 2D calcule les grandeurs physiques à partir de la méthode des éléments finis par un maillage plus ou moins serré du domaine étudié. Ce logiciel est conçu et distribué par la société CEDRAT. Nous décrivons dans la suite le cheminement suivi pour cette simulation.

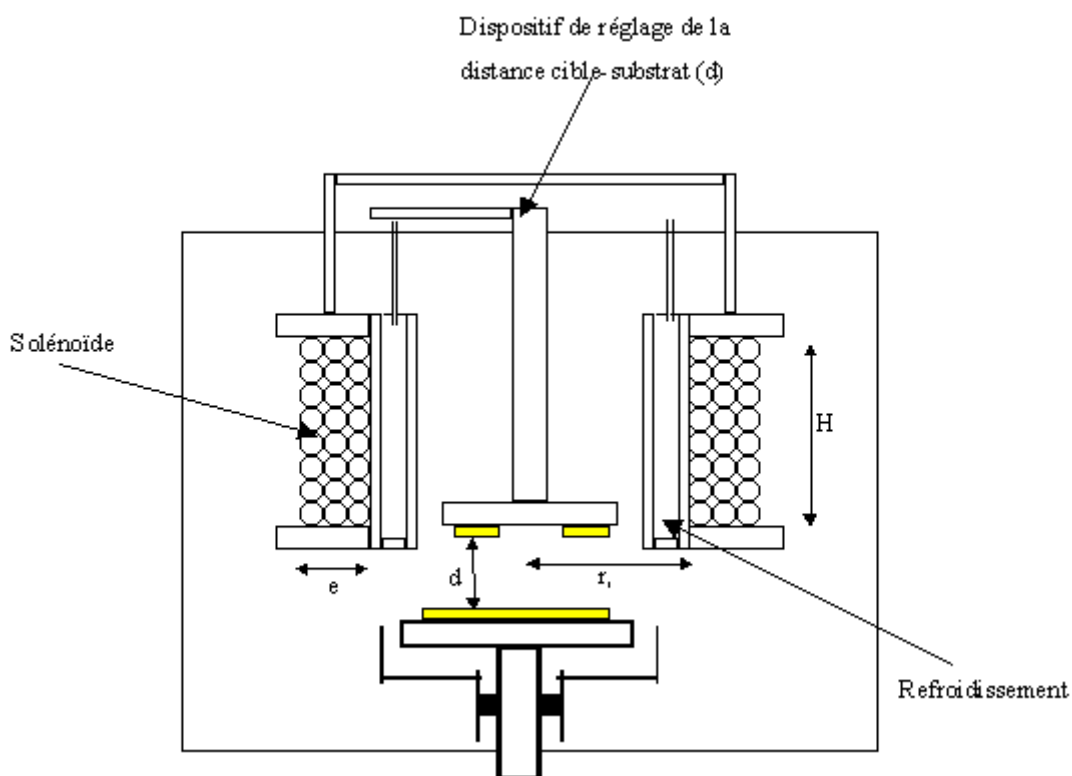


Figure IV. 4 : Vue en coupe du solénoïde dans l'enceinte modifiée

### III.2.1 Paramètres concernant le solénoïde

Le tableau IV.2 rassemble les différents paramètres retenus pour la simulation. Le choix des fils s'est fait sur leur facilité d'enroulement ; les dimensions du solénoïde sont essentiellement limitées par le volume de l'enceinte de dépôt et le choix du support de l'enroulement.

Section des fils de l'enroulement	0,95 mm <sup>2</sup>
Intensité maximale supportée par les fils	5 A/mm <sup>2</sup> soit 4,75 A par fil
Hauteur du solénoïde (H)	50 fils juxtaposés soit 60 mm
Epaisseur du solénoïde (e)	30 tours de fils soit 36 mm
Rayon interne du solénoïde (r <sub>i</sub> )	44,5 mm

Tableau IV. 2 : Différents paramètres de la simulation relatifs au solénoïde

### III.2.2 Paramètres ne concernant pas le solénoïde

Les autres paramètres indispensables sont essentiellement les dimensions et les positions des éléments de l'enceinte : la cible et la cathode magnétron, composée d'aimants de Samarium-Cobalt et d'un noyau d'acier doux servant à canaliser les lignes de champ (figure III.2 de la troisième partie). Le logiciel Flux 2D permet de prendre en compte les propriétés magnétiques des aimants de la cathode (perméabilité magnétique de SmCo<sub>5</sub> et aimantation à saturation) et du cylindre d'acier doux.

### III.2.3 Résultats de la simulation

Les résultats sont livrés par le logiciel après le processus suivant :

- création de la géométrie du dispositif,
- saisie des propriétés électriques et magnétiques des différents éléments,
- choix du nombre de nœuds du maillage pour les calculs en éléments finis (maillage serré au voisinage des substrats afin d'avoir des résultats précis et réalistes),
- résolution du problème de proche en proche par la méthode des éléments finis.

Le logiciel permet, entre autres, l'évaluation de grandeurs telles que le potentiel vecteur, les directions, sens et normes de l'induction et du champ magnétiques. Toute la simulation est effectuée pour le courant maximal dans la bobine, soit 4,75 A.

Les résultats obtenus sont présentés dans la suite.

### III.2.3.1 Géométrie de l'enceinte

La cathode, le porte-substrats et le solénoïde sont représentés en coupe verticale sur la figure IV.5 (a). Il est important de noter que le grand cercle représente le domaine d'étude du logiciel et non une vue de dessus de l'enceinte cylindrique.

### III.2.3.2 Topographie des lignes d'induction magnétique dans l'enceinte

La figure IV.5 (b) présente les lignes d'induction magnétique dans l'enceinte, dans le cas où l'effet du courant circulant dans les bobines ne s'oppose pas à l'effet de la cathode magnétron : les lignes de champ dues aux bobines et aux aimants du magnétron ont ici même sens. C'est donc un cas favorable. Plus ces lignes sont orangées, plus le champ est intense (cas du magnétron). Il apparaît nettement qu'entre les bobines, les lignes d'induction sont presque parallèles : la croissance perpendiculaire à la surface des dépôts devrait donc être favorisée.

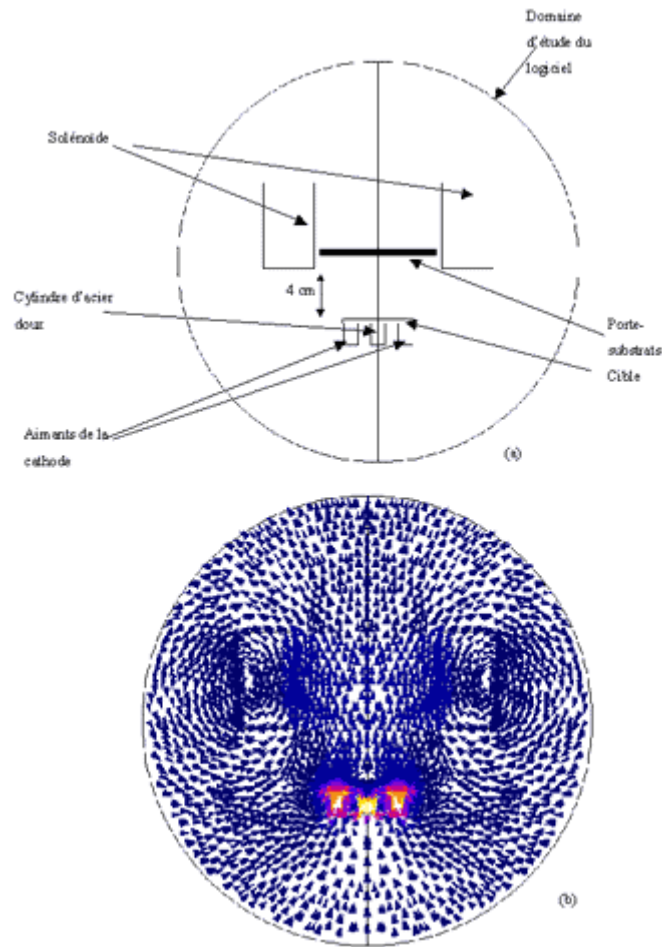


Figure IV. 5 : Géométrie du dispositif sous le logiciel FLUX 2D (a) ; topographie des lignes d'induction magnétique (b)

### III.2.3.3 Orientation des lignes d'induction par rapport au porte-substrat

Une croissance de couche de type axe  $c$  (i.e.  $(00\ell)$ ) nécessite une orientation de l'induction de  $90^\circ$  par rapport au porte-substrats. La figure IV.6 représente l'angle que font les vecteurs inductions avec la surface du porte substrats en fonction de la distance à l'axe de révolution du solénoïde. Une variation de  $3,5^\circ$  existe par rapport à la perpendiculaire au substrat soit 4 % d'écart relatif. La directivité est donc excellente.

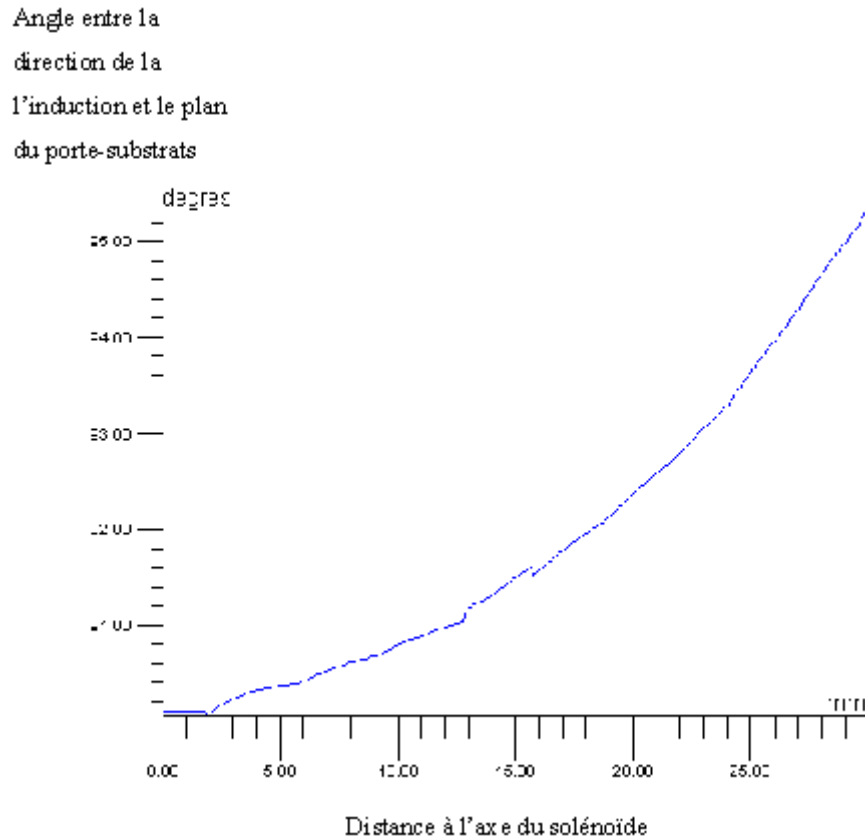


Figure IV. 6 : Angle que font les vecteurs inductions avec la surface du porte substrats en fonction de la distance à l'axe de révolution du solénoïde

#### III.2.3.4 Norme de l'induction au niveau du porte-substrat

La figure IV.7 représente la norme de l'induction au niveau du porte-substrat en fonction de la distance à l'axe de révolution. La position du porte-substrats, pour la simulation, a été choisie arbitrairement à 9 mm au dessus de la base des bobines.

La valeur de l'induction en zéro est erronée ; en effet, la méthode de calcul de Flux 2D ne peut converger en zéro en raison d'un changement de variable en  $1/r$ ,  $r$  étant la distance d'un point à l'axe de révolution. Ailleurs, sa valeur est quasi constante et voisine de  $7,36 \cdot 10^{-2}$  Tesla. C'est donc cette valeur que nous attendons à 9 mm au dessus de la base du solénoïde (trait noir épais sur la figure IV.5 (a)) en imposant un courant de 4,5 A dans le solénoïde.

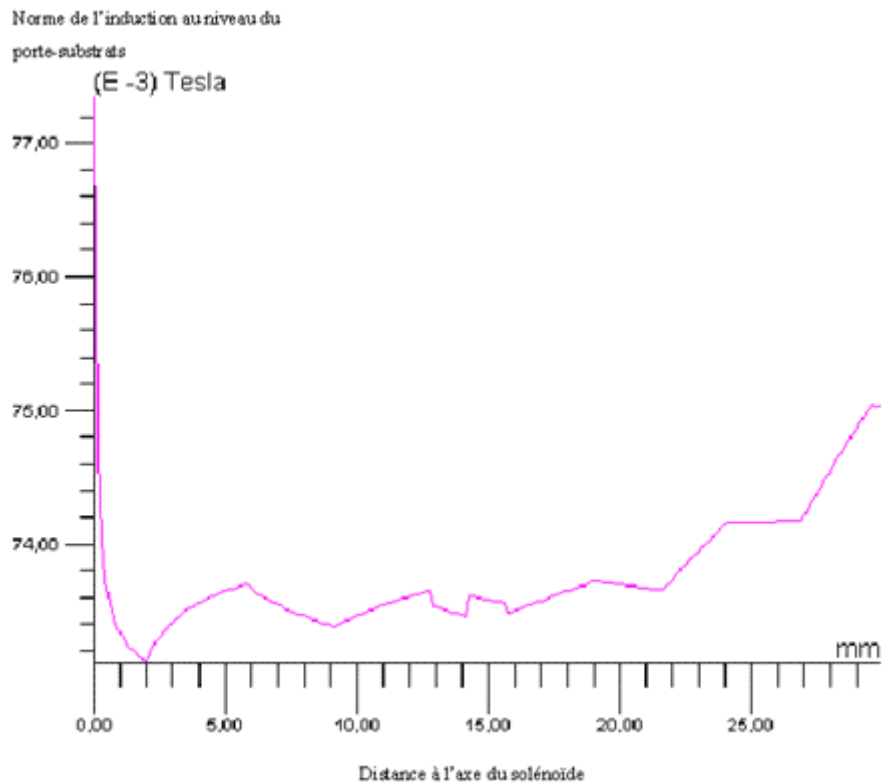


Figure IV. 7 : Module de l'induction le long d'un porte-substrat positionné à 9 mm au dessus de la base inférieure du solénoïde

### III.3 Conclusions et validation expérimentale

La simulation prévoit des inductions au niveau des substrats de norme et de direction satisfaisantes compte tenu de la limitation spatiale due au diamètre de l'enceinte. Après réalisation de ce dispositif à l'aide des cotes données dans le paragraphe III.2.1, nous avons cherché à valider notre simulation, tant pour la valeur des inductions que pour la topographie des lignes de champ.

#### III.3.1 Topographie des lignes de champ

La topographie des lignes de champ ne peut être vérifiée in situ que visuellement, car aucun système mobile de mesure à notre disposition ne peut être introduit dans l'enceinte. Cette validation est donc qualitative. La figure IV.8 représente deux photographies : l'une (a) avant dépôt (et donc avec cache) sans induction appliquée, l'autre (b) pendant un dépôt (sans cache) sous induction. Le courant dans le solénoïde vaut alors 4,5 A. Il apparaît, dans le cas (b), qu'au niveau des substrats, les lignes d'induction sont perpendiculaires à la surface des

échantillons : l'effet du solénoïde prédomine donc dans cette zone. A l'inverse, dans la partie inférieure, l'effet des aimants du magnétron est prépondérant et on peut apercevoir leurs lignes de champ. L'effet magnétique de la cible est ici négligeable car elle est globalement isotrope.

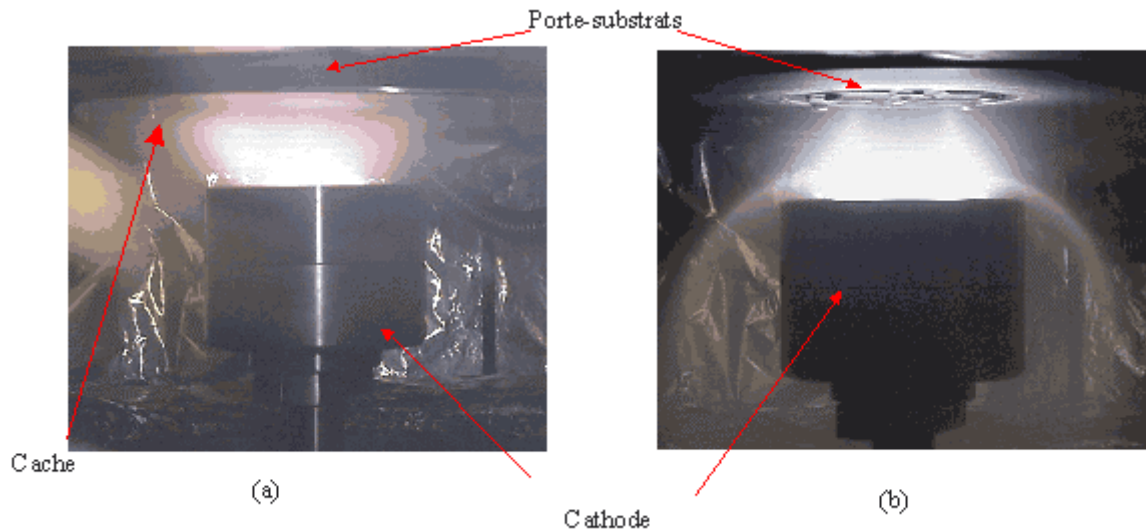


Figure IV. 8 : Forme du plasma (a) avant dépôt sans induction et (b) pendant le dépôt sous induction (courant traversant le solénoïde : 4,5 A)

### III.3.2 Valeur de l'induction

Pour mesurer l'induction créée au niveau du porte-substrats, nous disposons d'un teslamètre. En raison de sa géométrie, nous ne pouvons faire les mesures qu'à la base du solénoïde. La figure IV.9 présente le résultat de la mesure en fonction du courant parcourant les fils.



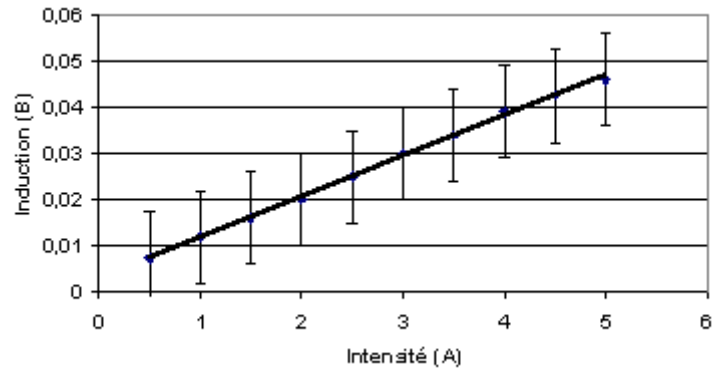


Figure IV. 9 : Induction obtenue à la base des bobines en fonction du courant les traversant

Les ordres de grandeur obtenus avec le teslamètre sont donc bien les mêmes que ceux prévus par la simulation. Il n'est malheureusement pas possible de la valider par une mesure à 9 mm au-dessus de la base du solénoïde en raison de l'encombrement du teslamètre. Cependant nous savons que l'induction théorique dans un solénoïde d'axe  $z$  de rayon  $R$  et de longueur  $2L$ , contenant  $n$  spires par unité de longueur et traversé par un courant  $I$ , est plus importante en son centre qu'à ses extrémités. Elle vaut, en un un point de l'axe de coordonnée  $z$  :

$$B(z) = \frac{n\mu_0 I}{2} \left[ \frac{L+z}{\sqrt{R^2 + (L+z)^2}} + \frac{L-z}{\sqrt{R^2 + (L-z)^2}} \right] \quad (\text{IV. 1})$$

Le calcul conduit, avec les données du tableau IV.2 à des inductions de  $1,89 \cdot 10^{-3}$  T à la base du solénoïde et  $2,24 \cdot 10^{-3}$  T à 9 mm au dessus de la base des bobines. L'écart relatif de l'induction est ici, entre ces deux positions, de 16 %.

Nous avons vu que la norme de l'induction simulée à 9 mm au dessus de la base du solénoïde est  $7,36 \cdot 10^{-2}$  T. En supposant que l'écart relatif de 16 % entre les deux positions du porte-substrats est physique, la valeur théorique attendue à la base du solénoïde est de  $6,2 \cdot 10^{-2}$  T. Or la mesure donne une valeur de  $5 \cdot 10^{-2}$  T (figure IV.9). Cette différence est vraisemblablement due au fait que l'on ne peut pas faire la mesure directement au niveau du porte-substrats : la cellule de mesure du teslamètre a en effet un certain volume qui l'empêche d'être en contact direct avec la base du solénoïde. D'autres incertitudes sont certainement introduites par la modélisation de l'encainte.

Nous pouvons cependant être satisfaits de cette simulation pour deux raisons : tout d'abord, même si la mesure au teslamètre et l'extrapolation précédente ne sont pas rigoureusement égales, les ordres de grandeur sont les mêmes ( $5.10^{-2}$  et  $6,2.10^{-2}$  T). Deuxièmement, la direction des lignes de champ au niveau du porte-substrats est excellente ; de plus, elle a pu être validée par l'observation des lignes de champ in situ. La fabrication du dispositif a donc été exécutée.

## IV Propriétés des dépôts réalisés avec l'enceinte de pulvérisation équipée du solénoïde

La simulation présentée dans le paragraphe précédent implique, pour des raisons d'encombrement du solénoïde, de modifier dans une large mesure le dispositif expérimental dont nous disposions au départ dans le laboratoire. En particulier, nous avons dû procéder au remplacement du porte-substrats, du dispositif de chauffage des substrats et du dispositif de mesure de température. Il est donc nécessaire de faire, dans cette nouvelle configuration, une étude systématique de l'influence des paramètres de dépôt sur la structure des couches, leurs propriétés magnétiques, leur composition et leur morphologie. Ces paramètres sont :

- la température des substrats,
- la pression d'Argon dans l'enceinte,
- la vitesse de dépôt,
- la distance cible-substrat (paramètre  $d$  sur la figure IV.4),
- la nature du substrat,
- l'application ou non d'une induction pendant le dépôt,
- la réalisation ou non d'un recuit post-dépôt.

Toutes les études ont systématiquement été réalisées sur deux types de substrats très utilisés en hyperfréquences et en micro-électronique, Si(100) et Si(111). En outre, des essais ont été effectués sur du Corindon orienté (000 $\ell$ ). Avant de présenter les résultats, nous allons montrer en quoi le choix du substrat est important.

### IV.1 Importance de la nature du substrat

L'objectif à atteindre est, rappelons-le, d'orienter l'axe de facile aimantation, c'est-à-dire, dans le cas des trois alliages magnétiques  $\text{SmCo}_5$ ,  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$  et  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ , l'axe  $c$ , perpendiculairement à la surface des substrats. Une croissance épitaxiale peut être favorisée

par la symétrie d'un substrat ad hoc. Les symétries des trois mailles et des trois substrats utilisés sont présentées dans la suite. Elles ont toutes été réalisées à l'aide du logiciel de cristallographie *Diamond 2.1e*. Ce logiciel permet de connaître, entre autres, les distances interatomiques dans une maille. Il est nécessaire pour cela d'entrer dans ce programme toutes les positions atomiques et notamment les sites occupés dans la maille (positions de Wickoff). Un important travail bibliographique et de nombreuses simulations ont été nécessaires pour obtenir les résultats présentés dans les paragraphes IV.1.1 et IV.1.2.

#### IV.1.1 Symétrie de $\text{SmCo}_5$ , $\text{Sm}_2\text{Co}_7$ et $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$

##### IV.1.1.1 Alliage $\text{SmCo}_5$

La maille  $\text{SmCo}_5$ , de symétrie hexagonale, est constituée d'un alternat de deux types de plans  $(00\ell)$  notés (a) et (b) susceptibles de présenter un bon accord de maille avec le substrat : les plans notés (a) contiennent les deux types d'atomes Sm et Co alors que les plans notés (b) ne contiennent que du Cobalt. La figure IV.10 montre la configuration des atomes dans ces deux plans. La maille élémentaire est ici représentée en rouge.

Les distances inter-atomiques dans  $\text{SmCo}_5$  sont rassemblées dans le tableau IV.3. Pour espérer une épitaxie, il faudra donc que les valeurs inter-atomiques du substrat soient voisines de celles indiquées dans le tableau ou à défaut un de leurs multiples.

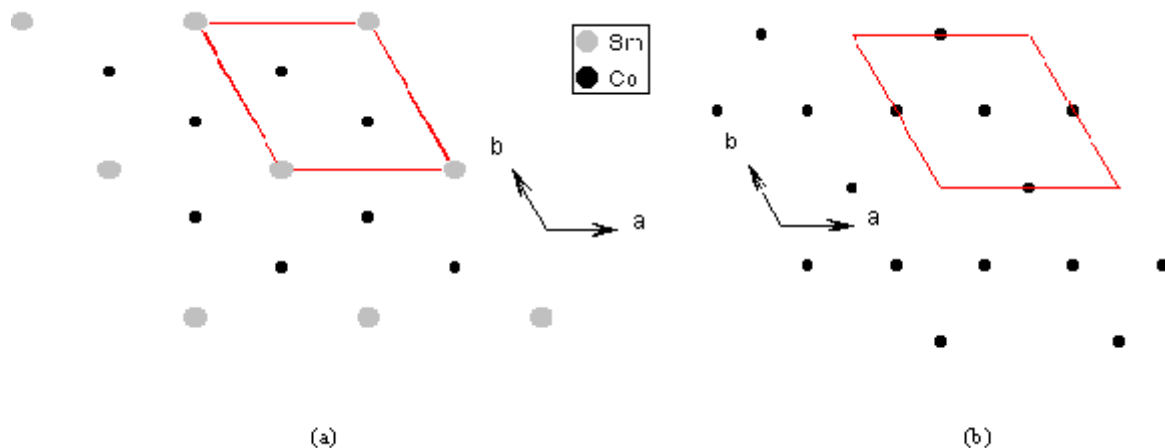


Figure IV. 10 : Configuration des atomes dans les deux plans  $(00\ell)$  de  $\text{SmCo}_5$

	Plans de type (a)	Plans de type (b)
Co-Co	2,885	2,499
Sm-Sm	4,997	-

Tableau IV. 3 : Distances inter-atomiques (Å) dans les deux types de plans composant  $\text{SmCo}_5$

#### IV.1.1.2 Alliage $\text{Sm}_2\text{Co}_7$

Dans cet alliage, il existe trois familles de plans  $(00\ell)$ . Sur la figure IV.11, les atomes de ces plans (notés (a), (b) et (c)) sont successivement représentés, faisant apparaître les symétries intéressantes : dans les familles (a), (b) et (c), l'arrangement des atomes de Cobalt est hexagonal ; c'est le cas également dans la famille (c) pour les atomes de Samarium. La maille élémentaire est représentée en rouge.

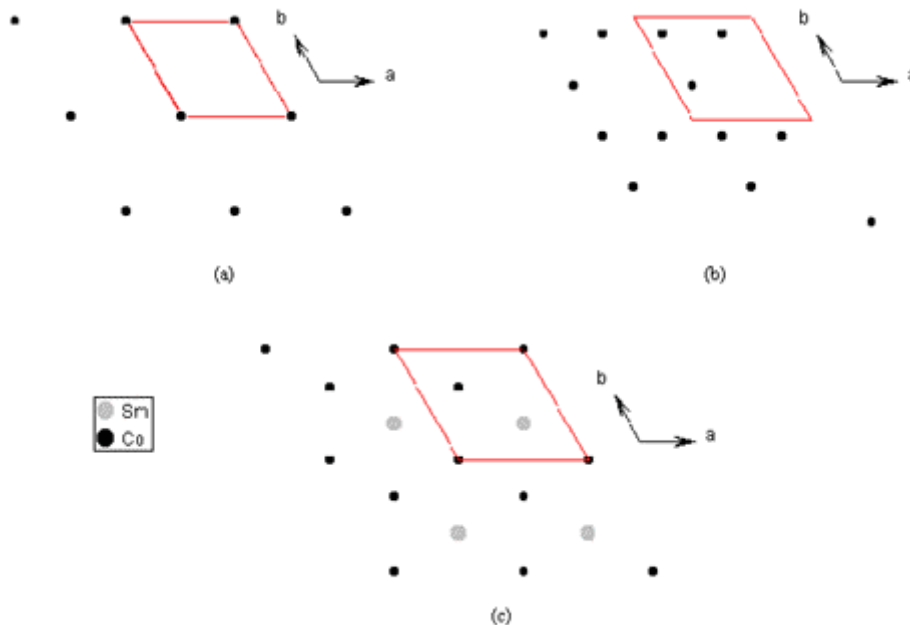


Figure IV. 11 : Arrangement des atomes dans les trois plans  $(00\ell)$  de  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$

Les distances inter-atomiques dans chacun des plans sont reportées dans le tableau IV.4.

	Plans de type (a)	Plans de type (b)	Plans de type (c)
Co-Co	5,043	2,529 ; 2,512 ; 2,514	2,912
Sm-Sm	-	-	5,043

Tableau IV. 4 : Distances inter-atomiques (Å) dans les trois familles de plan composant  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$

#### IV.1.1.3 Alliage $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$

L'alliage  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  est constitué par un alternat de 6 plans (00 $\ell$ ), notés (a), (b), (c), (d), (e) et (f). (d) et (f) sont identiques mais présentent un décalage par rapport à la maille élémentaire (figure IV.12). Les distances inter-atomiques sont reportées dans le tableau IV.5 ; seules les distances entre sommets des hexagones y figurent.

	Plans (a)	Plans (b)	Plans (c)	Plans (d) et (f)	Plans (e)
Co-Co	3,011	9,030	2,607	9,030	3,011
Sm-Sm	5,213	-	-	-	5,213

Tableau IV. 5 : Distances inter-atomiques (Å) dans les six familles de plan composant  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$

### IV.1.2 Symétrie des différents substrats utilisés

#### IV.1.2.1 Silicium orienté (100)

Le Silicium orienté (100) est le plus utilisé en micro-électronique. Son système cristallin est cubique à faces centrées et son groupe d'espace est  $\text{Fd}\bar{3}m$ . Un plan (100) est représenté sur la figure IV.13.

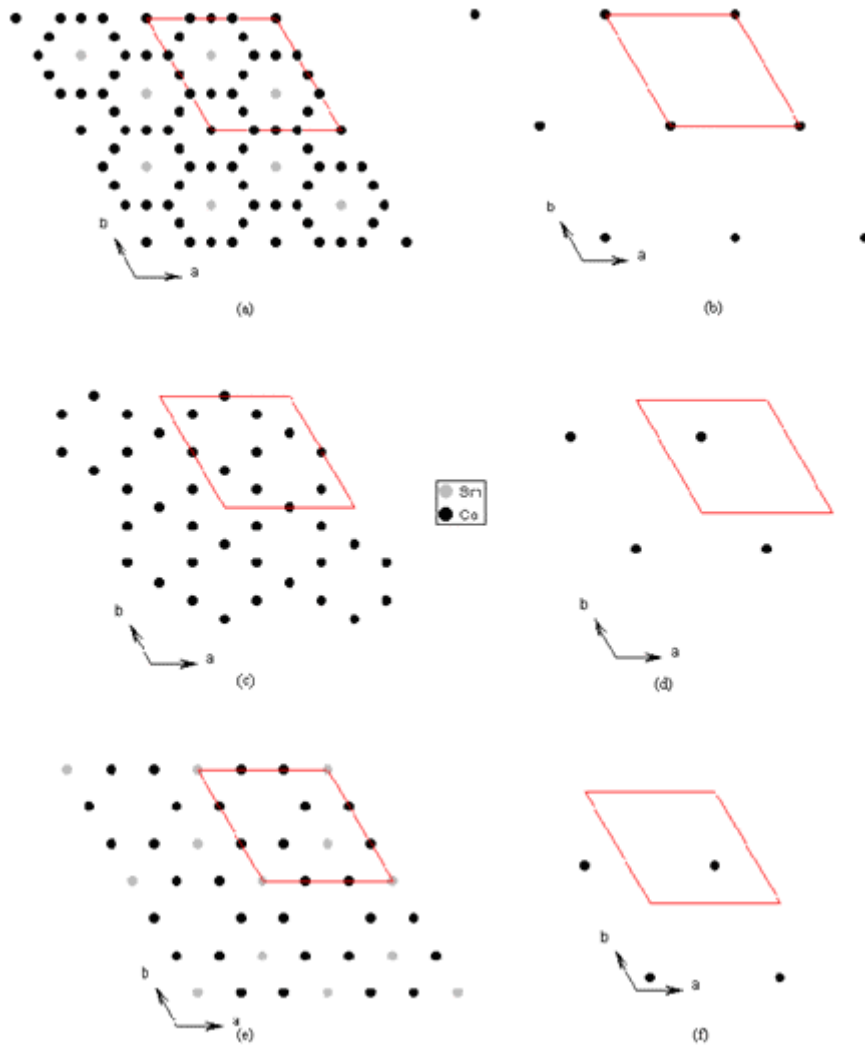


Figure IV. 12 : Arrangements des atomes dans les plans  $(00\ell)$  de l'alliage  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$

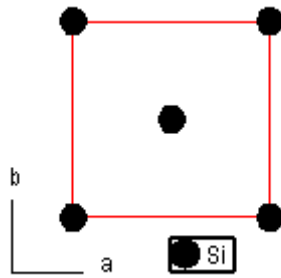


Figure IV. 13 : Arrangement des atomes dans un plan (100) du Silicium

La distance Silicium-Silicium entre deux atomes des sommets vaut  $5,431 \text{ \AA}$  ; la distance la plus courte (entre le centre d'une face et un sommet) vaut  $3,840 \text{ \AA}$ .

#### IV.1.2.2 Silicium orienté (111)

L'arrangement des atomes dans un plan (111) est de symétrie hexagonale (figure IV.14). Les atomes des autres plans n'apparaissent pas. La trace de la maille cubique élémentaire est représentée en rouge.

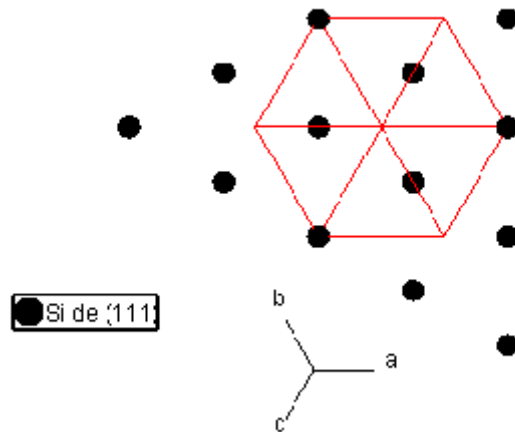


Figure IV. 14 : Arrangement des atomes dans les plans Si(111)

Dans les plans (111), les distances entre les atomes valent  $3,840 \text{ \AA}$ .



#### IV.1.2.3 Corindon (0001)

Le corindon est le nom commercial de  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$ , qui est une des phases de l'alumine. Elle est constituée d'un empilement hexagonal compact déformé d'anions Oxygène, dans lequel les cations métalliques occupent les 2/3 des sites octaédriques. La maille et les plans la constituant (notés (b), (c) et (d)) sont représentés sur la figure IV.15.

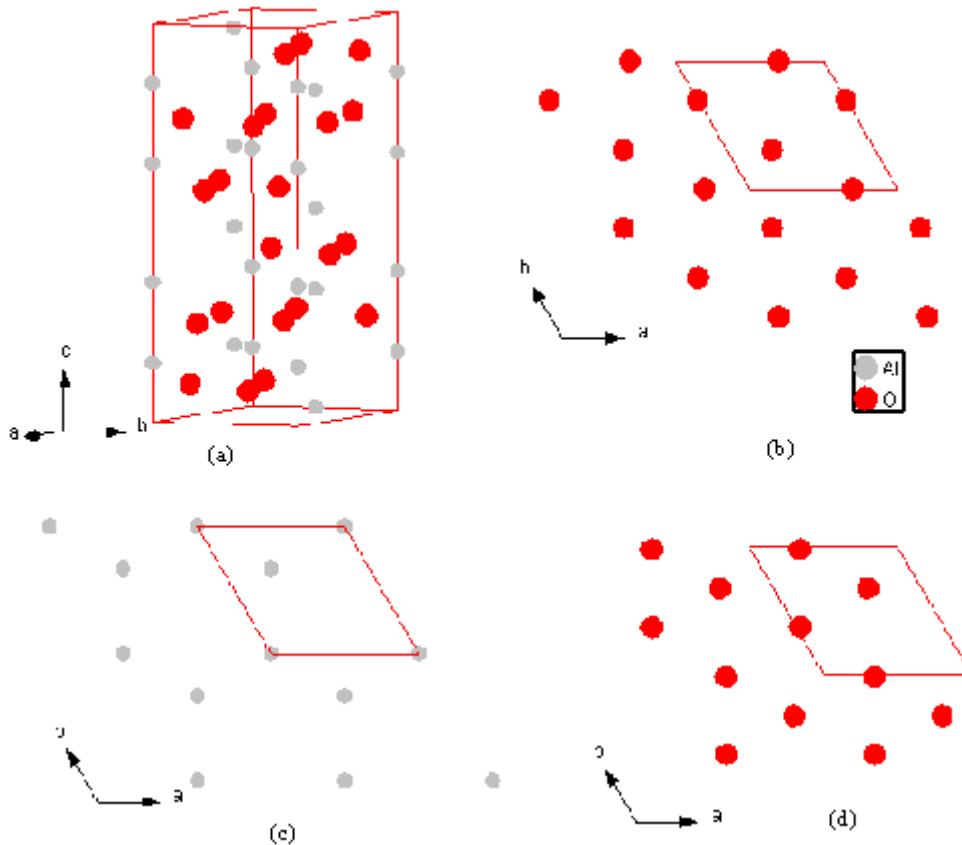


Figure IV. 15 : Motif élémentaire de l'alumine  $\alpha$  (a) et plans de symétrie (b), (c) et (d)

Les distances inter-atomiques dans les plans (b), (c) et (d) sont reportées dans le tableau IV.6. Les plans (b) et (d) sont équivalents mais décalés par rapport à l'axe c de la maille.

	Plans (b) et (d)	Plans (c)
Al-Al	-	2,789
O-O	2,510 ; 2,807	-

Tableau IV. 6 : Distances inter-atomiques (Å) dans l'alumine  $\alpha$

### IV.1.3 Conclusion

L'adaptation des paramètres de maille entre substrats et alliages nécessite des valeurs inter-atomiques proches et des symétries identiques (de type hexagonal). Le silicium (100) est donc théoriquement défavorable en raison de ses faces carrées. Si(111) et  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> présentent, eux, la bonne symétrie. Pour les trois alliages Sm-Co, il existe toujours une distance interatomique voisine de 5 Å :  $d_{Sm-Sm} = 4,997$  Å (tableau IV.3),  $d_{Sm-Sm} = d_{Co-Co} = 5,043$  Å (tableau IV.4) et  $d_{Sm-Sm} = 5,213$  Å (tableau IV.5). Nous cherchons donc une adaptation de maille autour de ces valeurs. Pour les substrats, les distances considérées sont les distances entre deux atomes de Silicium des sommets du cube ( $d_{Si-Si} = 5,431$  Å) pour Si(100), la distance unique (3,840 Å) Silicium-Silicium pour Si(111) et la distance Oxygène-Oxygène (2,510 Å) pour  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Les relations d'épitaxie sont pour les trois alliages  $d_{Si-Si} \cong d_{Sm-Sm}$  pour Si(100),  $4d_{Si-Si} \cong 3d_{Sm-Sm}$  pour Si(111) et  $2d_{O-O} \cong d_{Sm-Sm}$  pour  $\alpha$ -Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Les écarts relatifs entre les deux membres de ces équations sont donnés dans le tableau IV.6.

	SmCo <sub>5</sub>	Sm <sub>2</sub> Co <sub>7</sub>	Sm <sub>2</sub> Co <sub>17</sub>
Si(100)	8,0 %	7,1 %	4,0 %
Si(111)	2,4 %	1,5 %	1,8 %
$\alpha$ -Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (000 $\ell$ )	0,5 %	0,5 %	3,7 %

Tableau IV. 7 : Ecart relatifs entre les différentes relations d'épitaxie

De ce tableau, il ressort que tous les écarts relatifs sont inférieurs à 8 %. En particulier, l'adaptation de maille entre l'alumine et les alliages est excellente. Les deux symétries sont de plus identiques. De même, Si(111), outre sa symétrie hexagonale favorable, est susceptible de favoriser l'épitaxie. Il convient donc de valider ou d'invalider ces conjectures expérimentalement.

Dans la suite, des études systématiques seront réalisés sur Si(100) et Si(111) pour tous les paramètres de dépôt. Le cas du corindon fera l'objet d'un paragraphe particulier (IV.6).

## IV.2 Influence de la température des substrats

L'un des intérêts du nouveau montage est de pouvoir atteindre des températures de porte-substrats de l'ordre de 900°C, ce qui était impossible avec le dispositif précédent et ce en raison de la nature des éléments chauffants. Nous présentons dans la suite l'influence de ce paramètre sur la cristallographie, la morphologie, la composition et les propriétés magnétiques des couches.

### IV.2.1 Conditions générales de réalisation des dépôts et épaisseurs des couches

Dans cette étude, tous les dépôts ont été effectués dans les conditions suivantes :

- une pression d'Argon de 0,4 Pa, cette pression de travail étant en effet très facile à maîtriser expérimentalement avec une bonne précision ; elle permet une bonne stabilité du plasma,
- une distance cible-substrat d la plus courte possible (4 cm), c'est-à-dire que les substrats sont situés à la base des bobines,
- une puissance radiofréquence de 50 W.

Il existe deux facteurs limitatifs empêchant d'obtenir de fortes épaisseurs de couches. Le premier est la puissance radiofréquence : elle ne doit pas excéder 4 W/cm<sup>2</sup> (données du fabricant) afin d'éviter de trop grandes différences thermiques entre la surface de la cible et les circuits de refroidissement de la cathode (risque de détérioration de la cible) et, le second, les rendements (ou efficacités) de pulvérisation des atomes constituant la cible. L'efficacité de pulvérisation du Samarium est inconnue et celle du Cobalt vaut 51 nm.min<sup>-1</sup> sous Argon [2]

(énergie des ions Argon : 500 eV ; densité de courant dans la cible : 1 mA/cm<sup>2</sup>). Les épaisseurs mesurées au profilomètre varient entre 0,7 et 0,95 µm pour des durées de dépôt de 30 minutes. La valeur moyenne des épaisseurs est de 0,86 µm et les vitesses de dépôt sont de l'ordre de 1,4 à 1,8 µm/h. Toutes les couches sont très adhérentes au substrat comme le montre le test qualitatif dit « du scotch » : nous n'avons pas pu séparer la couche du substrat à l'aide d'un ruban adhésif fortement collant.

## IV.2.2 Résultats cristallographiques

### IV.2.2.1 Dépôts sur Si(100)

Les résultats cristallographiques de l'étude en température (des substrats) sur Si(100) sont rassemblés sur la figure IV.16. Plusieurs conclusions peuvent en être tirées :

- tout d'abord, les dépôts effectués à des températures de substrat inférieures à 300°C sont amorphes,
- à partir de 300°C, le pic (220) de SmCo<sub>5</sub> (à  $2\theta = 76,1^\circ$ ), déjà rencontré dans l'étude préliminaire, laisse penser que les dépôts sont texturés dans le plan de la couche. La température la plus favorable pour cette texturation semble être 500°C en raison de la finesse et de la hauteur comparées des pics,

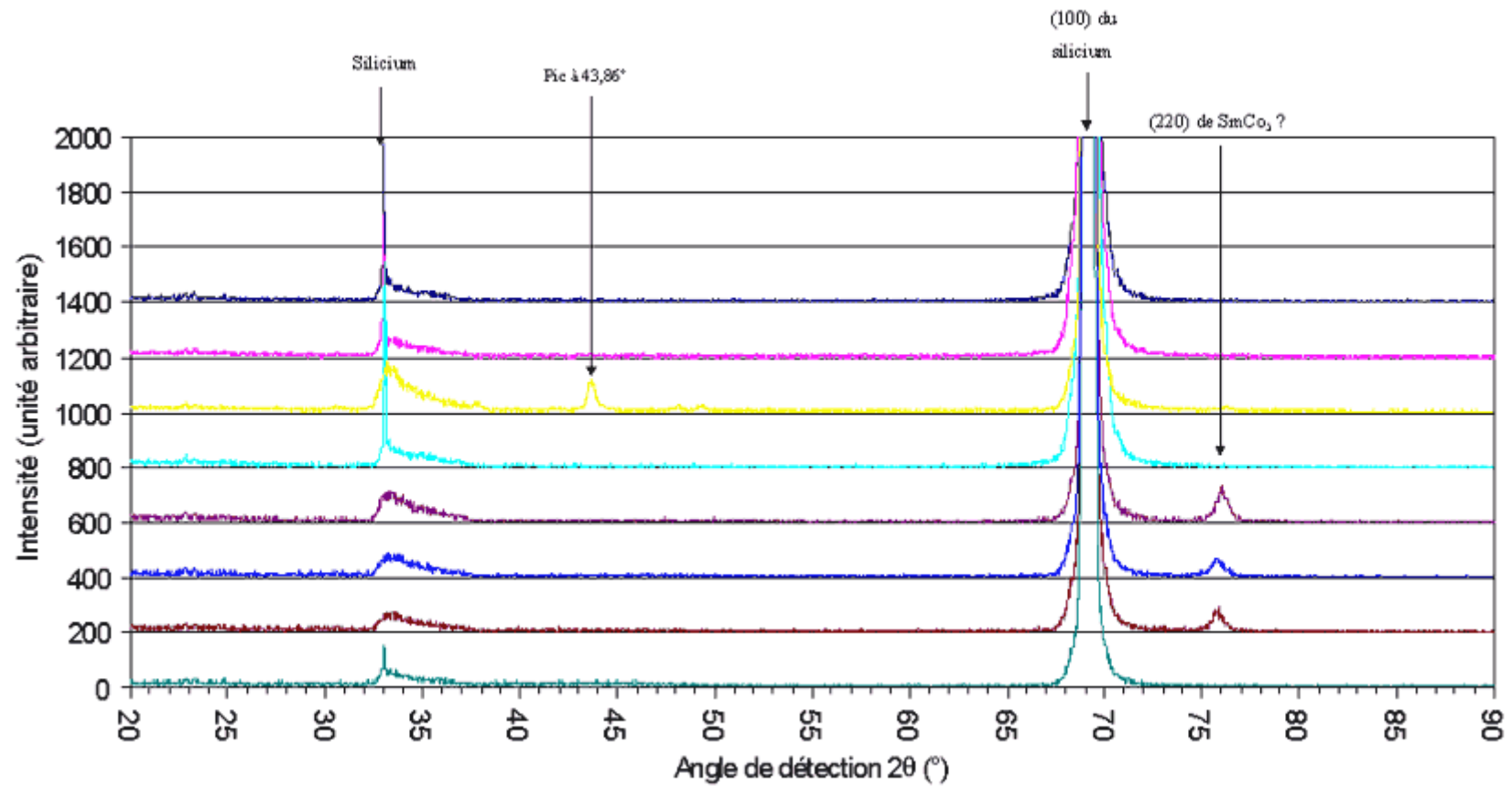


Figure IV. 16 : Diagrammes de diffraction obtenus sur Si(100) en fonction de la température des substrats à une pression de 0,4 Pa

- de 500°C à 700°C, cette cristallisation est détruite. On forme des phases non détectables aux rayons X,
- à 700°C, un pic très net apparaît à un angle de détection de 43,86°. Ce pic fera l'objet d'études cristallographiques et magnétiques ultérieures,
- au-delà de 700°C, les dépôts sont à nouveau amorphes.

#### IV.2.2.2 Dépôts sur Si(111)

La figure IV.17 représente les diagrammes de diffraction obtenus sur Si(111) à différentes températures de substrat. Il en ressort :

- les deux ordres de diffraction de Si(111) vers  $2\theta = 28^\circ$  et  $2\theta = 58^\circ$ ,
- un pic attribué au Silicium (111) à  $44,5^\circ$ , qui est différent de celui de Si(100), et qui est récurrent sur tous les dépôts réalisés sur Si(111) (cf paragraphe II.2.1),
- une faible cristallisation à  $76^\circ$  pouvant être le (220) de  $\text{SmCo}_5$  dès  $150^\circ\text{C}$  et qui disparaît à partir de  $800^\circ\text{C}$ .

#### IV.2.2.3 Conclusions cristallographiques de l'analyse en température

Cette étude a donc mis évidence une influence très nette de la température de substrat, comme cela avait déjà été constaté dans l'étude préliminaire. Les dépôts sont amorphes à basse et à très haute température. En outre, l'influence des substrats est ici évidente, puisque dans les mêmes conditions, les résultats obtenus sont très différents : la cristallisation apparaît moins bonne sur une symétrie hexagonale (Si(111)). Ce résultat constitue un paradoxe au vu des conjectures du paragraphe IV.1.3. Les accords de maille sont en effet théoriquement meilleurs entre les alliages Sm-Co et le Silicium (111).

Il reste que les matériaux déposés ne sont pas identifiés de manière certaine : il faut pour cela confronter les diagrammes de diffraction aux mesures magnétiques.

#### IV.2.3 Propriétés magnétiques des dépôts

Nous présentons ici les propriétés magnétiques des dépôts obtenus à l'aide de l'hystérésismètre décrit dans la troisième partie. L'étude avec champ appliqué perpendiculaire n'a pas pu être effectuée, car les propriétés magnétiques de nos échantillons et la quantité de

matière analysée sont en deçà du seuil de détection de l'appareil. Toutes les valeurs présentées ont donc été obtenues avec un champ appliqué parallèle à la surface des couches.

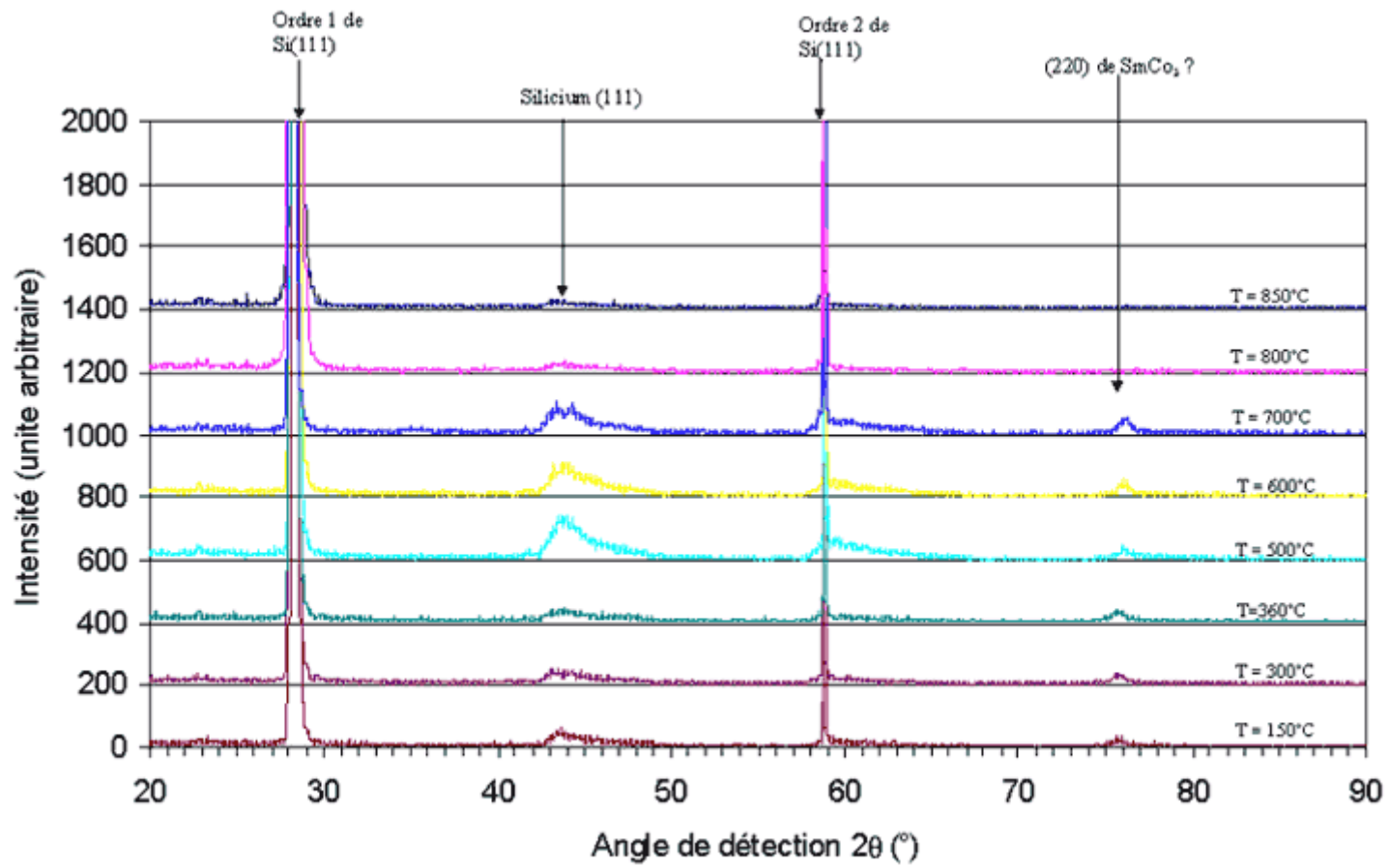


Figure IV. 17 : Diagrammes de diffraction obtenus sur Si(111) en fonction de la température des substrats à une pression de 0,4 Pa



La figure IV.18 montre l'évolution de l'aimantation à saturation ( $\mu_0 M_S$ ) et du champ coercitif en fonction de la température sur les deux types de substrat Si(100) et Si(111). Les dépôts effectués à 800 et 850°C sont tous amagnétiques : la température détériore en effet fortement la structure des couches au-dessus de 600°C et par conséquent leurs propriétés magnétiques. Nous avons cependant obtenu des couches magnétiques à 700°C. Les incertitudes absolues introduites par le dispositif de mesure sur les aimantations à saturation et les champs coercitifs sont respectivement 0,08 T et 5 kA/m.

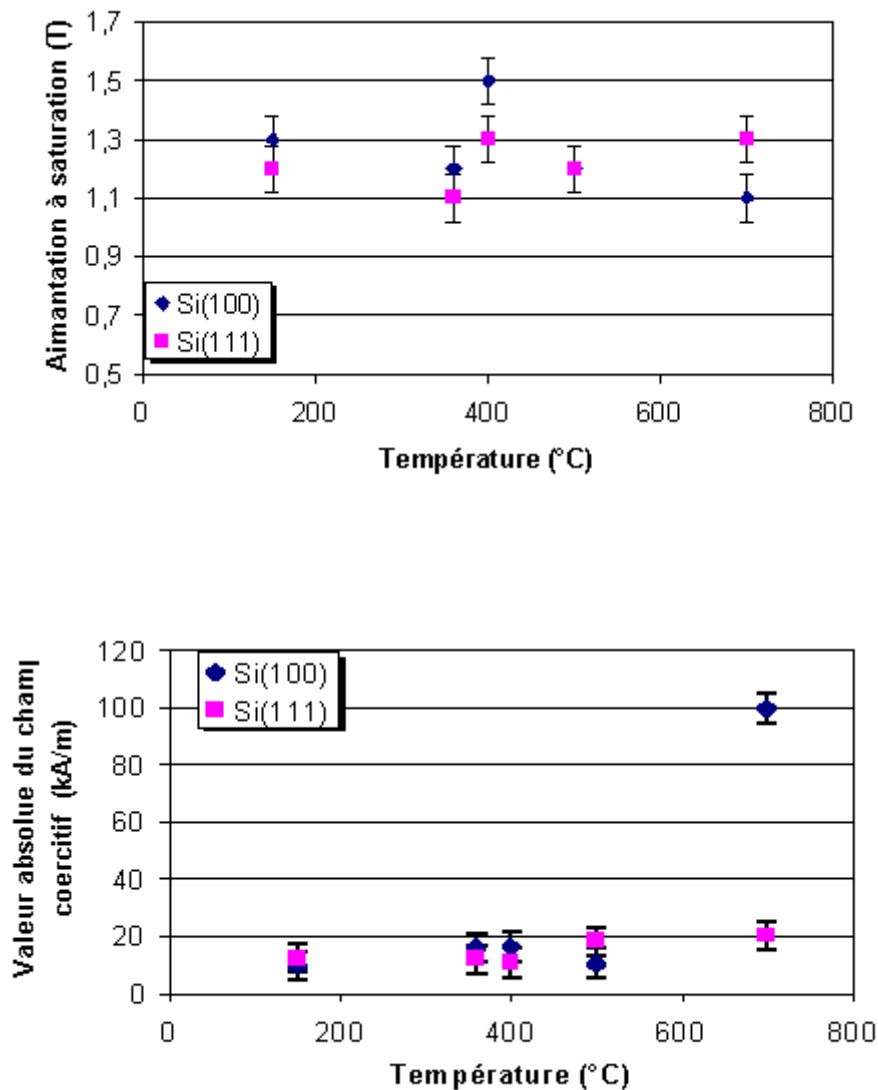


Figure IV. 18 : Evolution de l'aimantation à saturation et du champ coercitif en fonction de la température des substrats

Les valeurs d'aimantations à saturation sont celles classiquement obtenues sur les alliages de Samarium-Cobalt (1 à 1,2 Tesla ; voir paragraphe I.2). Cependant, les valeurs absolues de champ coercitif sont ici extrêmement faibles : 10 à 20 kA/m pour la plupart des dépôts et 99,5 kA/m pour celui réalisé à 700°C sur Si(100). Il ne peut donc s'agir de l'un des trois alliages magnétiques  $\text{SmCo}_5$ ,  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$  ou  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  où les champs coercitifs peuvent atteindre plusieurs milliers de kA/m. Ces valeurs sont caractéristiques d'un matériau « faiblement dur » : il s'agit peut-être de Cobalt. Ce métal se présente sous deux formes :

- en dessous de 450°C, il est hexagonal (symétrie  $P6_3/mmc$ ) : c'est la forme  $\alpha$  ;
- au-dessus de 450°C, il est cubique à faces centrées : c'est la forme  $\beta$ , instable à température ambiante.

Les plans (110) de  $\alpha$ -Co sont mis en évidence en diffraction des rayons X à  $76^\circ$  et les plans (002) à  $44,3^\circ$  : il est donc très vraisemblable, au vu de ces valeurs et des propriétés magnétiques, que nous ayons formé du Cobalt  $\alpha$ . **Cela pourrait être confirmé par une figure de pôle de l'échantillon.** La forte valeur de champ coercitif à 700°C s'explique par le fait qu'il est plus difficile de retourner les moments magnétiques dans cette configuration. En effet, l'axe c du Cobalt est de facile aimantation ; on peut donc supposer que les moments magnétiques sont, avant la mesure, majoritairement orientés perpendiculairement à la couche le long de cet axe facile ; par conséquent, l'énergie de Zeeman mise en jeu pour retourner ces moments dans le plan de la couche lors de la mesure, est plus importante que dans des configurations différentes.

L'influence de la nature des substrats sur les champs coercitifs et les aimantations à saturation semble donc faible au vu de la figure IV.18, sauf à 700°C où les cristallisations obtenues sur les deux types de substrat sont très différentes. Il reste à savoir quelle est la part du substrat dans cette cristallisation à 700°C. Les conjectures avancées dans le paragraphe IV.1.3 ne sont pas utilisables ici car nous sommes en présence du Cobalt et non d'un des alliages Sm-Co.

#### IV.2.4 Morphologie des dépôts réalisés

Les dépôts réalisés sont tous caractérisés par un fond homogène parsemé d'amas indéterminés, que nous avons analysé par EDX. Nous n'en connaissons pas la nature : en

effet, la poire d'interaction n'est en effet pas assez sélective pour n'intercepter que ces amas car son volume est très supérieur au leur. La figure IV.19 montre un exemple de ce qu'il est

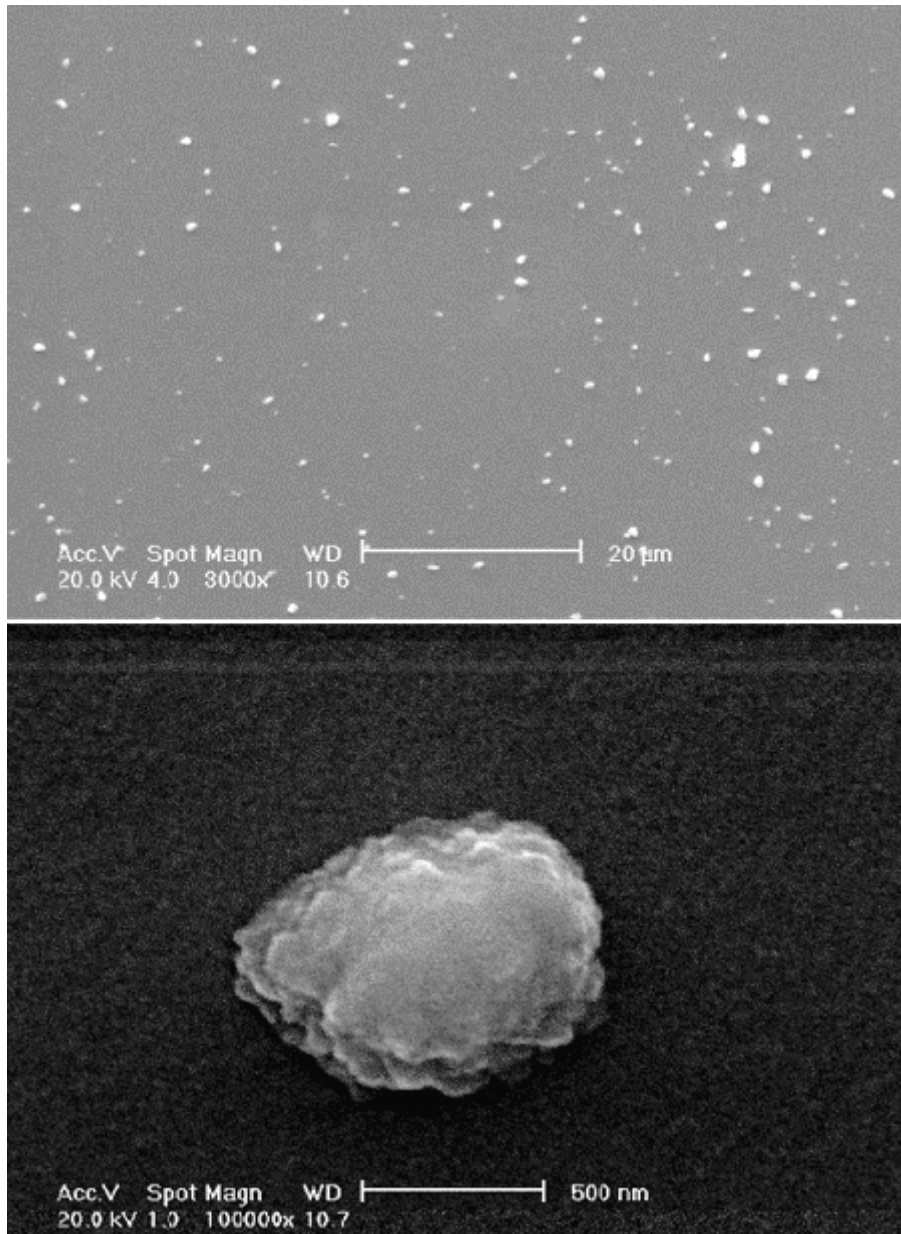


Figure IV. 19 : Observation au microscope électronique à balayage d'un dépôt effectué à 360°C sur Si(111) à deux grossissements : 3000 et 100000

possible d'observer (ici un dépôt réalisé à 360°C sur Si(111)). Même aux forts grossissements, aucune structure de grain particulière ne ressort : par exemple, aucune géométrie hexagonale (caractéristique d'un des alliages ou du Cobalt) n'apparaît. L'étude morphologique n'apporte donc que très peu d'informations utilisables.

Dans la suite, nous ne détaillerons pas l'observation des couches par microscopie électronique à balayage. En effet, leur aspect est identique à celui qui apparaît sur la photo IV.19.

## IV.2.5 Analyses EDX

### IV.2.5.1 Analyses en surface

Les analyses EDX permettent de connaître les rapports atomiques dans les couches. Celui qui nous intéresse est le rapport entre les atomes de Cobalt et ceux de Samarium. Les cas idéaux sont évidemment 5 pour  $\text{SmCo}_5$ , 3,5 pour  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$  et 8,5 pour  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ , correspondant aux trois alliages magnétiques susceptibles d'être déposés.

La figure IV.20 représente la variation du rapport atomique Co/Sm en fonction de la température de substrat sur Si(100) et Si(111). Les rapports atomiques aux températures supérieures à 700°C n'apparaissent pas car les couches sont dans ce cas fortement détériorées et donc difficiles à analyser.

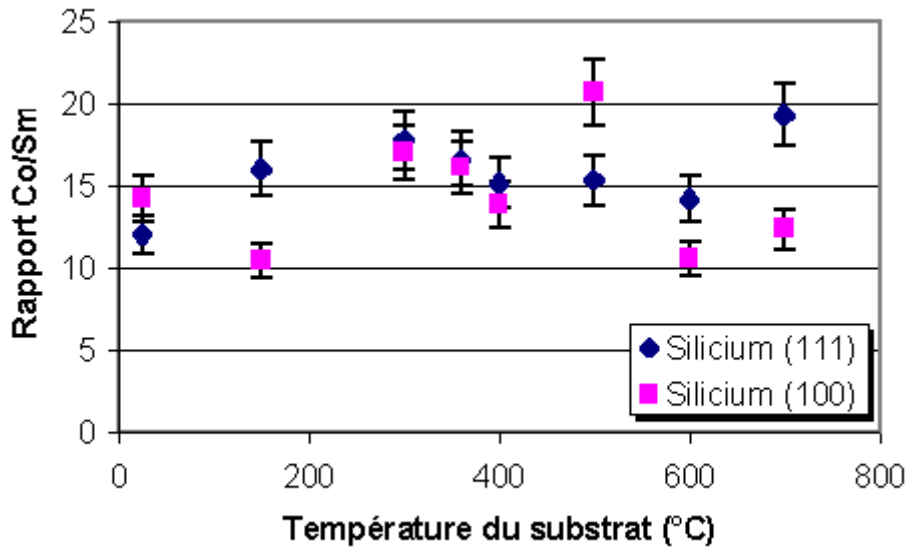


Figure IV. 20 : Evolution des rapports atomiques Co/Sm en fonction de la température de substrat

La poire d'interaction intercepte toute l'épaisseur de la couche et même une partie du substrat. Ces valeurs sont donc fiables et peuvent être interprétées, aux incertitudes de mesure près (de l'ordre de 10 %). Ces incertitudes sont essentiellement liées à celles sur la distance de travail (distance lentille de focalisation-échantillon), le courant de sonde (courant parcourant l'échantillon) et le taux de temps morts (temps minimal d'analyse d'un rayonnement). Deux conclusions peuvent être tirées de la figure IV.20.

Tout d'abord, l'évolution du rapport Co/Sm en fonction de la température de substrat ne fait ressortir aucune loi particulière sur la plage étudiée. Certaines couches présentent en effet un très grand excès de Cobalt (Co/Sm voisin de 20) deux fois plus important que certaines autres (Co/Sm voisin de 10). Le même protocole expérimental a pourtant été suivi dans tous les cas.

Il ressort également que les rapports atomiques ne sont parfois pas égaux sur des couches réalisées simultanément lors de la même phase de dépôt mais sur des substrats différents. Ce phénomène est surprenant : la symétrie du substrat ne peut avoir d'influence sur la composition si l'on admet que la diffusion du Cobalt et du Samarium est négligeable dans le silicium. En effet, la quantité d'atomes présente sur les substrats, et donc les rapports atomiques, ne dépend que du phénomène de la pulvérisation.

L'excès de Cobalt constaté dans toutes les couches s'explique essentiellement par les différences de rendement de pulvérisation entre le Samarium et le Cobalt dans la cible de  $\text{SmCo}_5$ . Les phénomènes entrant en jeu sont en effet très mal connus dans le cas des cibles à plusieurs atomes et particulièrement des alliages (voir annexe II), contrairement au cas des corps purs. Cet excès de Cobalt est de plus en contradiction avec une théorie disant que la composition nominale de la cible se retrouve dans les couches [6] : ce raisonnement est juste d'un point de vue statistique et sur l'ensemble de la durée de vie de la cible. Sur des dépôts d'une trentaine de minutes, ce n'est malheureusement pas le cas, notamment lorsque les efficacités de pulvérisation des atomes diffèrent. En outre, le comportement des alliages en pulvérisation cathodique est très mal connu (annexe II), ce qui fragilise les éventuelles conclusions.

Les différences stœchiométriques entre deux couches réalisées simultanément sur deux substrats différents pourraient s'expliquer par une hétérogénéité volumique du plasma dans l'enceinte, provoquée par les perturbations dues au générateur radiofréquence.

#### IV.2.5.2 Analyse en profondeur

L'analyse EDX se fait dans ce cas sur la tranche de l'échantillon et non sur sa surface. Le nombre d'impulsions détectées est proportionnel à la quantité d'atomes présents dans la couche. Pour obtenir un profil, il est nécessaire de tracer une ligne virtuelle allant de la surface de la couche à l'intérieur du substrat (figure IV.21). Il s'agit alors de discrétiser la droite en un nombre fini de points (ici 128) et d'effectuer une analyse en chacun de ces points. Une répartition typique d'atomes est représentée sur la figure IV.21.

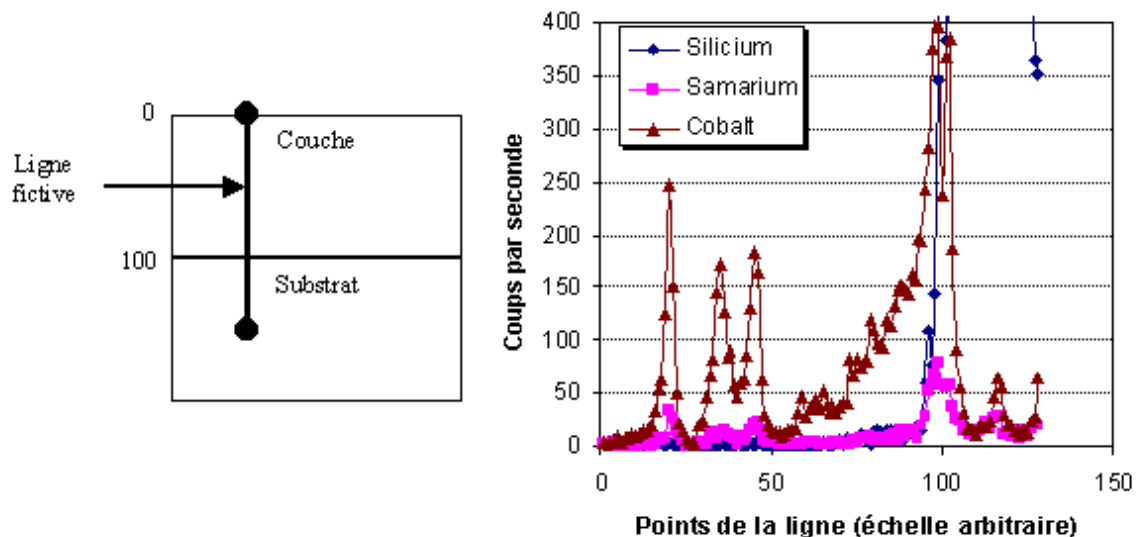


Figure IV. 21 : Répartition en profondeur des différents constituants sur un dépôt à 500°C sur Si(111)

Sur cette figure, la valeur 0 correspond à la surface de la couche et la valeur 100 correspond à l'interface couche-substrat (soit une profondeur de 0,9  $\mu\text{m}$  dans ce cas). Il ressort de cette étude que la quantité atomique du Samarium est bien inférieure à celle du Cobalt, ce qui confirme les analyses précédentes. Le nombre d'impulsions maximal détecté est, en effet, en moyenne sur la longueur de la ligne, de 10 pour le Samarium contre 80 pour le Cobalt.

### IV.3 Influence de la pression d'Argon dans l'enceinte

Les dépôts préliminaires (paragraphe II.2.1) ont montré que la pression d'Argon, lorsqu'elle est paramètre principal (c'est-à-dire non associé à une élévation de température) n'est pas déterminante pour provoquer la cristallisation des dépôts. Nous étudions dans ce paragraphe son influence à la température optimale de cristallisation pour Si(100), c'est-à-dire à 500°C.

#### IV.3.1 Conditions générales de dépôt

Cette étude a été effectuée sur des dépôts d'une durée d'une demi-heure, à une puissance de 50 W et à une distance cible-substrat de 4 cm. Les vitesses de dépôt sont identiques à celles de l'étude précédente (1,4 à 1,8  $\mu\text{m}/\text{h}$ ).



## IV.3.2 Résultats cristallographiques

### IV.3.2.1 Substrats Si(100)

Les diagrammes de diffraction des dépôts réalisés sur Si(100) sont rassemblés sur la figure IV.22.

Ces diagrammes montrent que la pression d'Argon a une influence sur la structure cristallographique des dépôts.

De 0,20 à 0,70 Pa, seul le pic (110) du cobalt apparaît, à  $76^\circ$ . Son intensité diminue quand la pression augmente, ce qui signifie que le degré de texture (110) diminue quand la pression augmente. Cette évolution peut s'expliquer de la façon suivante : quand la pression augmente dans la gamme 0,20-0,70 Pa, les atomes éjectés de la cible voient leur libre parcours moyen diminuer et donc leur énergie à leur arrivée sur le substrat diminuer (à température constante). Leur mobilité à la surface s'en trouve réduite et l'orientation (110) est moins favorisée, mais reste cependant la seule orientation détectée.

A la pression de 1,33 Pa, il apparaît nettement d'autres pics tels que le (002) du Cobalt ; une évolution semble se dessiner dès 0,70 Pa. L'intensité du pic (110) du Cobalt diminue elle fortement. Il existe, entre 0,70 et 1,33 Pa, une sorte de seuil énergétique où les couches perdent leur texture (110) : les espèces éjectées de la cible voient encore leur libre parcours moyen diminuer, de telle sorte que leur énergie au niveau des substrats ne favorise aucune orientation particulière. Les couches deviennent donc de plus en plus polycristallines à ces pressions, ce qui n'est évidemment pas le but recherché pour les applications visées. Une étude à des pressions supérieures est donc exclue.

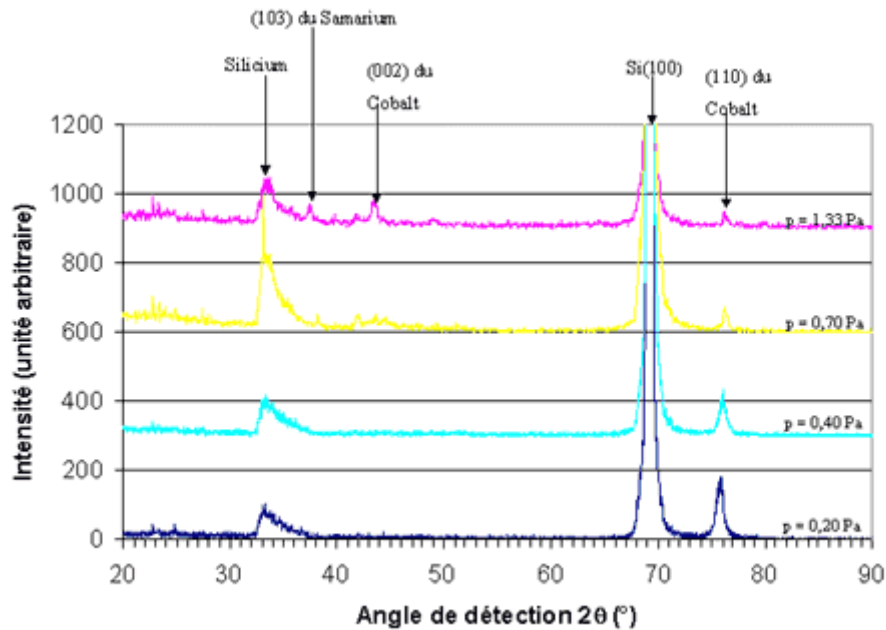


Figure IV. 22 : Influence de la pression d'Argon pour une température de substrats Si(100) de 500°C

#### IV.3.2.2 Substrats Si(111)

Les résultats cristallographiques sur Silicium (111) sont présentés sur la figure IV.23.

Les phénomènes observés sur Si(111) sont voisins de ceux observés sur Si(100). Une perte énergétique des espèces au niveau des substrat entraîne une diminution de la texture (110) du Cobalt au détriment de l'apparition d'autres orientations cristallines. Ce phénomène apparaît à 0,70 Pa sur Si(100) et à 0,40 Pa sur Si(111). Dans ce dernier cas, il y a ainsi apparition d'une orientation (103) du Samarium dès 0,40 Pa.

Il ressort également de cette figure que l'intensité du pic (110) du Cobalt diminue quand la pression d'Argon augmente dans l'enceinte. De plus, le pic pouvant être le (103) du Samarium apparaît dès 0,40 Pa. Le choix du substrat a donc ici une importance fondamentale puisque les plans (002) du Cobalt ne diffractent pas sur Si(111). Les dépôts ont pourtant été réalisés simultanément sur Si(100) et Si(111) dans des conditions identiques. Même si l'objectif visé n'est ici pas atteint, la comparaison des figures IV.22 et IV.23 montre la nécessité de l'étude réalisée dans le paragraphe IV.1. La nature du substrat est donc un paramètre de dépôt déterminant quand la pression d'Argon augmente.

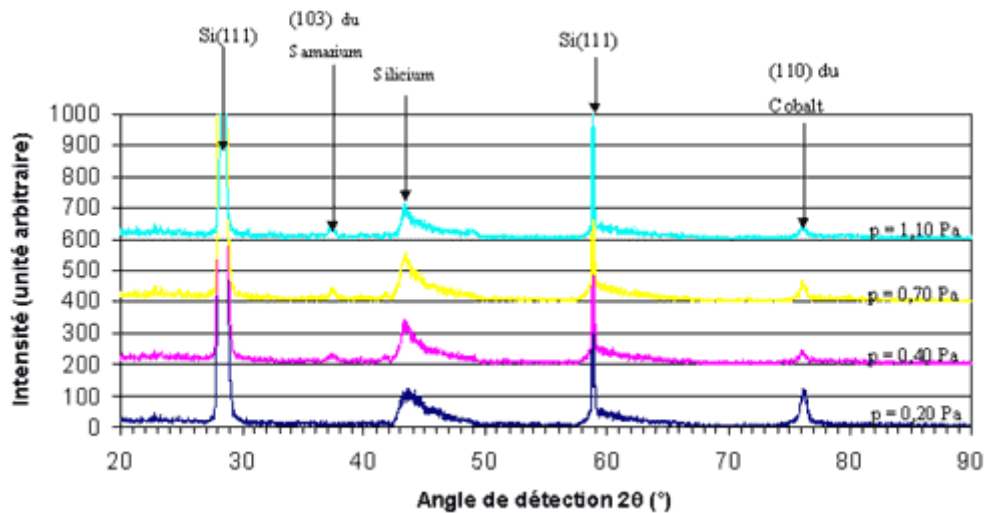


Figure IV. 23 : Influence de la pression d'Argon pour une température de substrats Si(111) de 500°C

### IV.3.3 Propriétés magnétiques

La figure IV.24 montre que les champs coercitifs augmentent de façon nette en fonction de la pression d'Argon dans l'enceinte. Ces résultats ne sont pas surprenants : si nous les comparons aux diagrammes de diffraction X, nous constatons que plus les couches deviennent polycristallines, plus les champ coercitifs augmentent. Ces évolutions ne traduisent que la difficulté, lors de la mesure, à retourner les moments magnétiques de la couche dans leur plan.

D'autre part, les aimantations à saturation sont, comme précédemment, du même ordre de grandeur que les valeurs théoriques (1 à 1,2 T) et ne montrent aucune évolution en fonction de la pression d'Argon.

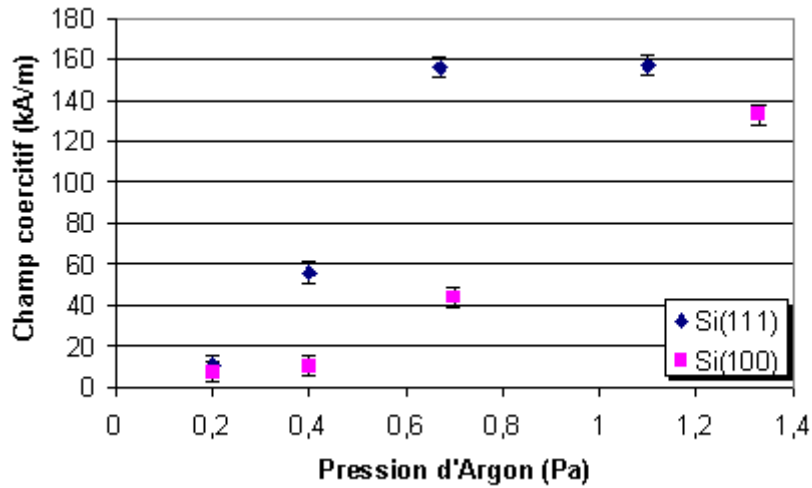


Figure IV. 24 : Evolution du champ coercitif des couches en fonction de la pression d'Argon dans l'enceinte à 500°C

#### IV.3.4 Analyses EDX

L'évolution des rapports atomiques Co/Sm en fonction de la pression d'Argon est représentée sur la figure IV.25.

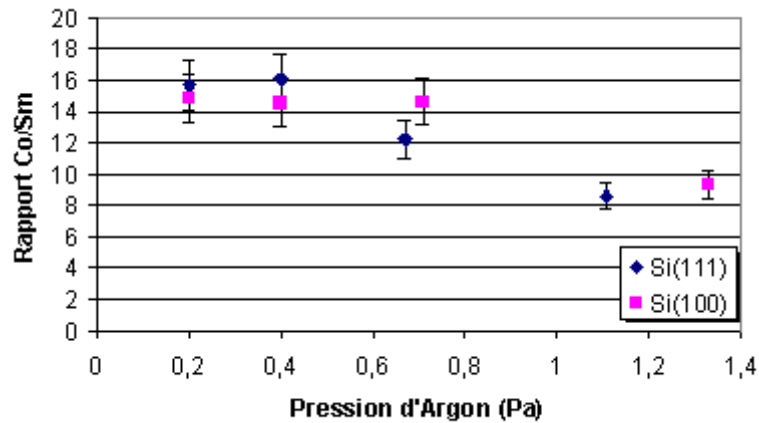


Figure IV. 25 : Evolution du rapport atomique Co/Sm en fonction de la pression d'Argon dans l'enceinte à 500°C

A partir d'une pression de 0,7 Pa, le rapport Co/Sm a tendance à diminuer : les couches semblent alors moins riches en Cobalt. Les atomes de Samarium éjectés de la cible

sont vraisemblablement moins sensibles aux collisions avec les ions d'Argon de l'enceinte que les atomes de Cobalt. Cela est dû à leur numéro atomique (62) très important devant celui de l'Argon (18). Les atomes d'Argon ont un effet de déflexion plus sensible sur les atomes de plus faible numéro atomique comme le Cobalt ( $Z = 27$ ). Les couches vont être par conséquent enrichies en Samarium.

Il est de toute façon difficile de conclure en raison de la plage de pressions étudiée : des essais à des pressions supérieures à 1,5 Pa permettraient de connaître la réelle évolution de ces rapports. Cependant, ces pressions n'étant pas usuelles en pulvérisation radiofréquence, cette étude n'a pas été réalisée.

#### IV.4 Influence de la vitesse de dépôt

La vitesse de dépôt est classiquement un paramètre influent en pulvérisation magnétron pour les dépôts métalliques [7]. Un exemple de résultat cristallographique est donné sur la figure IV.26.

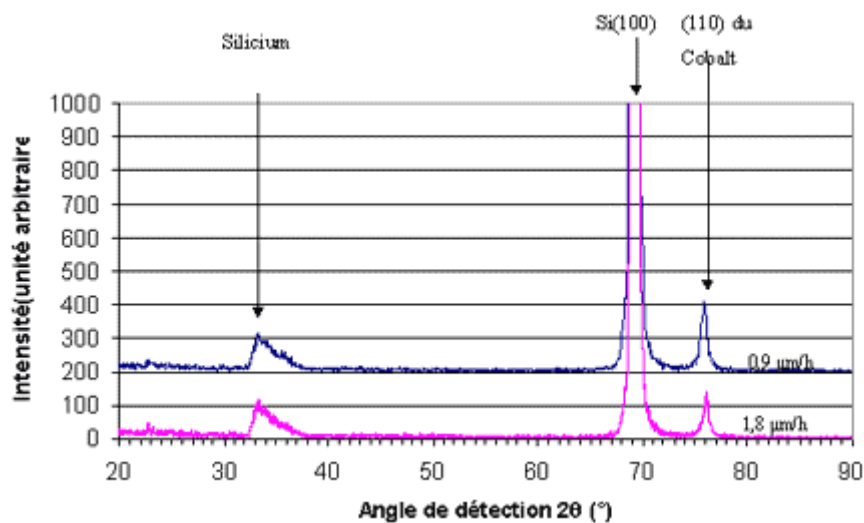


Figure IV. 26 : Influence de la vitesse de dépôt sur la cristallographie de la couche, sur Si(100) à 500°C et 0,4 Pa

Comme nous l'avons vu dans le paragraphe IV.2.1, la cible frittée de  $\text{SmCo}_5$  supporte une densité de puissance de  $4 \text{ W/cm}^2$  ; cette valeur correspond à une puissance incidente radiofréquence de 50 W et à une vitesse de dépôt de  $1,8 \text{ µm/h}$ . Nous avons donc choisi, pour

étudier l'influence de la vitesse de dépôt, de travailler à une vitesse de 1,8  $\mu\text{m/h}$  et à une vitesse deux fois plus faible (puissance 25 W). Sur la figure IV.26, les deux dépôts ont même épaisseur et ont été réalisés dans les mêmes conditions : la température de substrat vaut ici 500°C, la pression d'Argon 0,4 Pa et la distance cible-substrat 4 cm. On peut noter que le pic (110) du Cobalt apparaît plus intense pour une vitesse de dépôt de 0,9  $\mu\text{m/h}$ . Ces résultats sont paradoxaux : on pourrait en effet s'attendre à une cristallisation moins bonne quand la vitesse de dépôt diminue [8]. La puissance radiofréquence a une influence directe sur l'énergie des espèces déposées et donc sur leur mobilité à la surface des substrats. Les résultats obtenus contredisent cette hypothèse. Aucune modification notable des propriétés magnétiques n'a été observée. Les champs coercitifs obtenus sont du même ordre de grandeur (10,4 kA/m à 1,8  $\mu\text{m/h}$  et 8,7 à vitesse deux fois plus faible). Les compositions chimiques sont également identiques.

## IV.5 Influence de la distance cible-substrat

La distance cible-substrat agit directement sur l'énergie cinétique des atomes éjectés de la cible arrivant sur le substrat. En effet, plus la distance sera importante, plus il y aura de collisions élastiques entre un atome de matière et les entités du plasma (atomes d'Argon, ions, électrons ou atomes de la cible). On doit donc s'attendre à une cristallisation moins bonne quand la distance cible-substrat augmente.

Une étude a été réalisée pour trois distances imposées par le montage : 4, 5 et 6 cm (représentées en pointillés sur la figure IV.27). La température du substrat est de 500 °C et la pression d'Argon de 0,4 Pa. Les résultats cristallographiques obtenus sont présentés sur la figure IV.28.

Les résultats obtenus sont conformes à notre conjecture : la cristallisation diminue quand la distance cible-substrat augmente. En effet, le pic (110) du Cobalt présent pour  $d = 4$  cm disparaît quand  $d$  augmente.

En outre, les épaisseurs déposées diminuent de manière non linéaire ; à 4, 5 et 6 cm, les épaisseurs déposées sont respectivement 0,9, 0,6 et 0,5  $\mu\text{m}$ .

Les phénomènes observés sont dus à la conjugaison de l'éloignement de la cible et du rôle de diaphragme que joue le support du solénoïde (voir figure IV.27). Les atomes éjectés se

déposeront moins facilement sur les substrats si ces derniers sont masqués par le support du solénoïde.

Les champs coercitifs obtenus sont compris entre 11 et 20 kA/m et ne présentent pas d'évolution particulière en fonction de la distance cible-substrat. Les aimantations à saturation sont comprises en 0,9 et 1,2 Tesla.

De même, les rapports atomiques Co/Sm sont dans une gamme identique à celle rencontrée précédemment (figure IV.25) et ne sont pas tributaires de la distance cible-substrat.

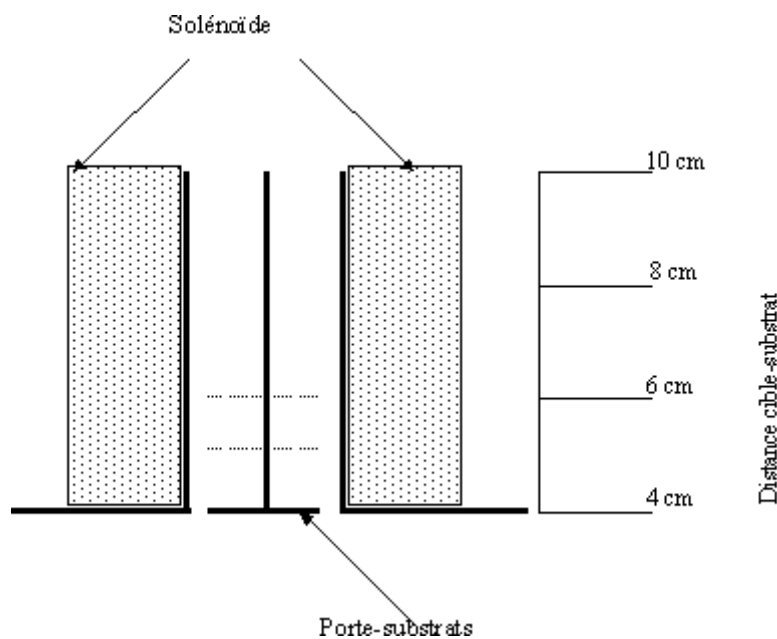


Figure IV. 27 : Vue en coupe du solénoïde et du porte-substrat

## IV.6 Influence d'un substrat en corindon

Nous avons vu dans le paragraphe IV.1.3 que le corindon (000 $\ell$ ) présente un accord de maille théorique excellent avec les trois principaux alliages magnétiques susceptibles d'être déposés. Une étude de l'influence de la température de substrat a été réalisée dans les conditions suivantes : la pression d'Argon vaut 0,4 Pa ; la distance cible-substrat vaut 4 cm. Les résultats cristallographiques sont présentés sur la figure IV.29.

Il ressort de ces diagrammes de diffraction que la cristallisation se fait extrêmement mal sur ce type de substrat. On peut seulement deviner une amorce de cristallisation (002) du

Cobalt à partir de 700°C. En outre, le résultat attendu n'est pas obtenu : aucun alliage Samarium-Cobalt n'est formé. Ces résultats montrent les limites des calculs d'adaptation de maille. En effet, les problèmes d'épitaxie ou de texturation font intervenir des phénomènes

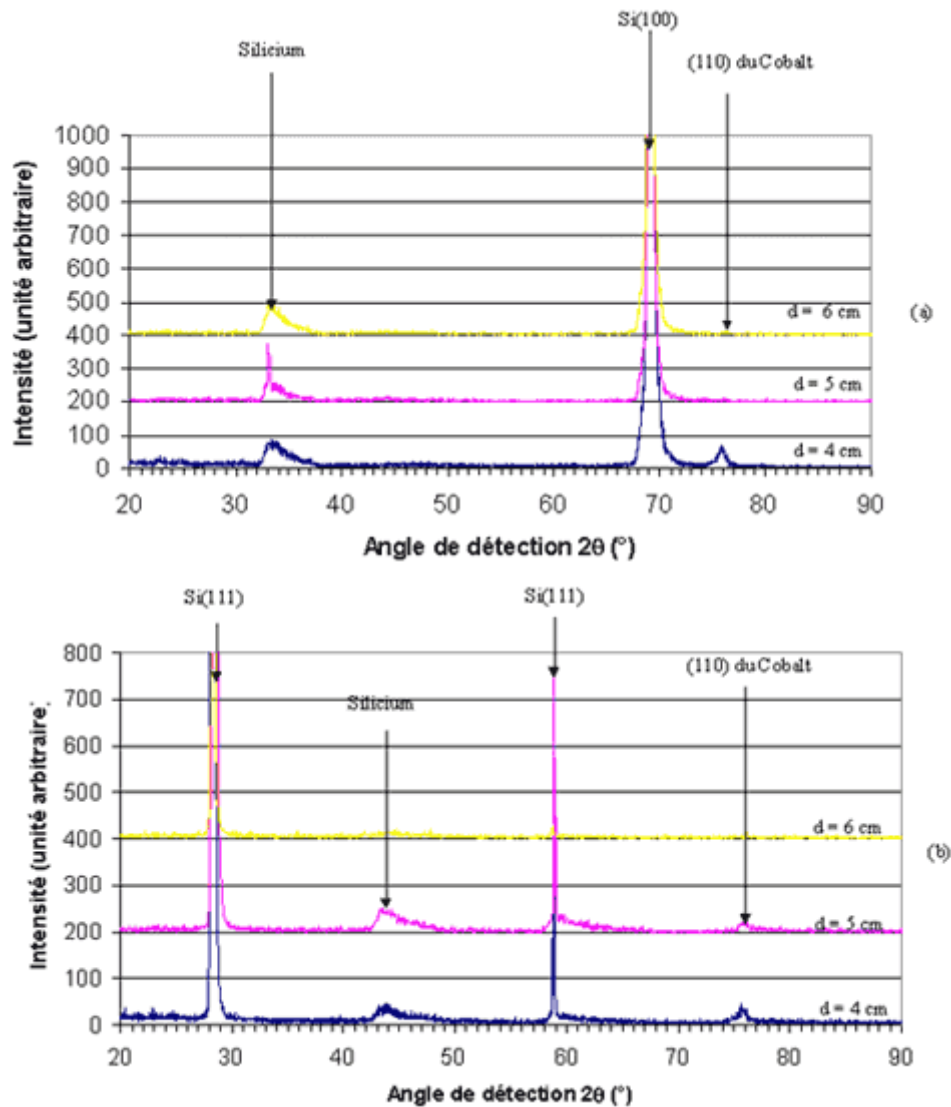


Figure IV. 28 : Influence de la distance cible-substrat à 500°C sur la cristallographie : (a) sur Si(100) ; (b) sur Si(111)

plus complexes que de simples considérations géométriques. En particulier, la coordinence peut jouer un rôle important dans la nature des liaisons de Van der Waals entre



atomes sur les premières couches atomiques et donc sur la croissance des couches [9]. Ces problèmes sont actuellement mal connus et les résultats peu prévisibles.

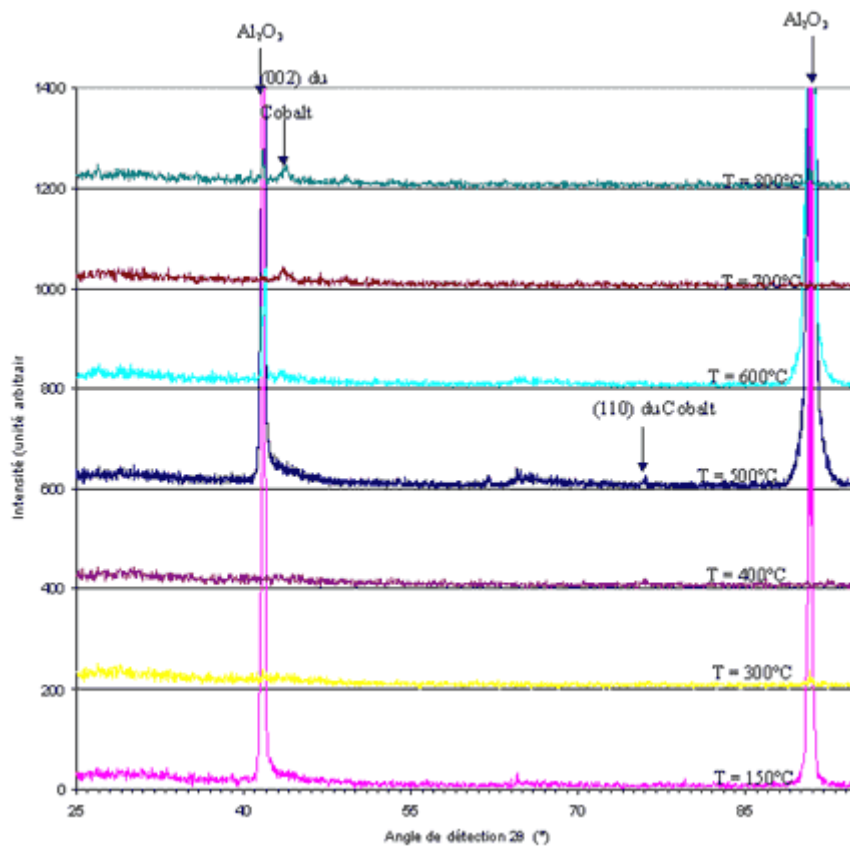


Figure IV. 29 : Résultats cristallographiques sur Corindon

#### IV.7 Influence d'une induction magnétique appliquée pendant le dépôt

Le dispositif de dépôt sous champ présenté dans le III.1 a pour but, en raison de l'application hyperfréquence que nous visons, de favoriser une croissance hors du plan des mailles hexagonales de  $\text{SmCo}_5$ ,  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$  et  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ , c'est-à-dire d'orienter leur axe de facile aimantation le long des lignes d'induction. De telles conditions de dépôts, associées à une symétrie de substrat convenable, sont théoriquement optimales pour atteindre notre objectif. Des dépôts ont ainsi été réalisés à 500°C avec  $P_{\text{Ar}} = 0,4 \text{ Pa}$  et  $d = 4 \text{ cm}$  sur les trois substrats étudiés à différentes valeurs d'induction.

#### IV.7.1 Substrats Si(100)

Les résultats cristallographiques obtenus sur Si(100) sont présentés sur la figure IV.30. La structure des couches se trouve légèrement modifiée par l'application du champ, ce qui se traduit essentiellement par l'apparition de deux pics, vers  $2\theta = 76^\circ$ , à la place du pic (110) du Cobalt aux inductions « faibles » (0,020 T). A l'inverse, aux inductions « fortes » (0,045 T), la texturation (110) est complètement détruite. En outre, aucune croissance (00 $\ell$ ) d'un des trois alliages n'est détectée.

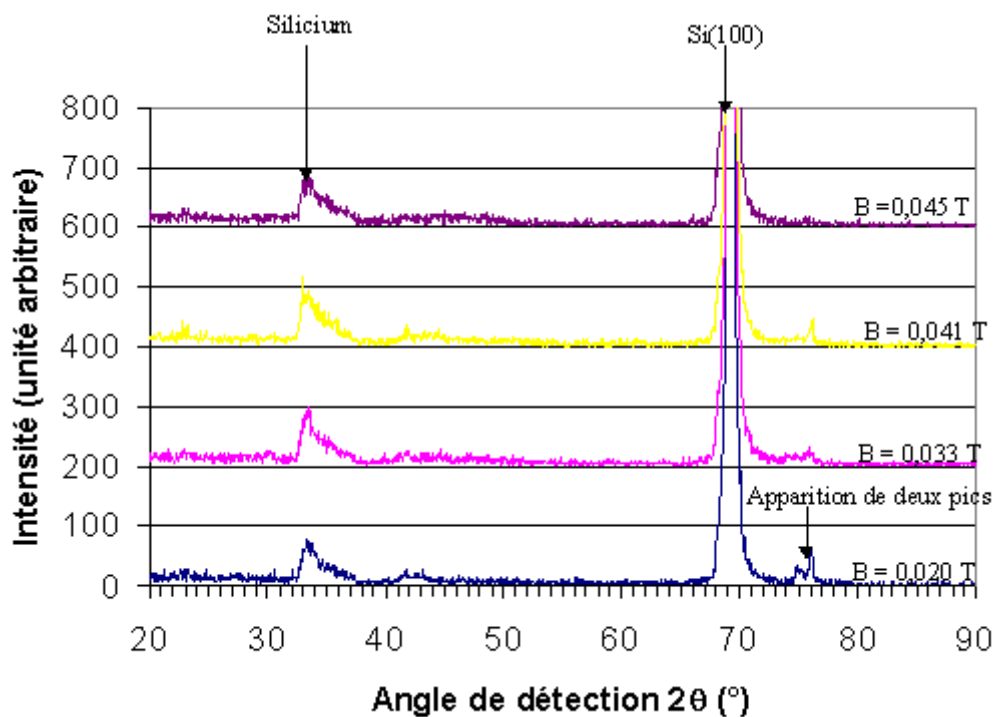


Figure IV. 30 : Résultats cristallographiques des dépôts sous champ sur Si(100)

D'un point de vue magnétique, l'application d'un champ pendant le dépôt n'entraîne pas l'amélioration du champ coercitif qui reste compris entre 17,3 et 54,6 kA/m, sans lien évident avec la valeur de l'induction appliquée. Les aimantations à saturation sont celles précédemment obtenues sans champ : elles varient entre 1 et 1,5 T.

La composition des dépôts n'est quant à elle pas influencée par l'induction appliquée : les rapports Co/Sm sont compris entre 8,5 et 11.

#### IV.7.2 Substrats Si(111)

La figure IV.31 regroupe les diagrammes de diffraction des dépôts pour différentes valeurs d'inductions.

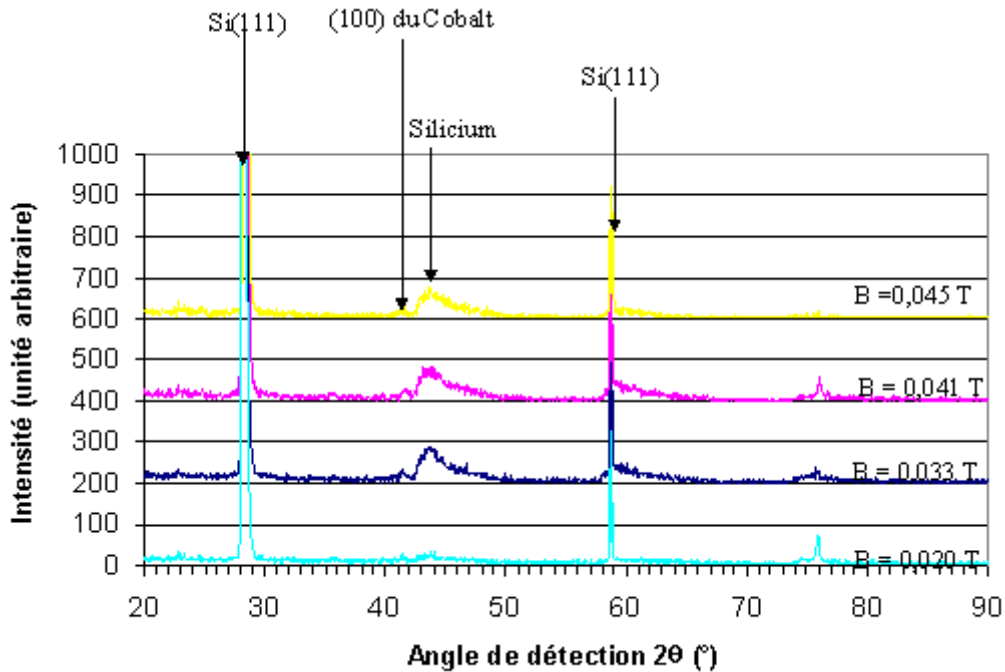


Figure IV. 31 : Influence d'une induction sur la structure des couches (substrats Si(111))

L'application d'une induction in situ sur Si(111) entraîne l'apparition de deux raies à  $76^\circ$  pour une induction inférieure ou égale à 0,041 T. Pour  $B = 0,045$  T, ces deux raies disparaissent. Dans le même temps, on peut noter l'existence d'un pic plus ou moins intense à  $2\theta = 41,7^\circ$  que l'on peut identifier comme étant le (100) du Cobalt.

Les champs coercitifs obtenus ne sont, là non plus, pas améliorés : ils varient entre 15,7 et 30,2 kA/m sans lien évident avec l'induction appliquée. Nous retrouvons les valeurs d'aimantation à saturation classiques comprises entre 1,1 et 1,3 T.

Les rapports atomiques dans les couches ne sont là encore pas notablement modifiés par rapport aux couches réalisées en l'absence de champ (entre 8 et 20).

### IV.7.3 Substrat corindon

Une étude a également été réalisée sur  $\alpha\text{-Al}_2\text{O}_3$  orientée (0001) à diverses températures de substrat, sur une gamme d'induction 0,020 – 0,045 Tesla. Aucune cristallisation particulière n'a été notée. Cependant, à 500°C sous une induction de 0,041 T, il apparaît plusieurs pics comme le montre la figure IV.32.

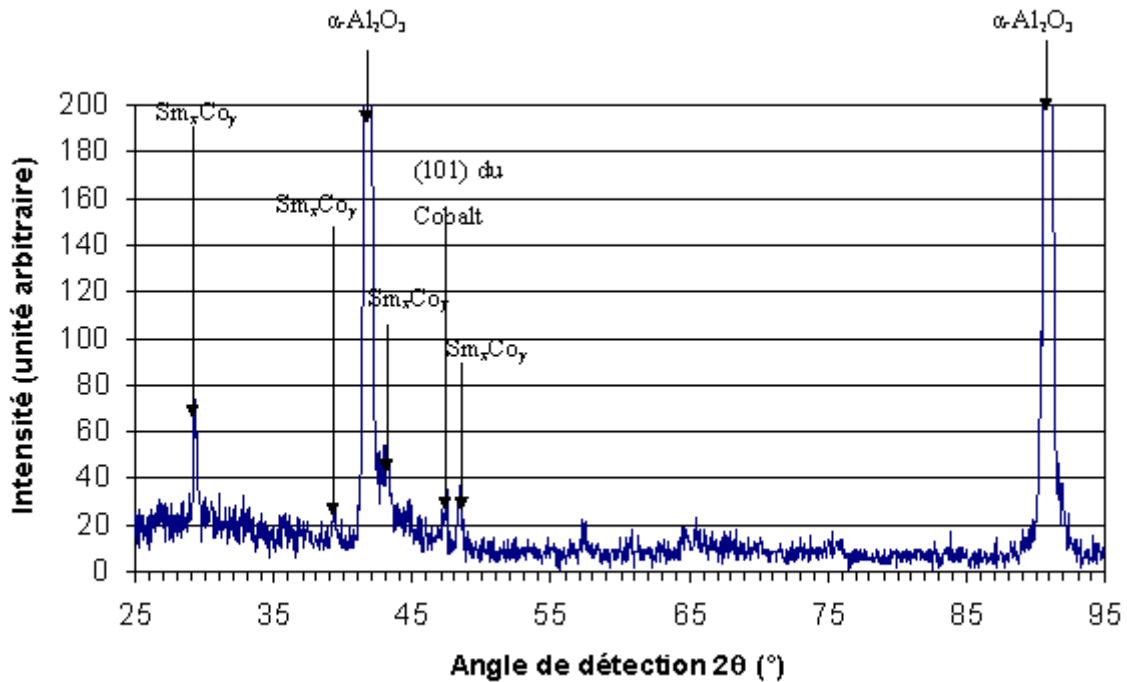


Figure IV. 32 : Résultats cristallographiques sur Corindon sous une induction de 0,041 T

Sur cette figure, les pics notés  $\text{Sm}_x\text{Co}_y$  ne correspondent pas aux phases connues  $\text{SmCo}_5$ ,  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$  ou  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  susceptibles d'être formées ni aux éléments Samarium, Cobalt et aux oxydes dérivés. Ce sont vraisemblablement des composés non répertoriés par le *Joint Committee on Powder Diffraction Standards* (JCPDS). L'identification est donc impossible.

L'influence du substrat est encore une fois confirmée, même si l'objectif visé n'est pas atteint.

Les analyses magnétiques n'ont pu être menées en raison des dimensions des substrats (5 mm par 5 mm) inadaptées à notre cellule de mesure. Les analyses de composition donnent des résultats identiques à ceux obtenus sur les substrats Silicium.

#### IV.7.4 Conclusions et discussion

Les résultats obtenus sur les trois types de substrat différents montrent qu'il n'a pas été possible, avec les moyens mis en jeu, d'orienter l'axe c des mailles d'alliage de Samarium-Cobalt perpendiculairement au plan des substrats. Trois conditions sont ici pourtant réunies :

- un choix de substrats en théorie bien adaptés, susceptibles de favoriser une épitaxie avec axe c perpendiculaire au plan (paragraphe IV.1.2),
- l'application d'un champ in situ lors de la phase de dépôt, connue comme efficace [5],
- l'utilisation d'une technique de dépôt, la pulvérisation radiofréquence magnétron, connue pour favoriser la mobilité des espèces à la surface des substrats [2, 6] et donc favoriser la cristallisation d'une part, et d'autre part la reproduction dans les couches des rapports stœchiométriques de la cible [6].

Une théorie [10] conteste pourtant l'efficacité de l'application d'un champ pendant la phase de dépôt : elle est fondée sur la comparaison entre l'énergie de Zeeman [10], qui caractérise l'interaction entre un moment magnétique et l'induction appliquée, d'une part, et l'agitation thermique d'autre part. Cette énergie vaut, pour un magnéton de Bohr  $\mu_B$  ( $\mu_B = 9,274 \cdot 10^{-24}$  J/T) :

$E_Z = \mu_B \mu_0 H$  où  $\mu_0 H = B$  vaut dans notre cas 0,04 T. L'énergie de Zeeman correspondante, qui mesure la faculté d'un magnéton de Bohr à s'orienter le long du champ appliqué, est égale à  $E_Z = 9,274 \cdot 10^{-24} \cdot 0,04 = 3,70 \cdot 10^{-25}$  J.

Cette valeur est à comparer à l'ordre de grandeur de l'agitation thermique à 500°C (773 K) par exemple :  $\frac{3}{2} k \cdot T = \frac{3}{2} \cdot 1,38 \cdot 10^{-23} \cdot 773 = 1,60 \cdot 10^{-20}$  J, qui est 40000 fois plus importante. Ainsi, cette théorie simple implique qu'il est très difficile d'obtenir une orientation dans un champ.

Cependant, nos résultats apportent une contradiction à cette conclusion. En effet, si l'orientation souhaitée n'a pas été obtenue, il n'en reste pas moins que l'apparition de deux raies, à la place du pic (110) du Cobalt et leur disparition aux inductions « élevées » indiquent qu'il y a bien une influence du champ appliqué sur les propriétés de la couche. Ces observations sont corroborées par des résultats obtenus par Marc Vérité [11].

## IV.8 Influence d'un recuit

La littérature montre que les recuits ont une influence nette sur la cristallisation des couches [12]. Nous avons opéré de deux façons : nous avons d'abord effectué des recuits lents en four classique puis nous avons tenté des pseudo-recuits in situ : après la phase de dépôt et un refroidissement lent, les substrats sont portés à haute température dans l'enceinte elle-même en présence d'une induction magnétique. Les résultats obtenus sont présentés ci-après.

### IV.8.1 Recuits lents en four classique

Les dépôts réalisés sur Si(111) et Si(100) ont été recuits dans les conditions suivantes :

- les rampes de montées et de descente valent 600°C/h,
- la température du palier est égale à 850°C,
- le palier dure 2 h,
- le gaz utilisé dans le four est l'Argon (à une pression de 1013 hPa) en raison de sa neutralité chimique.

#### IV.8.1.1 Dépôts sur Si(100)

##### IV.8.1.1.1 Aspect des dépôts après recuit

Le recuit induit sur la surface des dépôts des contraintes importantes. Il en résulte un aspect craquelé (figure IV.33) et une adhérence très fragilisée.

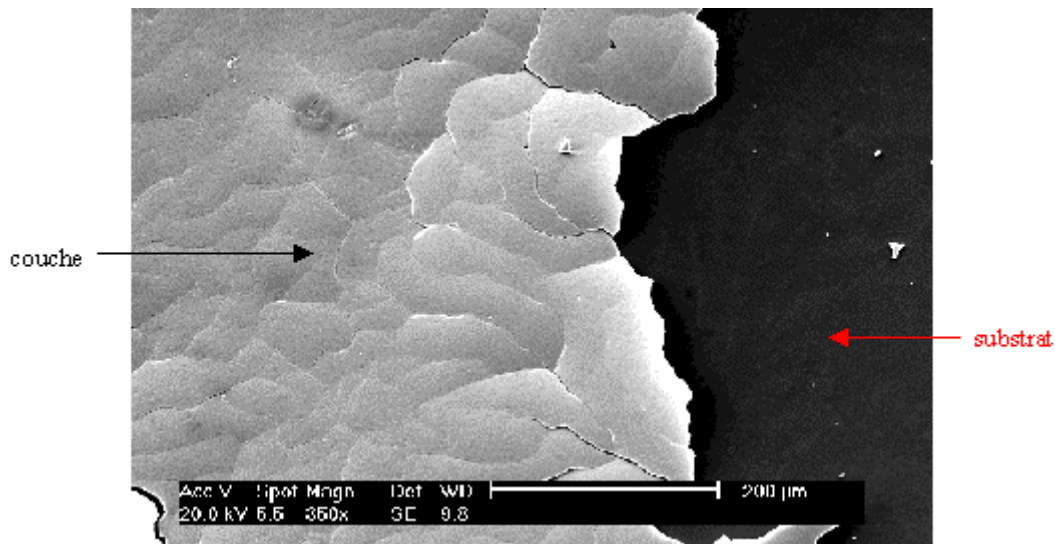


Figure IV. 33 : Etat typique des dépôts après recuit en four classique

Cette image est à comparer à la figure IV.19 représentant des dépôts non recuits, qui sont caractérisés par une grande homogénéité et l'absence de craquelures.

#### IV.8.1.1.2 Résultats cristallographiques

La figure IV.34 présente la structure de trois dépôts réalisés sur Si(100) à des températures de dépôt allant de 300 à 700°C ( $d = 4 \text{ cm}$  ;  $P_{\text{Ar}} = 0,4 \text{ Pa}$ ) et recuits ensemble. Nous avons reporté le diagramme de diffraction de la cible (les échelles d'intensité sont arbitraires). De ces diffractogrammes, nous pouvons conclure que :

- les recuits rendent les dépôts très polycristallins,
- seul un pic de la cible peut apparaître, le (111) ; il reste évidemment à valider ou invalider cette observation par des mesures magnétiques.

Après vérification avec les fiches JCPDS de Co, de Sm, de  $\text{SmCo}_5$ , de  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$ , et de  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ , et des différents composés à base de Samarium et de Cobalt nous constatons qu'aucune fiche n'est satisfaisante. Il semble par contre que nous ayons formé un mélange d'oxyde  $\text{CoO}$  et  $\text{Co}_3\text{O}_4$  dont les pics sont indiqués sur la figure IV.34. Deux pics à 46,5° et 48,5° n'ont pu être formellement identifiés. Peut-être sont-ils dus à une réaction avec le substrat.

#### IV.8.1.1.3 Propriétés magnétiques des dépôts après recuit

Les propriétés magnétiques de ces dépôts avant recuit ont été présentées dans le paragraphe IV.2.3. Après recuit, toutes les couches deviennent complètement amagnétiques, c'est-à-dire qu'aucune hystérésis n'est détectable. Nous sommes donc vraisemblablement en présence d'une solution solide amagnétique.

#### IV.8.1.1.4 Composition des couches recuites

Nous ne constatons aucune modification dans la composition des couches après recuit.

#### IV.8.1.2 Dépôts sur Si(111)

L'effet du recuit sur Si(111) est tout à fait comparable à celui observé sur Si(100). A titre d'exemple, la figure IV.35 montre cet effet sur deux dépôts réalisés dans les mêmes conditions (ici, à 300°C) mais sur les deux substrats Si(100) et Si(111). Aux autres températures de substrat, les résultats sont également comparables. Outre ceux des substrats, nous retrouvons les mêmes pics de diffraction. Tous les dépôts réalisés sur Si(111) et recuits sont également amagnétiques



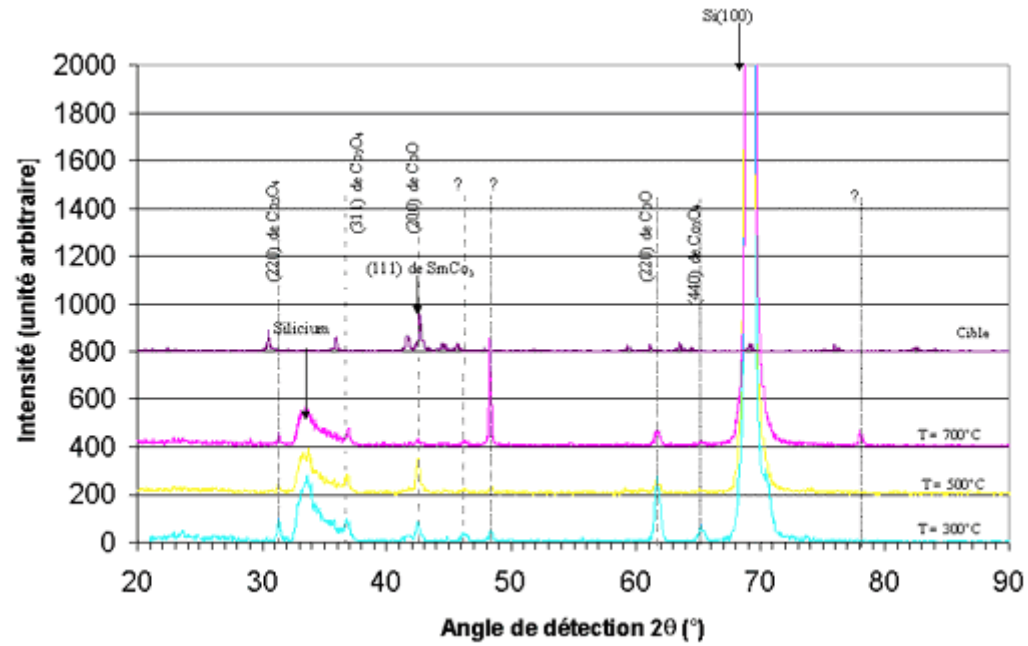


Figure IV. 34 : Influence d'un recuit sur la cristallographie des dépôts réalisés sur Si(100)

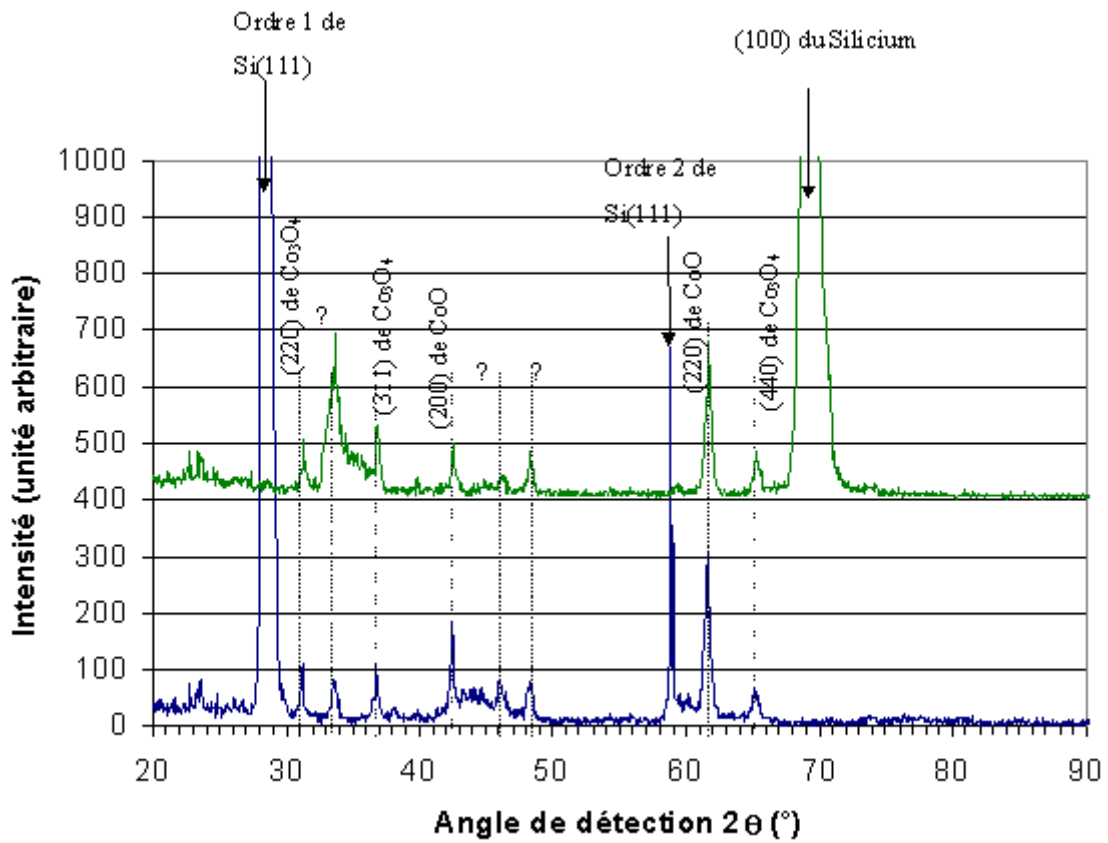


Figure IV. 35 : Effets d'un recuit sur deux dépôts réalisés à 300°C sur les substrats Si(100) et Si(111)

#### IV.8.1.3 Conclusions sur les recuits lents en four classique

Les recuits lents n'apparaissent pas comme la solution idéale pour de nombreuses raisons. Tout d'abord, tous les dépôts recuits deviennent amagnétiques, ce qui est évidemment rédhibitoire pour l'application visée. De plus, la maîtrise de la structure cristallographique n'est ici pas possible : les couches semblent être un mélange de phases, en particulier deux oxydes de Cobalt. Or nous souhaitons obtenir des dépôts texturés (et monocristallins si possible). Enfin, en raison également de l'application visée, les recuits sont à manier avec précaution : en technologie MMIC, la plupart des circuits craignent les élévations importantes de température.

#### IV.8.2 Pseudo-recuits sous champ in situ

Nous avons vu dans le paragraphe précédent que les recuits semblent rendre les couches polycristallines. Pour contrer cet effet, nous avons essayé d'appliquer une induction magnétique lors de la phase de recuit. Cela est technologiquement impossible dans le four classique utilisé précédemment. Nous avons donc tenté de recuire nos couches sous champ in situ, c'est-à-dire en chauffant nos couches sous champ à haute température, et ce après la phase de dépôt et un refroidissement sous vide.

Des essais ont été effectués à des températures de recuit de 600°C et 800°C pendant 50 minutes. Aucun effet cristallographique n'a malheureusement pu être induit, que ce soit sur Si(100) ou sur Si(111). Cela tient sans doute au mode de chauffage, à sa faible durée et à l'absence d'atmosphère gazeuse dans l'enceinte lors des pseudo-recuits. Il est donc très difficile de comparer les recuits et les pseudo-recuits.

## V Conclusion générale sur les dépôts de Samarium-Cobalt

Dans ce qui précède, nous avons montré que la maîtrise, sous forme de couches, des aimants de type Samarium-Cobalt est extrêmement difficile. Ce type de matériau n'est donc finalement pas un bon candidat pour « polariser » magnétiquement une couche de ferrite doux dans les dispositifs non-réciproques. Deux principales raisons expliquent les difficultés rencontrées.

Tout d'abord, le diagramme de phase Sm-Co, présenté dans le paragraphe III.1.2 de la première partie, est un diagramme fort complexe (et non encore définitif [13]). En particulier, les nombreuses solutions solides susceptibles d'être formées ne favorisent pas la maîtrise de la stœchiométrie des alliages. De plus, le fait que le principal aimant industriel,  $\text{SmCo}_5$ , soit métastable dans les conditions normales fait qu'une trempe est nécessaire lors de la réalisation des couches. Cette trempe est expérimentalement impossible dans les dépôts par pulvérisation radiofréquence magnétron en raison des conditions de pression particulières à cette technique de dépôt : on ne peut tremper sans casser le vide.

Ensuite, la technique de pulvérisation radiofréquence avec une seule cible ne peut favoriser des rapports atomiques identiques dans la cible et dans les couches. Nous avons vu en effet par l'analyse en dispersion en énergie des rayons X qu'il existe une nette pulvérisation préférentielle du Cobalt au détriment du Samarium. Cela est en contradiction avec certaines théories [2, 6] soutenant que les couches réalisées avec cette technique ont une composition voisine de celle de la cible. Une solution envisageable est la réalisation de cibles enrichies en Samarium, ce qui nécessite l'appui d'un laboratoire spécialisé dans la réalisation des alliages et capable d'élaborer, à partir de ces alliages, des cibles de pulvérisation de 5 cm de diamètre, suffisamment denses pour supporter la puissance radiofréquence. Une autre solution est la conception d'un dispositif de co-pulvérisation à deux cathodes, l'une de Samarium et l'autre de Cobalt. Le problème de la maîtrise des phases des alliages dans la couche restera cependant entier.

Ce travail a également permis de relancer le débat sur l'effet d'une induction magnétique in situ sur la croissance et l'orientation des couches. Si nous n'avons pas pu orienter les couches, nous avons cependant constaté qu'un effet incontestable sur la structure existe : les diagrammes de diffraction ont été fortement modifiés par un champ magnétique. Le but recherché n'est cependant pas atteint, ce qui pondère les conclusions précédentes.

Néanmoins, en l'état, il y a nécessité de rechercher d'autres solutions plus satisfaisantes pour atteindre nos objectifs. Dans la cinquième partie, nous allons présenter les résultats obtenus par pulvérisation d'une cible de Néodyme-Fer-Bore de composition nominale  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Ce matériau a l'avantage (voir paragraphe III.2.2 de la première partie), d'être stable à température ambiante.

## Bibliographie de la quatrième partie

[1] : YIM J.B., *Etude de la faisabilité d'une structure multicouche pour application aux antennes à polarisation circulaire*, Stage de D.E.A. d'électronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, 1999.

[2] : RICHARDT A. et DURAND A.-M., *Le vide, les couches minces, les couches dures*, Edition In Fine, 1994.

[3] : DU TREMOLET DE LACHEISSERIE E., *Magnétisme, Tome II : Matériaux et applications*, Collection Grenoble Sciences, 1999.

[4] : MARCHET P., *Caractérisation électrique et structurale de couches minces supraconductrices  $Yb_a_2Cu_3O_{7-x}$  élaborées par ablation laser ; corrélations entre conditions de dépôt, structure et propriétés*, Thèse de doctorat, n°29.1992, Université de Limoges, 1992.

[5] : JI Z.G., *Copper phthalocyanine film grown by vacuum deposition under magnetic field*, Thin Solid Films, 2002, 402, pp 79-82.

[6] : RICHARDT A. et DURAND A.-M., *La pratique du vide et des dépôts de couches minces*, Edition In Fine, 1995.

[7] : BRINEY E., *Contribution à l'intégration d'un circulateur HF : caractérisations magnétiques de couches de ferrite*, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, n° 42.2002, Université de Limoges, 2002.

[8] : GUILBAUD V., *Contribution à l'étude de la métallisation des isolants par pulvérisation cathodique magnétron*, Thèse de doctorat en électronique, n° 40.1992, Université de Limoges, 1992.

[9] : Communication personnelle de Madame D. Mercurio, laboratoire SPCTS, Université de Limoges.

[10] : Communication personnelle de Monsieur D. Givord, laboratoire Louis Néel, Grenoble.

[11] : VERITE M., *Etude de dépôts de ferrite pour dispositifs intégrés micro-ondes non réciproques*, Thèse de doctorat en électronique des hautes fréquences et optoélectronique, n° 50.2002, Université de Limoges, 2002.

[12] : YAMAZAKI Y., TAKANO K., TAKAMURA H et al., *Magnetic properties of SmCoCu and SmCoCu/Co exchange spring films with high coercivity*, Materials Transactions, 1998, 39, 2, pp 302-307.

[13] : CATALDO L., *Contribution à l'élaboration et à l'optimisation d'alliages magnétiques permanents Sm-Co-Cu-Fe-Zr*, Thèse de doctorat, n° d'ordre 206-96, Université Claude-Bernard-Lyon I, 1996.

Cinquième partie : étude des couches de  
Néodyme-Fer-Bore



Dans cette partie, nous présentons des travaux préliminaires sur une vingtaine de dépôts réalisés à partir d'une cible de Néodyme-Fer-Bore. Nous avons vu, dans l'étude bibliographique de la première partie, que, même s'il existe des problèmes comme l'oxydation, plusieurs articles relèvent des orientations cristallographiques avec l'axe c facile perpendiculaire au plan des couches. Cela nous est indispensable pour les applications que nous visons. Nous avons vu, de plus, que les résultats sur Samarium-Cobalt sont décevants.

Cette étude, même si elle n'est pas aussi systématique que celle menée sur les Samarium-Cobalt, permet de mettre en évidence l'influence de certains paramètres de dépôts sur les propriétés cristallographiques et magnétiques de couches de Néodyme-Fer-Bore.

Ces couches ont été réalisées dans l'enceinte de dépôt modifiée présentée sur la figure IV.4 de la quatrième partie. Les caractérisations ont été réalisées avec les moyens détaillés dans la troisième partie.

# I Cible de pulvérisation

Nous disposons d'une cible frittée, fournie par la société INLAND EUROPE, de diamètre 5 cm, d'épaisseur 3,25 mm et de composition nominale  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Ses principales caractéristiques sont détaillées dans la suite.

## I.1 Diagramme de diffraction de la cible

Le diagramme de diffraction est reproduit sur la figure V.1.

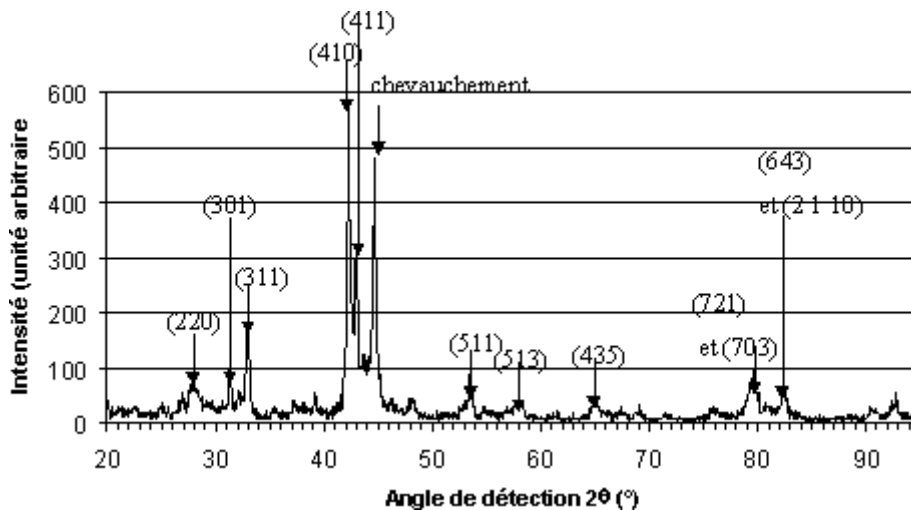


Figure V. 1 : Diagramme de diffraction de la cible de pulvérisation

Comme on peut l'observer, la structure de la cible ne présente pas d'orientation particulière : elle est polycristalline. Il nous est impossible d'identifier sur le diagramme de diffraction toutes les réflexions en raison de leur nombre et des différences d'intensités relatives. Dans le cas de fortes intensités fortement rapprochées, il peut y avoir chevauchement des pics. C'est le cas à  $44,5^\circ$  où les plans (331) et (006) diffractent.

Toutes les réflexions sont reportées, en fonction de l'angle  $2\theta$  de diffraction, sur la fiche JCPDS de  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  présentée sur la figure V.2 ; cette fiche servira de référence dans la suite de l'étude.

Les pics qui nous intéressent plus particulièrement, en raison de l'application visée, sont notamment le (004) à  $29,243^\circ$ , le (006) à  $44,500^\circ$  et le (008) à  $60,645^\circ$ . Ils ne sont pas visibles sur le diagramme de diffraction.

## I.2 Propriétés magnétiques

Il est inenvisageable de réaliser des mesures magnétiques sur la cible sans en prélever un échantillon. Cela la détruirait à coup sûr. Pour cette raison, les références utilisées sont celles de la littérature [1], présentées dans la première partie, c'est-à-dire des aimantations à saturation de 1,6 Tesla et des champs coercitifs d'environ 1200 kA/m. On peut considérer, au vu du diagramme de diffraction, que la cible est globalement isotrope : il en résulte, comme nous l'avons vu dans le paragraphe I.2 de la quatrième partie, que l'aimantation de la cible est égale à la moitié de l'aimantation du même matériau massif orienté, soit environ 0,8 Tesla.

## I.3 Analyses de composition

L'analyse en composition de la cible a donné des rapports atomiques Fe/Nd de 7,67 à 7,83 pour un rapport théorique de 7. Le Bore, en raison de son faible numéro atomique, n'est malheureusement pas détectable avec notre système. Nous avons vu dans la quatrième partie que l'erreur introduite par la mesure est de 10 %. Les rapports obtenus diffèrent d'au maximum 12 % par rapport au rapport théorique. Nous pouvons donc considérer que la cible a une composition nominale  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ .



Nous avons donc tenu compte, pour notre étude, des indications contenues dans la littérature ; les conditions expérimentales retenues sont les suivantes :

- une pression d'Argon de 0,8 Pa,
- une distance cible-substrat  $d$  de 4 cm, c'est-à-dire que les substrats sont situés à la base du solénoïde (voir paragraphe III.1 de la quatrième partie),
- une puissance radiofréquence de 50 W qui permet de protéger la cible des conflits thermiques entre plasma et refroidissements de la cathode (voir paragraphe IV.2.1 de la quatrième partie).

Dans l'ensemble de l'étude, les épaisseurs déposées sont de l'ordre de 1  $\mu\text{m}$  pour une durée de dépôt de 30 minutes. Les couches sont toutes adhérentes et résistent bien au test du « scotch ».

## II.1 Influence de la température du substrat

### II.1.1 Structure cristallographique des couches

Les résultats obtenus sur Silicium orientés (100) et (111) sont reportés sur les figures V.3 (a) et (b).

Sur les substrats Si(100), les diagrammes de diffraction montrent que toutes les couches déposées à une température de substrat inférieure à 500°C sont amorphes. A 500°C, il apparaît nettement un pic très intense à 44,65° pouvant être le (006) de  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , ce qui signifierait que l'axe de facile aimantation est perpendiculaire au plan de la couche : notre objectif serait alors atteint. Ce pic peut correspondre également à la raie (110) du fer. Seules les analyses magnétiques vont permettre de trancher.

Sur les substrats Si(111), le même phénomène est également observé à partir de 500°C. La finesse et l'intensité du pic à 44,65° apparaissent cependant moins nettes que dans le cas de Si(100) : le substrat semble donc avoir une légère influence sur la cristallisation. Aux températures inférieures à 500°C, il est important de noter que la bosse entre 40 et 45° sur Si(111) est l'artefact classique que nous avons déjà évoqué dans l'étude sur les Samarium-Cobalt : il ne s'agit donc vraisemblablement pas d'une amorce de cristallisation correspondant au pic à 44,65°. C'est ici aussi la connaissance des propriétés magnétiques des couches qui va permettre de conclure.

L'étude de l'influence de la température du substrat a été menée à une autre pression d'Argon (0,4 Pa) et a donné rigoureusement les mêmes résultats.

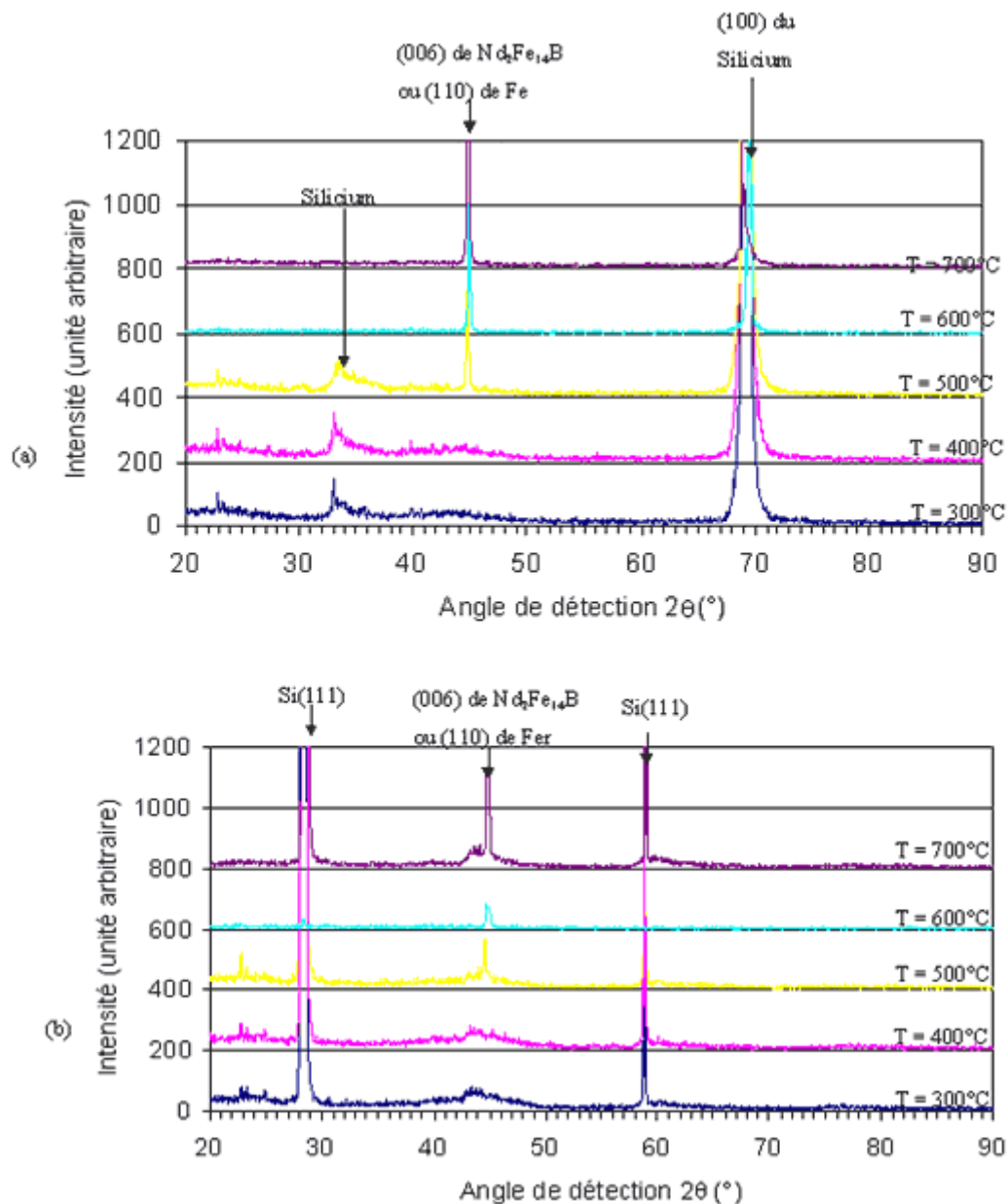


Figure V. 3 : Structure des couches en fonction de la température de substrat à une pression de 0,8 Pa sur (a) Si(100) et (b) Si(111)

## II.1.2 Propriétés magnétiques

Dans la suite, toutes les mesures magnétiques sont effectuées avec un champ appliqué parallèle au plan des couches. En effet, aucun signal n'est détecté avec un champ perpendiculaire.

La figure V.4 montre l'allure des cycles d'hystérésis obtenus dans la présente étude. C'est la signature typique d'un matériau doux : le champ coercitif de ce cycle (ici 3,5 kA/m) est en effet très faible par rapport à celui d'un aimant (plusieurs centaines à plusieurs milliers de kA/m). Les valeurs, reportées sur la figure V.5, n'excèdent pas quelques kA/m et l'incertitude absolue de 5 kA/m est ici très visible : les limites de sensibilité de l'appareil sont atteintes. On ne peut pas dégager de loi

particulière sur l'évolution des propriétés magnétiques lorsque la température augmente. Les résultats obtenus sur Si(100) et Si(111) sont du même ordre de grandeur.

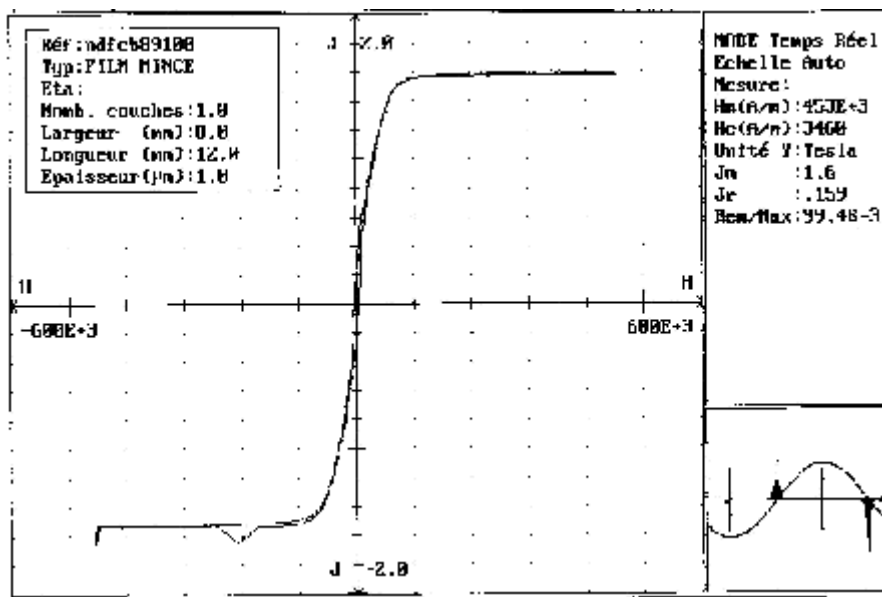


Figure V. 4: Cycle typique obtenu lors de l'étude en température à  $T = 600^{\circ}\text{C}$

Au vu de ces valeurs et de la forme du cycle d'hystérésis, il est clair que nous avons affaire à des matériaux doux : on n'est donc pas en présence de la phase magnétique  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  mais très certainement de la phase cubique centrée du fer (fiche JCPDS 87-721). Aussi, l'interrogation en suspens sur l'identité du pic à  $44,65^{\circ}$  est résolue : il s'agit très certainement du (110) du Fer.

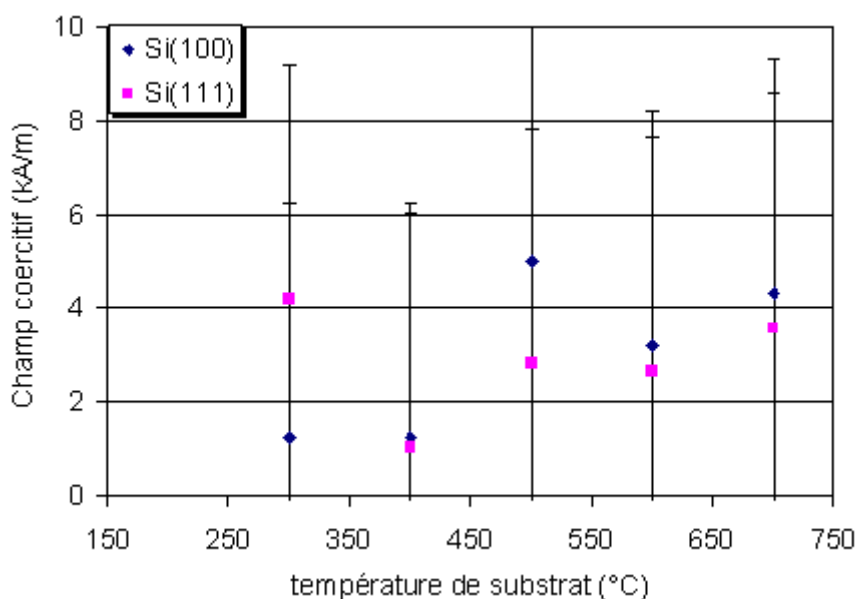


Figure V. 5 : Evolution du champ coercitif des couches en fonction de la température de substrat

### II.1.3 Composition des couches

L'évolution du rapport atomique Fe/Nd est reporté sur la figure V.6.

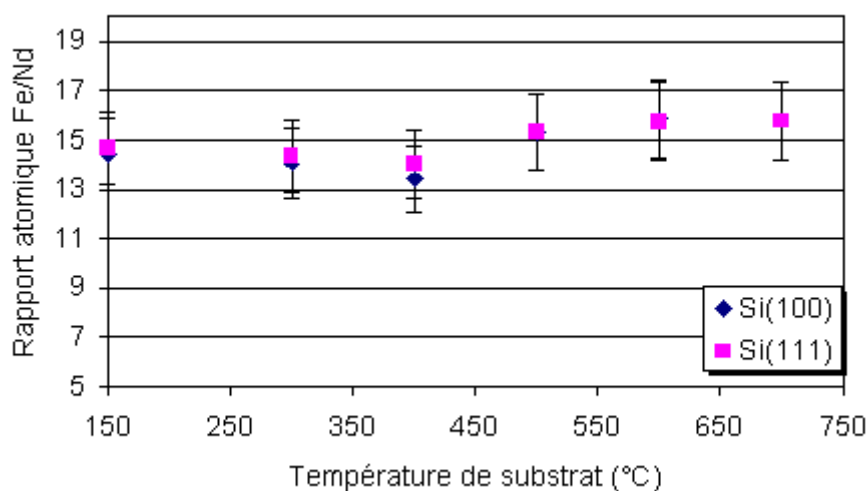


Figure V. 6 : Evolution du rapport atomique Fe/Nd en fonction de la température de substrat

Ces valeurs viennent confirmer les conjectures évoquées dans le paragraphe précédent. En effet, le rapport atomique Fe/Nd fluctue autour de la valeur 15 quand la température varie. Il y a donc un grand excès du Fer par rapport au Néodyme dans nos couches puisque le rapport stœchiométrique est 7. Il y a certainement un phénomène de pulvérisation préférentielle du Fer au détriment du Néodyme. L'efficacité de pulvérisation du Néodyme est inconnue et celle du Fer vaut  $42,9 \text{ nm} \cdot \text{min}^{-1}$  sous Argon [3] (énergie des ions Argon : 500 eV ; densité de courant dans la cible :  $1 \text{ mA/cm}^2$ ). La quantité de Bore n'étant malheureusement pas connue, il est difficile de déterminer précisément la composition des couches.

## II.2 Influence de la pression de pulvérisation

Afin d'étudier l'influence de la pression de pulvérisation, nous avons choisi de déposer nos couches à une température de substrat de  $500^\circ\text{C}$ , uniquement sur Si(100), puisque c'est la température la plus faible à partir de laquelle les couches semblent bien cristallisées sur ce substrat.

### II.2.1 Structure des couches

Les diagrammes de diffraction obtenus sont représentés sur la figure V.7. En plus du pic (100) du Silicium et de l'artefact à  $2\theta = 34^\circ$ , seul apparaît le pic (110) du Fer à  $44,65^\circ$ . A une pression d'Argon de 1,3 Pa, ce pic disparaît : les dépôts sont alors complètement amorphes. L'interprétation que nous avançons est la suivante : à cette pression (élevée par rapport aux pressions



de pulvérisation usuelles), les libres parcours moyens des atomes éjectés de la cible se trouvent fortement diminués. Leur énergie cinétique s'en trouve amoindrie à l'arrivée sur les substrats et, par conséquent, leur mobilité à la surface des substrats, ce qui empêche d'amorcer la cristallisation.

## II.2.2 Propriétés magnétiques des couches

Lorsque la pression d'Argon varie entre 0,4 et 1,3 Pa, le champ coercitif est sensiblement constant, de l'ordre de 3 kA/m, ce qui traduit le caractère doux de ces couches. Il est intéressant de noter qu'à 1,3 Pa, pression à laquelle on a observé la disparition du pic (110) du Fer, aucune modification particulière des propriétés magnétiques n'apparaît. Cela peut s'expliquer par l'extrême douceur des couches : pour ces valeurs de champs coercitifs très faibles, les limites de l'hystérésismètre sont proches. Il est vraisemblable qu'une couche douce texturée de Fer et une couche amorphe (c'est-à-dire pour laquelle aucun pic n'apparaît après analyse au diffractomètre Bragg-Brentano) composée également d'atomes de Fer présentent des cycles d'hystérésis que l'on ne peut pas différencier.

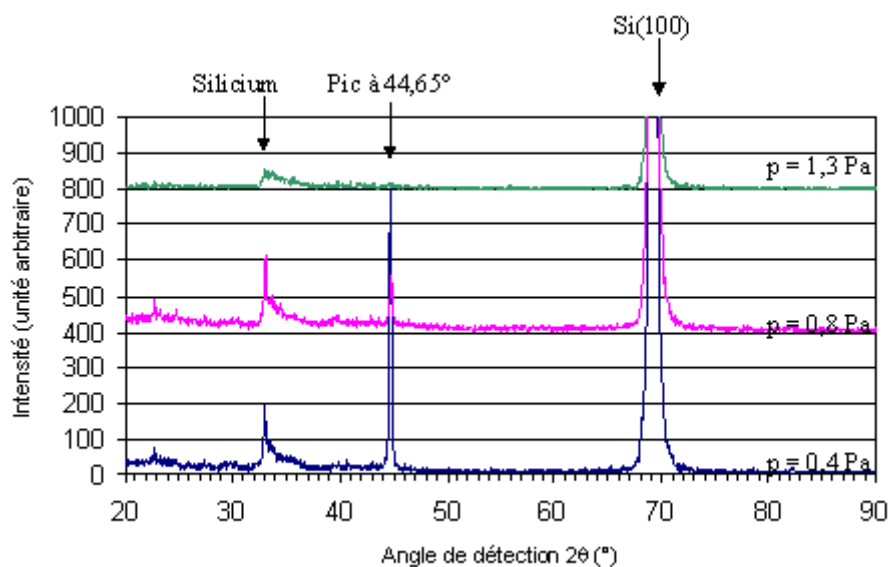


Figure V. 7 : Diagrammes de diffraction des dépôts en fonction de la pression d'Argon

## II.2.3 Composition des couches

Le rapport atomique Fe/Nd évolue peu lorsque la pression d'Argon augmente et reste compris entre 14 et 15.

## II.3 Influence d'une induction pendant le dépôt

Dans ce paragraphe, nous présentons l'étude de l'influence d'une induction in situ pendant la phase de dépôt sur les propriétés des couches. Cette étude n'est là encore pas exhaustive.

### II.3.1 Structure des couches

La figure V.8 montre l'effet d'une induction de 0,045 Tesla sur la structure des couches déposées sur Si(100) (a) et Si(111) (b) pour une température de substrat de 500°C et une pression de 0,8 Pa. Les conclusions sont les mêmes que dans le cas des couches de Samarium-Cobalt : l'effet d'une induction, même si ce n'est pas celui recherché, est incontestable. Il apparaît sur les deux types de substrats un élargissement net du pic (110) du Fer à 44,65° : la couche est donc dépendante de l'induction appliquée. Là encore, malgré l'agitation thermique, le champ et les moments magnétiques interagissent (voir paragraphe IV.7.4 de la quatrième partie).

L'influence d'une induction in situ a également été testée sur des dépôts réalisés à des températures inférieures à 500°C (300 et 400°C) : les dépôts, amorphes en l'absence d'induction, sont toujours amorphes sous une induction de 0,045T. L'induction in situ n'agit sur la structure cristallographique des couches qu'à partir d'une température seuil (ici 500°C).

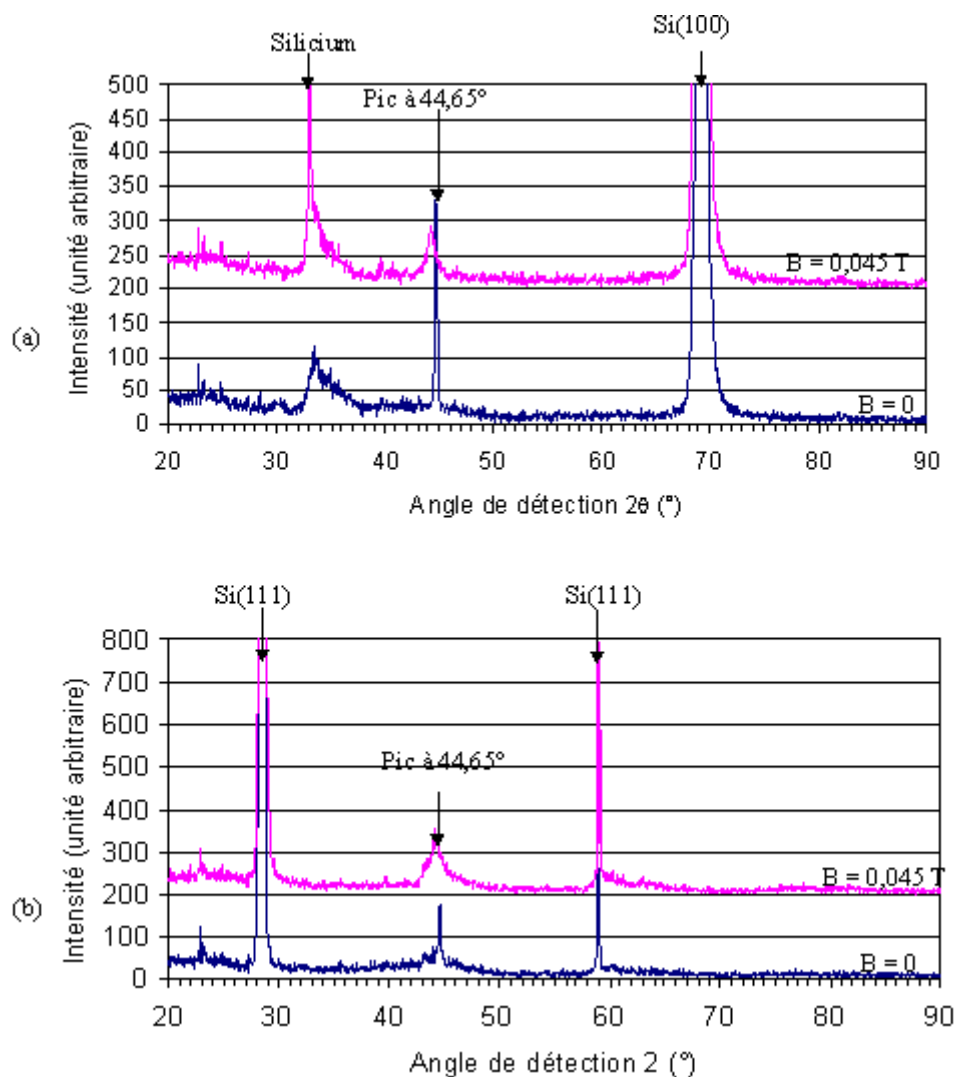


Figure V. 8 :Effet d'une induction de 0,045 T à 500°C et 0,8 Pa sur Si(100) (a) et Si(111) (b)

### II.3.2 Propriétés magnétiques et composition des couches réalisées sous induction

Les propriétés magnétiques des dépôts réalisés sous une induction de 0,045 T ne diffèrent pas de celles des mêmes dépôts réalisés en l'absence de champ. Les champs coercitifs sont toujours très faibles (de l'ordre de 4 kA/m). Les aimantations à saturation varient entre 1 et 1,2 Tesla.

Le rapport atomique Fe/Nd n'est quant à lui pas modifié par une induction de 0,045 T. Il reste compris entre 14 et 15.

### II.4 Effet de l'épaisseur des couches sur leur structure

Il est intéressant de savoir si la texture d'une couche peut être modifiée lorsque son épaisseur augmente. En effet, dans certains cas comme celui de couches ferroélectriques réalisées dans l'équipe C2M [4], deux couches réalisées dans les mêmes conditions expérimentales, mais d'épaisseurs différentes, peuvent ne pas avoir la même structure. Ce phénomène a une importance

cruciale dans les dispositifs hyperfréquences intégrés où l'épaisseur et la structure des couches sont fondamentales.

Nous avons donc réalisé, sur Si(100) et Si(111), deux séries de dépôts à une pression d'Argon de 0,8 Pa, une température de substrat de 500°C et une puissance radiofréquence de 50 W mais à des durées de 15 minutes, 30 minutes, 1 heure et 3 heures (figure V.9). Les épaisseurs respectivement déposées sont : 0,5  $\mu\text{m}$ , 1,0  $\mu\text{m}$ , 1,9  $\mu\text{m}$  et 5,6  $\mu\text{m}$ .

Ces diagrammes de diffraction montrent, sur les deux types de substrat, que pour une épaisseur de 0,5  $\mu\text{m}$ , les dépôts sont amorphes. Dans une gamme d'épaisseur de 1  $\mu\text{m}$  à 5,6  $\mu\text{m}$ , les couches présentent l'orientation (110) du Fer quel que soit le type de substrat. Le caractère amorphe des couches de faible épaisseur est sans doute dû à des problèmes d'adaptation entre les paramètres de maille du Fer et ceux du Silicium.

En ce qui concerne les champs coercitifs, aucune évolution notable n'est observée lorsque l'épaisseur augmente : ils restent très faibles, de l'ordre de 3 kA/m sur Si(100) et 2 kA/m sur Si(111). Tous les dépôts sont donc extrêmement doux d'un point de vue magnétique. Les aimantations à saturation varient entre 1,2 et 1,5 Tesla.

Enfin, la composition du dépôt n'évolue pas lorsque l'épaisseur augmente.

## II.5 Effet d'un recuit

Nous avons vu dans la première partie que les recuits favorisent généralement l'apparition de la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  [5] : quelques essais de recuit ont été réalisés sur des couches présentant le

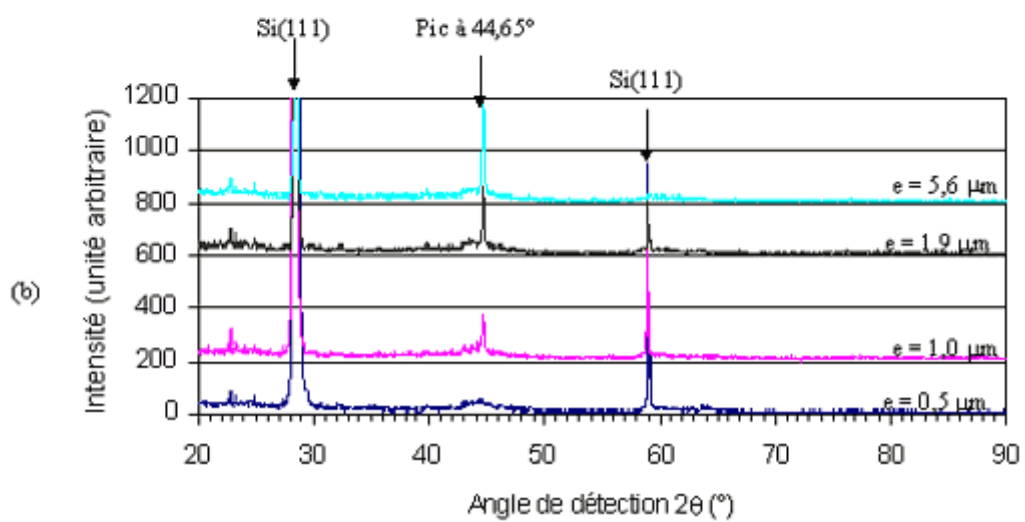
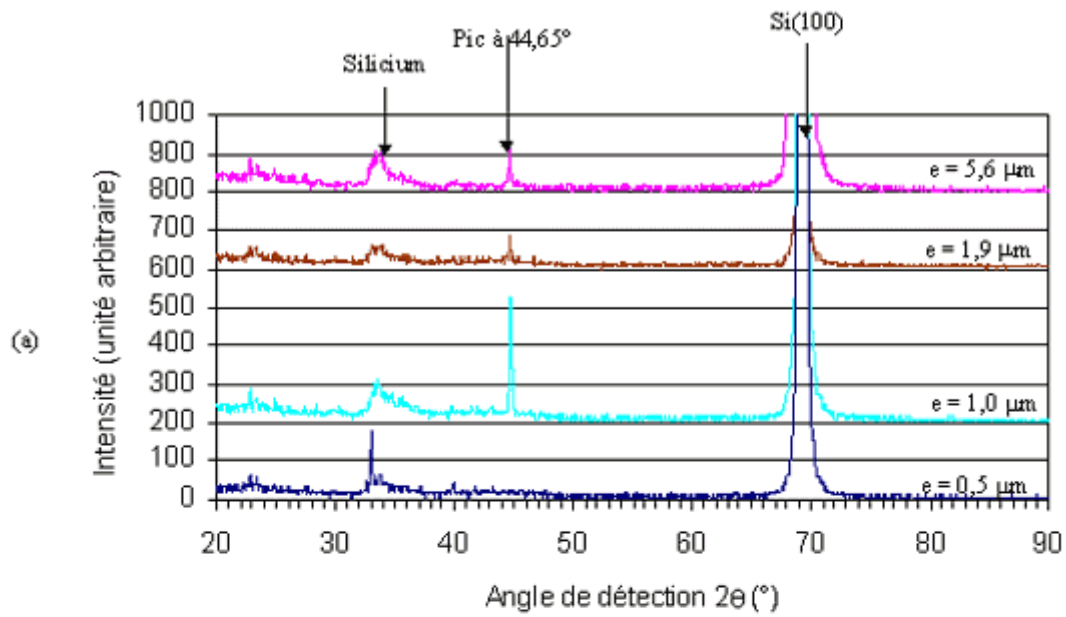


Figure V. 9 : Evolution de la structure des couches en fonction de leur épaisseur  $e$  sur (a) Si(100) et (b) Si(111)

pic (110) du Fer à 44,65°.

Les conditions que nous avons choisies sont les suivantes :

- une rampe de montée en température de 10°C par minute,
- un palier à 850°C d'une durée de 2 heures,
- une rampe de descente de 10°C par minute.

L'atmosphère gazeuse du four est de l'Azote sous une pression de 1015 hPa : le choix de ce gaz s'explique par sa relative neutralité vis-à-vis du Fer, du Néodyme et du Bore.

Les analyses cristallographiques sont présentés sur la figure V.10 pour des dépôts réalisés sur deux substrats différents, à une pression de 0,8 Pa et une température de substrat de 500°C, puis recuits. Il ressort tout d'abord que les cristallisations sont comparables sur Si(100) et Si(111) : tous les pics repérés par des pointillés sont présents sur les deux types de substrat. Leur intervention est donc ici négligeable sur la cristallisation des dépôts recuits. La confrontation de ces pics avec les fiches JCPDS montre qu'ils sont tous caractéristiques de l'Hématite, de formule  $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$  : nous sommes donc en présence d'Hématite polycristalline puisque la majeure partie des pics théoriques apparaissent ici. Cela est corroboré par la coloration rougeâtre des dépôts recuits : c'est la signature bien connue des Oxydes de Fer. Une adsorption d'atomes d'Oxygène a vraisemblablement eu lieu avant l'introduction des couches dans le four de recuit ; le Fer, le Néodyme et la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  sont connus pour craindre l'oxydation de l'air (voir le paragraphe III.2 de la première partie).

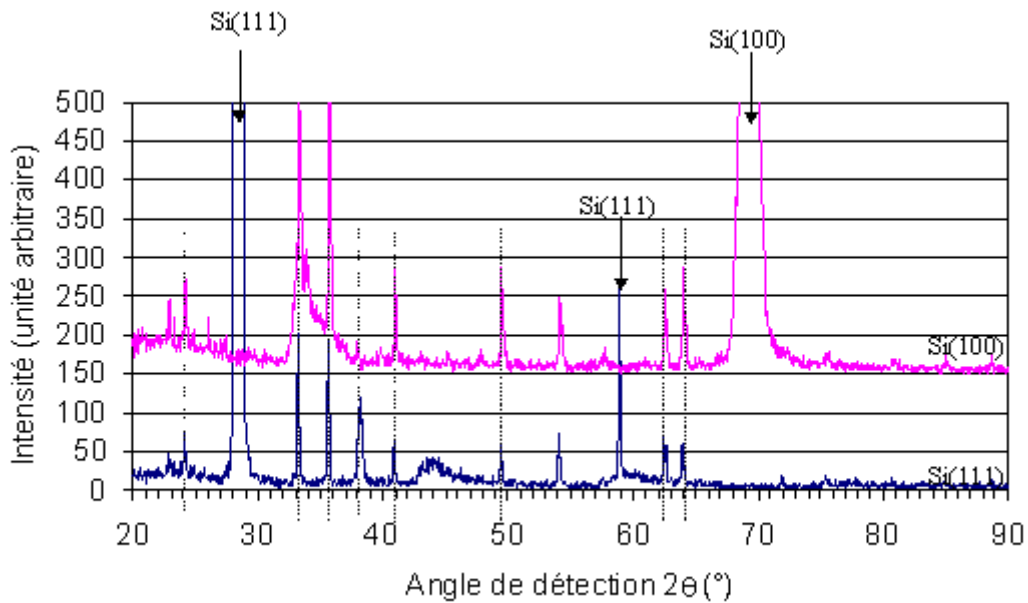


Figure V. 10 : Effet des recuits sur Si(100) et Si(111)

Tous les dépôts recuits sont complètement amagnétiques.

Le rapport Fe/Nd n'a pas varié après le recuit : il reste compris entre 14 et 15. La formation de l'Hématite au détriment de la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  conforte les conclusions déjà avancées dans le paragraphe III.1.3 : il y a un défaut de Néodyme dans les couches par rapport au Fer. En effet, même la phase parasite  $\text{FeNdO}_3$ , mise en évidence par J.B Yim [6] n'est pas formée ici.

Au vu des résultats précédents, il apparaît que la phase recherchée,  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , est absente des couches réalisées. Ce phénomène peut s'expliquer de plusieurs manières :

- soit par un défaut de Néodyme dans les couches, ce qui empêcherait la formation de la phase recherchée, hypothèse précédemment avancée dans le cas des Samarium-Cobalt,
- soit par une réaction des atomes de la couche avec le substrat de Silicium [7],
- soit par un phénomène d'oxydation d'une des espèces pulvérisées lors de la phase de dépôt, ce qui empêcherait alors les atomes de Néodyme de se lier au substrat.

La première hypothèse peut être vérifiée par l'utilisation d'une cible de pulvérisation enrichie en Néodyme. La seconde peut l'être de deux façons : soit par l'utilisation d'une sous-couche faisant office de barrière de diffusion entre substrat et couche magnétique, soit en réalisant des dépôts directement sur des substrats métalliques. Enfin, on peut réduire les problèmes d'oxydation, mis en évidence dans le paragraphe II.5 par la formation de l'Hématite après recuit, en réalisant les dépôts à température ambiante. Une température de substrat élevée favorise en effet ces phénomènes d'oxydation [7].

## II.6 Dépôts complémentaires

Dans la suite, nous allons tout d'abord présenter les résultats obtenus sur des substrats de Molybdène et de Silicium recouvert d'une sous-couche de Titane. La cible utilisée est celle décrite dans le paragraphe I, de composition  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Pour les raisons évoquées ci-dessus, les dépôts sont réalisés à température ambiante.

Le problème possible du défaut de Néodyme dans les couches ne peut, quant à lui, être tranché qu'à l'aide d'une cible enrichie en Néodyme. Les résultats seront présentés dans le paragraphe II.6.2.

### II.6.1 Dépôts avec la cible frittée de $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$

Les dépôts présentés dans ce paragraphe ont été réalisés dans les conditions suivantes :

- une température de substrat de 23°C au début du dépôt, afin d'atténuer l'oxydation,
- une puissance de pulvérisation de 50 W,
- une distance cible-substrat de 4 cm,
- une pression d'Argon de 0,8 Pa,
- une durée de dépôt de 30 minutes, ce qui donne une épaisseur d'environ 1  $\mu\text{m}$ .

Afin de favoriser la formation de la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , tous les échantillons ont subi un recuit rapide dans un four à lampe (palier à 620°C pendant une minute ; rampe de montée de 820°C par minute ; rampe de descente de 280°C par minute).



### II.6.1.1 Dépôts sur un substrat de Molybdène

Les couches déposées sur Molybdène sont toutes amorphes avant recuit. Le rapport atomique Fe/Nd vaut avant et après recuit 12. L'excès de Fer au détriment du Néodyme précédemment constaté est remis en évidence ici.

Après un recuit rapide, La phase alpha du Fer est formée (figure V.11). Contrairement aux résultats exposés dans le paragraphe II.5, il ressort donc qu'un recuit rapide précédé d'un dépôt à température ambiante n'entraîne pas la formation de phases oxydées du Fer (l'Hématite par exemple). Nous mettons donc ici en évidence qu'il est préférable de faire les dépôts à température ambiante pour éviter l'oxydation du Fer.

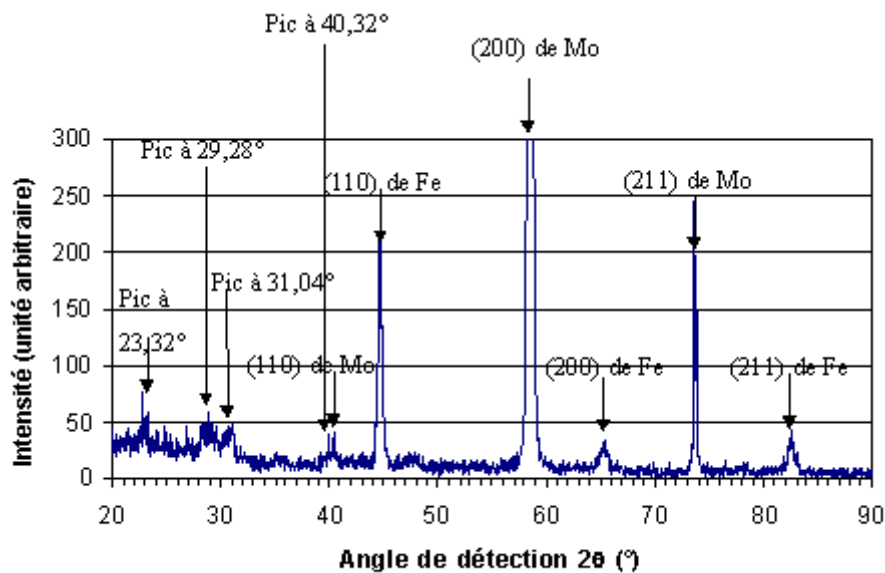


Figure V. 11 : Effet d'un recuit rapide sur une couche déposée sur Molybdène

Il ressort également de ce diagramme quatre pics, difficiles à identifier formellement, à  $23,32^\circ$ ,  $29,28^\circ$ ,  $31,04^\circ$  et  $40,32^\circ$ . La première raie ne peut être identifiée formellement. Les trois dernières pourraient correspondre à trois raies fortes de  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , respectivement les réflexions (004), (301) et (322). Il est cependant très difficile de trancher en raison de la faiblesse du signal. En outre, les décalages observés par rapport à la fiche JCPDS (figure V.2) pourraient s'expliquer par des substitutions atomiques (du Molybdène par exemple) au sein de la maille  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ .

La réponse magnétique de ces couches, mesurée en appliquant un champ parallèlement à son plan, est caractérisée par un champ coercitif de 6 kA/m et par une

aimantation à saturation de 1,4 T : ce sont les caractéristiques du Fer dont le cycle a été présenté précédemment sur la figure V.4.

### II.6.1.2 Dépôts sur Silicium avec sous-couche de Titane

Afin de valider ou d'invalider l'hypothèse d'une réaction entre la couche et le Silicium, nous avons déposé une couche de 200 nm de Titane par pulvérisation cathodique magnétron. Ce choix s'explique par les propriétés anti-diffusion de ce métal ainsi que par son effet favorable sur le champ coercitif des couches [8].

Avant recuit, toutes les couches sont amorphes. Le rapport Fe/Nd est égal à 12 avant et après recuit.

Le diagramme de diffraction des couches recuites est présenté sur la figure V.12, comparé aux résultats obtenus sur Molybdène.

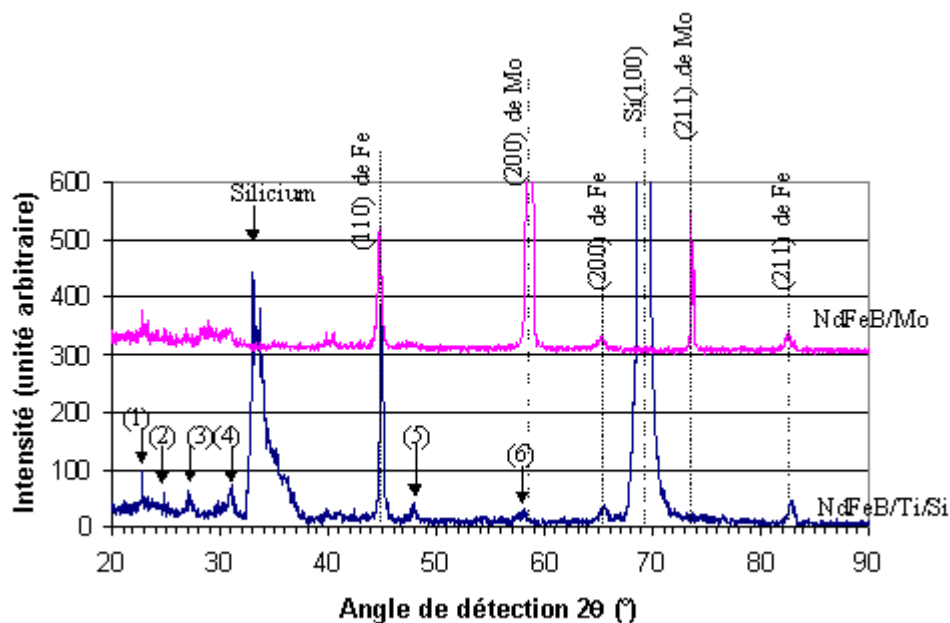


Figure V. 12 : Comparaison des résultats cristallographiques obtenus sur Mo et sur Si/Ti

Ce diagramme appelle deux remarques. Tout d'abord, il apparaît un décalage angulaire  $2\theta = 0,2^\circ$  entre les trois pics théoriques (110), (200) et (211) du Fer et les pics obtenus à  $44,8^\circ$ ,  $65,8^\circ$  et  $83^\circ$  sur NdFeB/Ti/Si. Il en résulte que dans ce cas, ce n'est pas du Fer alpha qui est formé mais une solution solide très proche où quelques atomes de Fer ont été

substitués. Ensuite, des amorces de pics, notés (1), (2), et des pics notés (3), (4), (5) et (6) apparaissent respectivement à  $22,88^\circ$ ,  $24,84^\circ$ ,  $27,44^\circ$ ,  $31,36^\circ$ ,  $48,32^\circ$  et  $58,64^\circ$ . Le pic (1) pourrait être la réflexion intense (210) de  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , le (2) la (202), le (4) la (301), le (5) la (413) et le (6) la (513). Le pic (3) n'est lui pas identifiable formellement. Le décalage observé entre la fiche JCPDS (figure V.2) pourrait s'expliquer par une substitution atomique dans la maille  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ .

L'hystérésis obtenue parallèlement à la couche est caractéristique d'un matériau doux avec un champ coercitif de  $1,3 \text{ kA/m}$  et une aimantation à saturation de  $1 \text{ T}$ . Ces résultats sont très voisins de ceux obtenus sur un substrat de Molybdène.

### II.6.1.3 Dépôts directement sur Silicium (100)

Les propriétés des dépôts réalisés directement sur Si(100) ont déjà été étudiées précédemment dans les paragraphes II.1 à II.4. Les résultats présentés ci-dessous sont complémentaires, puisqu'ils concernent des dépôts réalisés à température ambiante puis ayant subi un recuit en four à lampes. Ces dépôts sont tous amorphes avant recuit et amagnétiques avant et après recuit. La figure V.13 représente le diagramme de diffraction des couches obtenues.

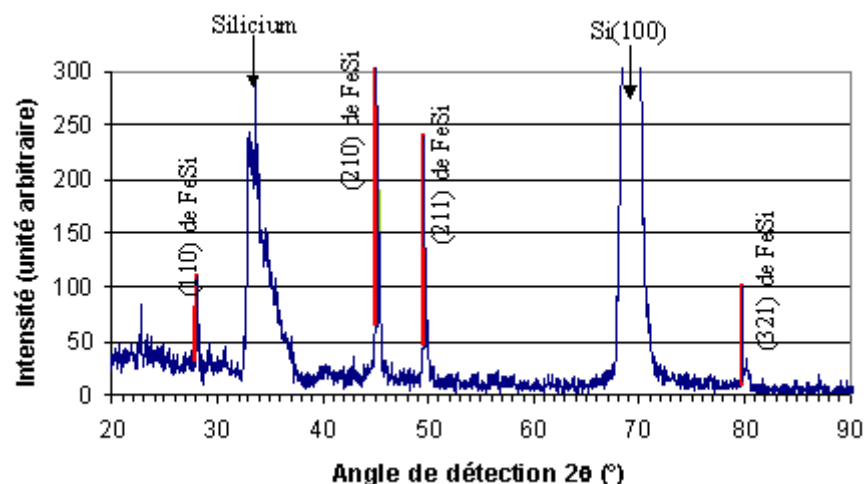


Figure V. 13 : Effet d'un recuit rapide sur une couche déposée sur Si(100)

Sur la figure V.13 sont superposées les positions angulaires et les intensités relatives des pics (110), (210), (211) et (321) du composé FeSi (fiche JCPDS 38-1397). Les intensités

relatives des pics obtenus sont du même ordre que ceux de la fiche. Un décalage angulaire constant de l'ordre de  $0,2^\circ$ . Il semble donc que le composé formé soit une solution solide FeSi non parfaitement stœchiométrique. Il y a donc manifestement une réaction entre le Fer et le Silicium. Cela est corroboré par les analyses magnétiques puisque les couches recuites sont amagnétiques, ce qui est normal car FeSi n'est pas un composé magnétique.

Les différentes couches réalisées présentant à nouveau un net déficit de Néodyme, il nous a semblé nécessaire, pour favoriser la formation de la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , d'utiliser une cible enrichie en Néodyme. Les résultats obtenus sont présentés dans le paragraphe II.6.2.

## II.6.2 Dépôts avec une cible enrichie en Néodyme

La cible de pulvérisation dont nous disposons a été fabriquée par le laboratoire Louis Néel de Grenoble. Sa composition nominale, lors du coulage, est  $\text{Nd}_{16,9}\text{Fe}_{75,3}\text{B}_{7,8}$ , ce qui donne un rapport atomique Fe/Nd de 4,45. Les calculs, effectués en extrapolant les résultats obtenus avec la cible initiale (paragraphe I), montrent, en effet, que cette composition permet d'espérer un rapport stœchiométrique Fe/Nd de 7 dans les couches.

Contrairement à la cible précédente, celle-ci n'est pas frittée mais coulée, ce qui augmente sa résistance à la température et aux chocs.

Une analyse EDX a donné un rapport Fe/Nd égal à 5,7.

L'utilisation de cette cible a pour conséquence une mauvaise d'adhérence des couches lors des dépôts sur des substrats à  $23^\circ\text{C}$ . Une température de  $200^\circ\text{C}$  permet de s'affranchir de ce problème. Les résultats présentés dans la suite ont tous été réalisés ainsi.

### II.6.2.1 Dépôts sur un substrat de Molybdène

Comme dans les cas précédents, les dépôts réalisés sur Molybdène sont amorphes avant recuit. Leur composition reste voisine de 6 avant et après recuit. La figure V.14 représente la structure de la couche après recuit.

Ce diagramme de diffraction montre la présence dans la couche de la phase alpha du Fer en coexistence avec une autre phase. Quatre pics la caractérisent, à  $27,16^\circ$ ,  $29,88^\circ$ ,  $30,92^\circ$  et  $40,14^\circ$ . Elle peut correspondre à la diffraction des plans respectifs (212), (221), (301) et (322) de  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Un diagramme de diffraction plus ciblé sur ces angles et plus intense peut

permettre de conclure (figure V.15). Les pics théoriques (021), (113) et (01-4) de  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$  y sont reportés ; ils sont décalés par rapport aux pics expérimentaux de  $0,1^\circ$  environ. Il semble donc que la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$  coexiste. Par soucis de clarté, nous n'avons pas identifié les autres pics.

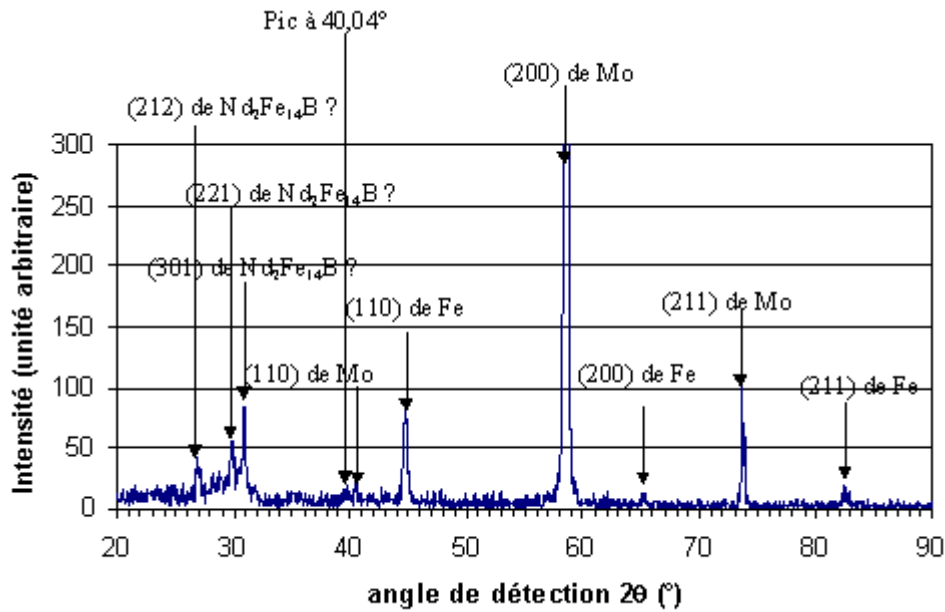


Figure V. 14 : Effet d'un recuit rapide sur une couche déposée sur Molybdène

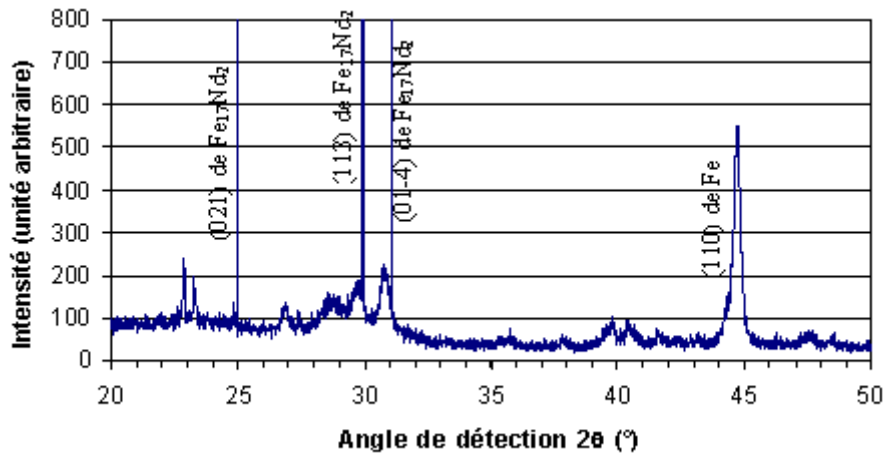


Figure V. 15 : Diffractogramme résolu dans la gamme angulaire 20-50°

Le cycle d'hystérésis de ces couches recuites laisse apparaître, lors de la mesure parallèle au plan de la couche, une faible coercivité (figure V.16).

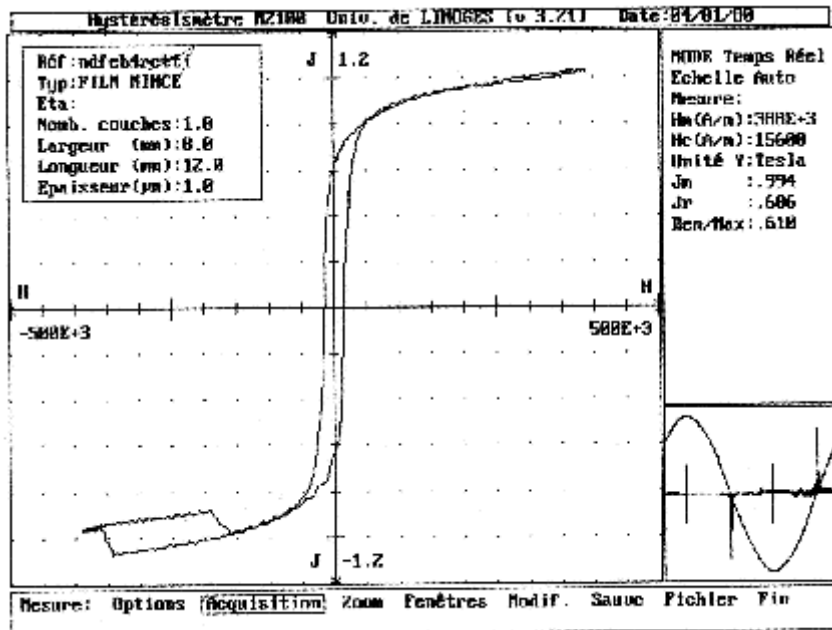


Figure V. 16 : Cycle d’hystérésis obtenu sur des couches recuites sur substrat de Molybdène

Peut-être est-elle due à la phase  $Nd_2Fe_{14}B$  présente dans la couche. Un champ coercitif de 15 kA/m a ainsi pu être obtenu, ce qui n’avait jamais pu être obtenu auparavant avec la cible frittée de  $Nd_2Fe_{14}B$ . Cette valeur reste cependant très insuffisante au vu des applications envisagées.

### II.6.2.2 Dépôt sur un substrat de Silicium recouvert d’une sous-couche de Titane

Les couches réalisées sur Si(100) recouvert d’une sous-couche de 200 nm sont toutes amorphes avant recuit. Le rapport atomique Fe/Nd est voisin de 6 avant et après recuit. La figure V.17 représente le diagramme de diffraction, comparé aux résultats obtenus sur substrat Molybdène. Sur Ti/Si, le Fer semble moins bien cristallisé et impur, ce qui est mis en évidence par la déformation du pic (110) et par l’absence du (211). Par ailleurs, les trois pics (212), (221) et (301) semblent être présents sur Ti/Si comme sur Mo. Un diagramme dix fois plus résolu de la plage  $20-50^\circ$  conduit aux mêmes conclusions que sur substrat Molybdène. La phase  $Nd_2Fe_{17}$  semble être présente dans la couche.

Les analyses magnétiques donnent une hystérésis imparfaite en raison de la faiblesse du signal détecté par l’hystérésismètre. Le champ coercitif des couches recuites est proche de 18 kA/m mais l’incertitude sur la mesure est plus grande que précédemment.

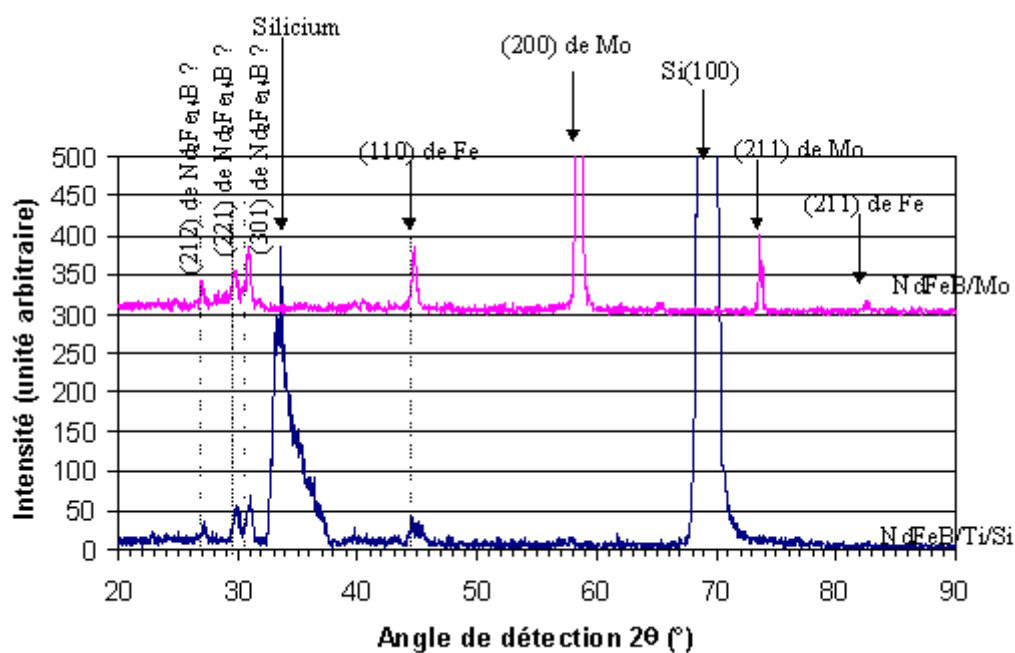


Figure V. 17 : Comparaison de l'effet d'un recuit entre NdFeB/Mo et NdFeB/Ti/Si

### II.6.2.3 Dépôts directement sur Silicium (100)

Les couches réalisées directement sur Si(100) sont toutes amagnétiques avant et après recuit.

Les couches sont toutes amorphes avant recuit ; l'effet structural d'un recuit rapide est présenté sur la figure V.18.

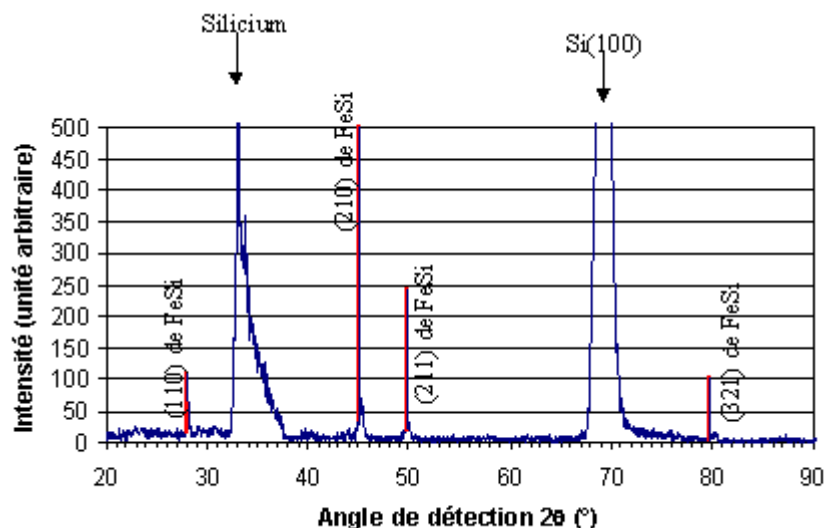


Figure V. 18 : Effet d'un recuit sur une couche déposée directement sur Si(100)

La fiche 38-1397 du composé FeSi a été superposée sur le diagramme. En particulier, les pics (210) et (211) (respectivement à  $45,1^\circ$  et  $49,7^\circ$ ) semblent correspondre assez bien à deux réflexions de la couche, tant d'un point de vue des intensités relatives que des angles de détection. L'hypothèse, déjà évoquée au paragraphe II.6.3, d'une réaction entre le Fer et le substrat, semble être ici confirmée. Elle explique en particulier l'amagnétisme des couches recuites.

#### II.6.2.4 Dépôts sur Silicium avec sur-couche et sous couche de Titane

Afin de minimiser d'avantage le problème de l'oxydation des couches, nous avons déposé sur la couche de Néodyme-Fer-Bore une sur-couche de Titane. Les caractéristiques de la multicouche sont les suivantes :

- un substrat de Silicium orienté (100),
- une sous-couche de Titane de 200 nm,
- une couche de NdFeB de 1,9 micron déposée en soixante minutes, à  $200^\circ\text{C}$  pendant les dix premières minutes puis en l'absence de chauffage les cinquante dernières,
- une sur-couche de Titane, réalisée ex-situ, de 200 nm.

L'ensemble est ensuite recuit dans les conditions décrites au paragraphe II.6.1.

La figure V.19 représente le diagramme de diffraction de la multicouche obtenue. Sur cette figure sont reportées la trace des fiches JCPDS de  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  (n°86-0273, en rouge) et



$\text{Nd}_2\text{O}_3$  (n°41-1089, en bleu). Une nette coïncidence apparaît entre certains pics du diffractogramme et les pics théoriques  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , avec un décalage constant de  $0,2^\circ$  environ. Nous en avons identifié qu'une partie par soucis de clarté. Pour plus d'information, le lecteur pourra se référer à la figure V.2 et à l'annexe IV.

Ce diagramme montre clairement que la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  est présente dans la couche, en coexistence avec de l'oxyde de Néodyme  $\text{Nd}_2\text{O}_3$ . Le comportement magnétique de cette multicouche est représentée sur la figure V.20, où le champ appliqué est parallèle à la surface de l'échantillon. La forme du cycle est ovoïde, ce qui signifie que l'échantillon n'est pas saturé avec le champ appliqué (6 kA/m). En outre, les valeurs d'aimantation sont différentes en champ négatif et positif, ce qui traduit la difficulté à retourner les grains magnétiques déjà aimantés à saturation. Ces deux comportements sont caractéristiques d'un matériau très dur, ce qui confirme la présence de la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Des analyses magnétiques en VSM peuvent permettre de tracer le cycle complet de cette multicouche.

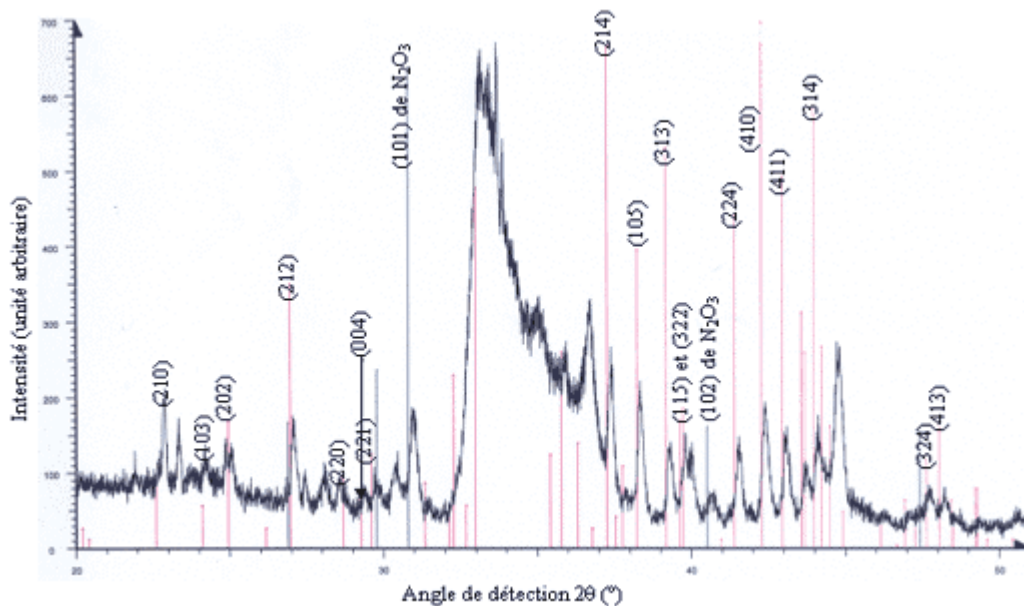


Figure V. 19 : Diagramme de diffraction de la multi-couche Si/Ti/ $\text{NdFeB}$ /Ti

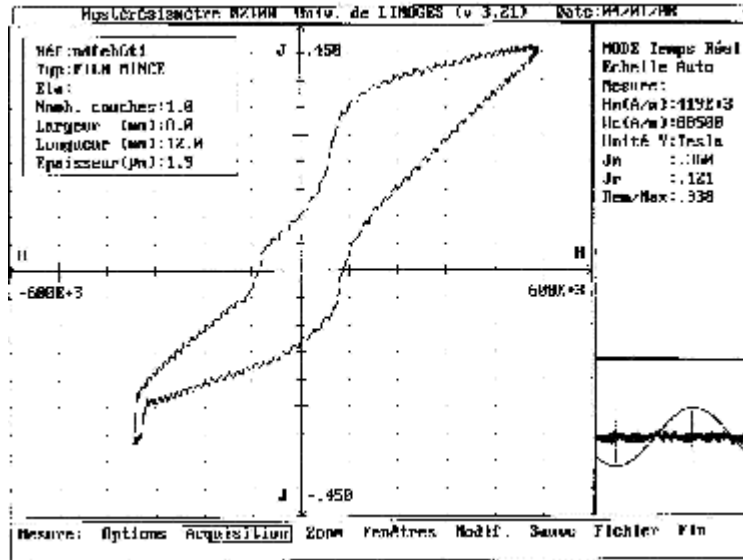


Figure V. 20 : Cycle d'hystérésis de la multicouche Si/Ti/NdFeB/Ti

### II.6.3 Conclusions de l'étude complémentaire

Ces travaux complémentaires nous ont donc permis d'obtenir, en coexistence avec  $\text{Nd}_2\text{O}_3$ , la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  sous la forme d'une multicouche Si/Ti/NdFeB/Ti. Aucune orientation particulière n'a cependant pu être obtenue. Cette multicouche présente, a priori, les caractéristiques magnétiques d'un matériau dur. Une sur-couche de Titane apparaît indispensable pour éviter la détérioration de la couche magnétique lors du recuit : l'atmosphère d'Argon du four à lampe n'est donc pas une garantie suffisante. Les dépôts réalisés en l'absence de sur-couche ne présentent que des traces de Néodyme-Fer-Bore, en coexistence, vraisemblablement avec la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{17}$ .

En outre, cette étude complémentaire nous a permis de lever le doute sur plusieurs incertitudes soulevées lors des travaux antérieurs.

Tout d'abord, l'hypothèse d'une réaction entre la couche et le substrat de Silicium est confirmée, tant sur la cible frittée que sur la cible coulée. Un composé FeSi se forme après recuit rapide, ce qui empêche la formation des phases magnétiques. En conséquence, il est indispensable d'utiliser une sous-couche, comme du Titane, pour « isoler » couche et substrat.

Ensuite, une faible température de substrat, c'est-à-dire de l'ambiante à 200°C, lors de dépôts suivis de recuit rapide, limite l'oxydation de la couche. Au contraire, les dépôts réalisés à 500°C suivis de recuits lents avaient favorisé la formation d'Oxyde de Fer (paragraphe II.5). Il est donc nécessaire de réaliser les dépôts à la température de substrat la plus basse possible.

Enfin, un manque de Néodyme dans les couches défavorise la formation de la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Il semble en effet que cette phase soit mise en évidence lors des dépôts avec la cible enrichie en Néodyme, tant sur substrat Molybdène que sur sous-couche de Titane sur Silicium. Une augmentation nette du champ coercitif des couches a ainsi pu être constatée. Les conclusions sont en revanche beaucoup plus incertaines dans le cas des couches réalisées avec la cible frittée. Les analyses magnétiques ne montrent pas dans ce cas d'augmentation nette du champ coercitif. Il semble que des cibles enrichies soient indispensables pour augmenter les chances d'obtenir la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  et ce conformément à la littérature [9]. Ce problème avait été précédemment évoqué dans le cas des Samarium-Cobalt.

### III Conclusion de l'étude préliminaire des dépôts de Néodyme-Fer-Bore

Dans cette étude, nous avons donc mis en évidence plusieurs obstacles à la formation de la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Plusieurs enseignements peuvent donc être tirés.

Tout d'abord, l'importance du choix de la cible de pulvérisation pour la réalisation des couches est fondamental. En effet, la teneur en Néodyme des couches réalisées est déterminante pour l'obtention de la phase magnétique  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Pour contrer le phénomène connu de déficit en Néodyme [9], il est nécessaire de disposer d'une cible enrichie en Néodyme, si possible non frittée afin de s'affranchir de problèmes de pulvérisation mal connus.

Ensuite, le problème de l'oxydation des couches implique qu'il est indispensable de réaliser les couches à la température de substrat la plus basse possible et de les recouvrir d'une sur-couche de Titane protectrice.

Enfin, afin d'éviter une réaction entre couche et substrat, une sous-couche de Titane est également un impératif. Elle fait ainsi office de barrière anti-diffusion.

Une fois ces obstacles surmontés, nous avons pu former, sous la forme d'une multicouche Si/Ti/NdFeB/Ti la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Les propriétés magnétiques obtenues sont celles d'un matériau dur. La couche NdFeB ne présente malheureusement pas d'orientation préférentielle, ce qui empêche pour l'heure d'envisager la polarisation magnétique d'une couche douce de ferrite.

Ces résultats sont cependant porteurs d'espoir et constituent une solide base de travail pour parvenir à l'objectif fixé initialement. Plusieurs solutions pourraient permettre de l'atteindre :

- la copulvérisation ou la coévaporation simultanée de Fer, de Bore et de Néodyme, ou de combinaisons de ces trois éléments, déjà envisagée dans le cas de Samarium-Cobalt pour la maîtrise de la stœchiométrie des couches,
- la pulvérisation de cibles fortement enrichies en Néodyme [9], ce qui suppose de pouvoir fabriquer plusieurs cibles de différentes compositions nominales.

Des essais pourraient être envisagées, à court terme, en co-évaporation au canon à électrons. L'équipe C2M s'est en effet dotée très récemment d'un bâti d'évaporation comportant trois canons à électrons. Il serait possible, en jouant sur la puissance des faisceaux électroniques et donc sur les vitesses d'évaporation, de doser séparément le Néodyme, le Fer et le Bore afin d'obtenir la composition souhaitée. Cependant, ce procédé introduit des chances d'oxydation in situ du Néodyme et du Fer. La maîtrise de la formation des phases est donc ainsi rendue plus difficile.

La seconde solution présente les avantages bien connus de reproductibilité des dépôts et facilité d'utilisation de la pulvérisation radiofréquence magnétron. En effet, Nous maîtrisons mieux, désormais, les problèmes d'oxydation des couches lors de la pulvérisation à une seule cible. C'est donc ce process qui semble préférable. Il nécessite cependant la fabrication de cibles de différentes compositions nominales et donc l'appui d'un laboratoire de matériaux. Nous espérons ainsi, par l'étude systématique des paramètres de dépôt et de recuit, favoriser l'orientation (00 $\ell$ ) des couches de Néodyme-Fer-Bore.

## Bibliographie de la cinquième partie

[1] : DU TREMOLET DE LACHEISSERIE E., *Magnétisme, Tome I: Fondements*, Collection Grenoble Sciences, 1999.

[2] : YAMASHITA S., YAMASAKI J., IKEDA M., IWABUCHI N., *Anisotropic Nd-Fe-B thin films magnets for milli-size motor*, J.Appl.Phys., 70, 10, pp 6627-6629, 1991.

[3] : RICHARDT A. et DURAND A.-M., *Le vide, les couches minces, les couches dures*, Edition In Fine, 1994.

[4] : LIEBUS S., BOULLE A., COSSET F., GIRAULT-DI BIN C., GUINEBRETIERE R., BESSAUDOU A., VAREILLE J.C., *Microstructural and microwave characterisations of pulsed laser ablated barium and strontium titanate thin films*, Ferroelectrics, acceptée pour publication 01/2003.

[5] : PARHOFER S., GIERES G., WECKER J., SCHULTZ L., *Growth characteristics and magnetic properties of sputtered Nd-Fe-B thin films*, Journal of magnetism and magnetic materials, 163, pp 32-38, 1996.

[6] : YIM J.B., *Etude de la faisabilité d'une structure multicouche pour application aux antennes à polarisation circulaire*, Stage de D.E.A. d'Electronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, 1999.

[7] : Communication personnelle de M. D. Givord, laboratoire Louis Néel, Grenoble.

[8] : JIANG H., O'SHEA M.J., *Structure and magnetic properties of NdFeB thin films with Cr, Mo, Nb, Ta, Ti and V buffer layers*, Journal of magnetism and magnetic materials, acceptée pour publication, 2000.

[9] : NAKANISHI A., UEDA M., OKUDA T., MIZUTANI N., NISHIYAMA J., MOTOKAWA M., WANG Z., ADACHI N., OHSATO H., *Compositional and structural study of rf-sputtered Nd-Fe-B thin film*, Journal of magnetism and magnetic materials, 1999, 196-197, pp 295-296.

# CONCLUSION GENERALE

L'objectif de cette étude était, rappelons-le, de réaliser des couches d'aimants convenablement orientées susceptibles de « polariser magnétiquement » une couche de ferrite doux. L'ensemble couche d'aimant-ferrite doux est l'une des voies possibles pour concevoir des dispositifs intégrés micro-ondes non réciproques tels que circulateurs et antennes à ferrite.

Dans ce mémoire, nous avons tout d'abord abordé le phénomène de non-réciprocité dans les ferrites et sa conséquence principale, l'apparition de deux perméabilités magnétiques relatives différentes au sein du matériau. Nous avons présenté les deux applications qui nous intéressent particulièrement, les antennes et les circulateurs sous leurs formes massive et intégrée. Enfin, une importante étude bibliographique sur les aimants a mis en exergue les principaux traits des Samarium-Cobalt et des Néodyme-Fer-Bore, sous forme massive, puis sous forme de films minces. Si les premiers présentent une anisotropie planaire, les seconds peuvent, dans certaines conditions expérimentales, orienter leur axe facile perpendiculairement au plan des couches. La phase  $\text{SmCo}_5$  est métastable à température ambiante tandis que  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  est stable. Ce dernier avantage est relativisé par l'extrême fragilité du Néodyme face à l'oxydation.

L'utilisation d'un logiciel de simulation de lignes micro-ondes nous a permis de montrer qu'une antenne à ferrite intégrée, fonctionnant à 40 GHz, avait un comportement hyperfréquence semblable aux antennes à ferrite massives. Ces antennes rayonnent ainsi à deux fréquences voisines, mais différentes, lorsqu'elles sont soumises à un champ magnétique statique. Ce résultat permet d'envisager des applications autres que les circulateurs également étudiés sous forme intégrée.

Dans la quatrième partie, nous avons tout d'abord montré qu'il est impossible d'obtenir des dépôts de Samarium-Cobalt dotés des propriétés requises, avec le dispositif de pulvérisation radiofréquence magnétron décrit dans la troisième partie ; nous avons ensuite présenté

la mise au point d'un dispositif de dépôt sous induction magnétique susceptible de favoriser l'orientation désirée. Ce dispositif, constitué d'un solénoïde placé dans l'enceinte de pulvérisation, a tout d'abord été simulé à l'aide du logiciel Flux 2D puis construit. Les lignes d'induction sont normales à la surface des substrats et la norme de l'induction y avoisine 0,05 Tesla. A l'aide de ce nouveau dispositif de dépôt, nous avons réalisé des couches de Samarium-Cobalt à partir d'une cible de composition  $\text{SmCo}_5$ . Nous n'avons malheureusement pas pu obtenir les phases magnétiques  $\text{SmCo}_5$ ,  $\text{Sm}_2\text{Co}_7$  et  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$  susceptibles d'être formées. Nous avons mis en évidence, par diffraction des rayons X, les plans (110) de la phase alpha du Cobalt. Ce résultat a été confirmé par les analyses magnétiques : les champs coercitifs obtenus n'excèdent pas une centaine de kA/m, ce qui exclut les aimants de la famille Samarium-Cobalt caractérisés par des champs coercitifs de plusieurs centaines à plusieurs milliers de kA/m. En dépit d'un choix de substrat favorisant théoriquement une épitaxie et de l'application d'une induction in situ lors de la phase de dépôt, ces résultats n'ont pu être améliorés ; les couches dépendent pourtant de l'induction appliquée. Nous avons émis l'hypothèse que ces problèmes trouvent leur origine dans la métastabilité de  $\text{SmCo}_5$  à température ambiante et dans la pulvérisation préférentielle du Cobalt au détriment du Samarium ; elle est validée par les analyses de dispersion en énergie des rayons X, qui mettent en évidence un excès de Cobalt dans les couches : les rapports atomiques Co/Sm excèdent dans la plupart des cas 10 au lieu de 5 attendu.

Les Sm-Co, pour la réalisation de couches minces d'aimants, n'apparaissant pas comme de bons candidats, nous avons entrepris l'étude d'un autre type d'aimants stable à température ambiante et pouvant théoriquement orienter leur axe facile perpendiculairement au plan des couches. Nous avons donc présenté, dans la dernière partie, une étude préliminaire sur des couches de Néodyme-Fer-Bore réalisées à partir d'une cible frittée de composition  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ , et d'une cible coulée enrichie en Néodyme, de composition  $\text{Nd}_{16,9}\text{Fe}_{75,3}\text{B}_{7,8}$ . Plusieurs difficultés ont ainsi pu être mises en évidence, par comparaison des résultats obtenus avec les deux cibles, et surmontées : la réaction de la couche avec le substrat, traduite par la formation du composé FeSi, l'oxydation du Néodyme et du Fer in situ et ex situ, et le déficit des couches en Néodyme quand la composition nominale de la cible est  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . Les remèdes apportés sont l'ajout d'une sous-couche et d'une sur-couche de Titane de 200 nm, la réalisation de dépôts à faible température de substrat (moins de 200°C) et l'utilisation indispensable d'une cible enrichie en Néodyme. Nous avons ainsi pu, sous la forme d'une multicouche Si/Ti/NdFeB/Ti, obtenir, après recuit rapide sous Argon à 620°C, la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  non orientée ; les propriétés magnétiques obtenues sont celles d'un matériau dur.



Deux enseignements principaux ressortent de ces travaux.

Premièrement, le choix de l'aimant s'oriente vers les Néodyme-Fer-Bore. Malgré les problèmes d'oxydation inhérents au Fer et surtout au Néodyme, la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$  présente l'avantage d'être stable à température ambiante contrairement à  $\text{SmCo}_5$ . Cela évite une indispensable trempe in situ, techniquement très difficile, dans le cas où nous parviendrions à former la phase  $\text{SmCo}_5$ . Nous avons pu constater, dans l'étude bibliographique et dans nos travaux, l'extrême difficulté à manier les alliages Sm-Co sous forme massive et davantage encore sous forme de couches. Le diagramme de phase Sm-Co, modifié pour la dernière fois par Laurent Cataldo [1], n'est d'ailleurs pas connu définitivement. Les problèmes d'oxydation des Néodyme-fer-Bore semblent donc contrebalancés par la plus grande simplicité du diagramme pseudo-binaire du système  $(\text{Fe}_{14}\text{B})$ -Nd.

Deuxièmement, au vu des résultats encourageants obtenus avec les Néodyme-Fer-Bore, la pulvérisation de cibles enrichies en Néodyme pourrait nous permettre d'atteindre notre objectif final. Il est pour cela indispensable de fabriquer des cibles de différentes compositions nominales, et de faire une étude systématique des paramètres de dépôt et de recuit. Les avantages principaux de la pulvérisation à une seule cible sont la simplicité d'utilisation, la reproductibilité et la minimisation des problèmes d'oxydation. En effet, d'autres techniques, comme la co-pulvérisation ou la co-évaporation au canon à électrons entraînent, d'une part, un process plus lourd et pourraient augmenter, d'autre part, les chances d'oxydation des espèces lors de la phase de dépôt. La pulvérisation à une seule cible semble donc être la principale voie à poursuivre.

Nous sommes donc parvenus à réaliser une multicouche magnétique non orientée à base de la phase  $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ . L'objectif de l'étude est donc partiellement atteint. Ce résultat est un point de départ très intéressant pour espérer orienter l'axe facile de cet aimant perpendiculairement à la surface de la couche. Il restera alors à réaliser le même travail sur des couches de ferrite doux. J'espère m'inscrire dans les prochaines étapes de ces travaux, afin de participer effectivement à la phase d'intégration des dispositifs non-réciproques à ferrite polarisés par des films d'aimants permanents.

## **Bibliographie de la conclusion générale**

[1] : CATALDO L., *Contribution à l'élaboration et à l'optimisation d'alliages magnétiques permanents Sm-Co-Cu-Fe-Zr*, pp 38 et sq, Thèse de doctorat, Université Claude-Bernard-Lyon I, année 1996, n° d'ordre 206-96.

[2] : YIM J.B., *Etude de la faisabilité d'une structure multicouche pour application aux antennes à polarisation circulaire*, Stage de D.E.A. d'Electronique des hautes fréquences et optoélectronique, Université de Limoges, 1999.

## Annexe I : les fondements du magnétisme statique

Dans cette annexe, nous rappelons l'évolution du magnétisme au cours des siècles, nous introduisons les grandeurs indispensables à la compréhension des différents phénomènes et nous définissons enfin les principales familles de matériaux magnétiques.

# I Rappel historique sur les phénomènes magnétiques [1]

## I.1 Le magnétisme de l'Antiquité au XIXe siècle

La première mention de phénomènes magnétiques remonte à la découverte de la *Pierre d'aimant*, racontée par Guanzhong, un écrivain chinois décédé en 645 avant Jésus-Christ. De même, Thalès de Milet évoque en 2500 avant notre ère son attirance pour le fer. Cette *Pierre d'aimant* était une appellation regroupant vraisemblablement plusieurs types d'oxydes de fer dont le plus célèbre est la magnétite  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ . L'attraction qu'exerce cette pierre sur le fer semble être la première mise en évidence du magnétisme.

Plus tard, les chinois Gui Guzi et Han Fei (280 à 233 avant Jésus-Christ) mentionnent que les *pierres d'aimant* ne sont pas insensibles à l'attraction des pôles géographiques terrestres. C'est le principe de la boussole.

La boussole elle-même fut inventée, pour guider les navires, vers le XI<sup>e</sup> ou le XII<sup>e</sup> siècle. Les premières théories du magnétisme furent elles publiées dans le *De Magnete* de William Gilbert vers 1600.

## I.2 Le magnétisme au XIXe siècle

Les connaissances sur le magnétisme restèrent approximativement en l'état jusqu'au XIXe siècle. Aucune théorie sérieuse ni aucune autre grande application autre que la boussole ne furent inventées durant plus de 21 siècles.

C'est Coulomb (1736-1806) qui parla le premier de masses magnétiques à l'origine du magnétisme : c'est ce qu'on appellera plus tard *l'approche coulombienne*, que nous développerons dans le paragraphe III.2.

Poisson (1781-1840) introduisit la notion de champ magnétique, interaction fictive agissant sur les masses magnétiques évoquées précédemment.

La plus grande avancée est sans conteste l'expérience d'Oersted en 1820 : il montre qu'un courant électrique fait dévier l'aiguille d'une boussole située dans son voisinage immédiat. Cette

découverte est révolutionnaire puisqu'elle lie électricité et magnétisme que l'on croyait indépendants l'un de l'autre.

Ampère renouvelle l'expérience avec une boucle de courant et cherche l'origine du magnétisme dans des boucles de courant moléculaires : c'est *l'approche ampérienne*, que nous verrons au paragraphe III.1.

Faraday met en évidence, en 1821, l'induction magnétique : un courant électrique apparaît dans un enroulement si l'on approche un aimant : la variation de flux magnétique crée donc une force électromotrice.

En 1864, Maxwell parvient à modéliser la constatation d'Oersted avec quatre équations qui lient champ magnétique et champ électrique dans le cas d'une onde électromagnétique. Les théories actuelles du magnétisme reposent encore sur elles.

Enfin, Curie (1859-1906) classe les matériaux en trois catégories : les diamagnétiques, les paramagnétiques et les ferromagnétiques.

### I.3 Le magnétisme au XXe siècle

Le XXe siècle marque la réelle naissance de l'étude théorique des matériaux magnétiques sur les bases jetées par les physiciens du XIXe siècle. Le magnétisme est donc une science jeune, encore en pleine évolution actuellement.

Langevin (1872-1940) met en équation le phénomène de diamagnétisme.

Weiss (1865-1940) invente la notion de domaines magnétiques et étudie le ferromagnétisme.

Néel (1904-2000), enfin, met en équation l'antiferromagnétisme et le ferrimagnétisme. Nous verrons plus en détail ces phénomènes dans le paragraphe IV.

## II Principales grandeurs utilisées dans le magnétisme

Afin de caractériser les matériaux magnétiques ainsi que leurs effets dans l'espace, plusieurs grandeurs ont été introduites.

### II.1 Champ (ou excitation) magnétique $\vec{H}$

La notion de champ magnétique a été introduite par Poisson par analogie avec le champ électrostatique.

Ampère montra que la circulation, sur une courbe fermée  $\Gamma$ , du champ magnétique  $\vec{H}$  créé par un conducteur filiforme parcouru par un courant d'intensité  $I$  est égale à :

$$\oint_{\Gamma} \vec{H} \cdot d\vec{\ell} = I \quad (19)$$

La relation (1), appelée théorème d'Ampère, montre que  $\vec{H}$  s'exprime en Ampères par mètre (A/m) ; elle se généralise à un nombre quelconque de conducteurs traversant  $\Gamma$ . Le courant unique  $I$  se transforme alors en une somme algébrique dépendant du sens de parcours des courants dans les conducteurs ; grâce au théorème de Stokes, (1) peut s'écrire (relation de Maxwell-Ampère) :

$$\overrightarrow{\text{rot}} \vec{H} = \vec{j} \quad (20)$$

où  $\vec{j}$  est la densité de courant traversant la surface définie par le contour  $\Gamma$ .

### II.2 Induction magnétique $\vec{B}$

L'induction magnétique peut s'imaginer comme la manifestation physique palpable du champ magnétique. Le comportement de deux milieux distincts soumis à un même champ magnétique  $\vec{H}$  est très différent. Cette réponse est appelée l'induction magnétique  $\vec{B}$ , exprimée en Teslas (T). Elle peut être rapprochée du vecteur déplacement  $\vec{D}$  utilisé dans les milieux diélectriques soumis à un champ électrique.

Biot et Savart ont exprimé l'induction créée en un point M de coordonnées  $\vec{r} = \vec{OM}$  par un conducteur filiforme parcouru par un courant. En extrapolant à une distribution volumique de courant de densité  $\vec{j}$  :

$$\vec{B} = \frac{\mu_0}{4\pi} \iiint_V \vec{j} \frac{dV}{r^2} \wedge \frac{\vec{r}}{r} \quad (21)$$

où V est le volume total délimitant la distribution de courant.

L'induction est, de plus, à flux conservatif : le flux entrant dans le volume V est égal à celui qui en sort, ce qui se traduit par :

$$\text{div} \vec{B} = 0 \quad (22)$$

### II.3 Potentiel vecteur $\vec{A}$

On dit que l'induction  $\vec{B}$  dérive d'un potentiel vecteur  $\vec{A}$  si l'on a :

$$\vec{B} = \overrightarrow{\text{rot}} \vec{A} \quad (23)$$

Ce qui donne, d'après (1) :

$$\vec{A} = \frac{\mu_0}{4\pi} \iiint_V \vec{j} \frac{dV}{r} \quad (24)$$

### II.4 Moment magnétique $\vec{m}$

Soit une distribution de courants confinés au voisinage de l'origine de l'espace, O. On montre que le potentiel vecteur, très loin de l'origine vaut :

$$\vec{A} = \frac{\mu_0}{4\pi} \frac{\vec{m} \wedge \vec{r}}{r^3} \quad (25)$$

$\vec{m}$  est appelé moment magnétique. Il s'exprime en fonction de la densité de courant :

$$\vec{m} = \frac{1}{2} \iiint_V \vec{r} \wedge \vec{j}(\vec{r}) dV \quad (26)$$

Cette expression mathématique peu expressive, cache en réalité un concept assez simple : le moment magnétique n'est rien d'autre que l'analogie mathématique du moment cinétique de la mécanique classique. Dans le cas d'une boucle de courant parcourue par un courant I, le moment magnétique vaut :



$$\vec{m} = I\vec{S} \quad (27)$$

$\vec{S}$  étant le vecteur surface, dont la norme est la surface totale de la spire et dont le sens est défini par la règle du tire-bouchon de Maxwell.

## II.5 Aimantation d'un matériau $\vec{M}$

Il existe une très forte analogie entre les effets que l'on observe au voisinage d'un fil parcouru par un courant et les phénomènes rencontrés dans un corps solide. Un morceau de matière aimantée crée en son voisinage une induction  $\vec{B}$  de la même façon qu'une boucle de courant. La matière est en effet constituée d'une multitude de boucles de courant composées de l'ensemble des électrons en rotation autour de leur noyau, chaque électron portant un moment magnétique  $\vec{m}$ .

On peut donc, grâce à ce parallèle, définir un vecteur caractérisant un matériau dans un certain état. On appelle aimantation le moment magnétique total d'un corps de volume  $V$  ramené à l'unité de volume :

$$\vec{M} = \frac{\sum_i \vec{m}_i}{V} \quad (28)$$

où  $\vec{m}_i$  est le moment magnétique de l'atome  $i$ .

On montre que  $\vec{M}$  vérifie la relation :

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}) = \mu_0\vec{H} + \vec{J} \quad (29)$$

où  $\vec{H}$  est le champ extérieur au matériau et  $\vec{B}$  l'induction au sein du matériau. Cette relation montre que  $\vec{M}$  s'exprime en Ampères par mètre et  $\vec{J}$  en Teslas.

## II.6 Susceptibilité magnétique d'un matériau $\chi$

On peut définir la **susceptibilité magnétique** par unité de volume  $\chi$  pour classer les matériaux magnétiques.  $\chi$  caractérise la réponse d'un matériau, sa sensibilité à une excitation magnétique extérieure selon la relation :

$$\vec{M} = \chi\vec{H} \quad (30)$$

L'équation (12) signifie qu'un corps peut acquérir une aimantation quand il est plongé dans un champ statique.

## II.7 Perméabilité magnétique relative d'un matériau $\mu_r$

La **perméabilité magnétique relative**  $\mu_r$  d'un matériau rend compte des propriétés magnétiques d'un corps sous l'action d'un champ magnétique. Elle est liée à sa susceptibilité par la relation :

$$\mu_r = \frac{\mu}{\mu_0} = 1 + \chi \quad (31)$$

où  $\mu$  et  $\mu_0$  sont respectivement les perméabilités magnétiques du matériau et du vide.  $\mu_0$  est une constante égale à  $4\pi \cdot 10^{-7} \text{ H.m}^{-1}$ .

### III Origines microscopiques du magnétisme [1, 2, 3]

Au XIX<sup>e</sup> siècle, deux théories s'affrontaient pour expliquer la magnétostatique : l'approche ampérienne et l'approche coulombienne. A l'heure actuelle, les deux théories coexistent sans que l'une l'emporte sur l'autre : en effet, l'approche coulombienne est surtout utilisée en électrotechnique tandis que l'approche ampérienne intéresse davantage les physiciens atomiques.

Nous présenterons ci-après de façon simple ces deux approches complémentaires l'une de l'autre, en commençant par l'approche ampérienne, bien qu'elle soit postérieure à l'approche coulombienne, pour des raisons de commodité mathématique qui apparaîtront par la suite.

#### III.1 Approche ampérienne

##### III.1.1 Exposé de la théorie

L'approche ampérienne du magnétisme consiste à considérer que le magnétisme des corps trouve son explication dans les courants élémentaires créés par les électrons gravitant autour du noyau. Pour affirmer cela, Ampère s'est appuyé sur l'expérience d'Oersted qu'il a mise en équation. Il a ensuite imaginé le cas d'une spire circulaire parcourue par un courant.

Toute l'approche est donc basée sur l'analogie entre une boucle de courant, qui crée un champ magnétique et un très grand nombre d'électrons décrivant chacun des cercles autour de leur noyau.

La résolution de nombreux problèmes de magnétostatique repose, dans l'approche ampérienne, sur le théorème d'Ampère (relation (1)).

Le moment magnétique atomique a deux origines essentielles :

- le mouvement orbital de l'électron autour du noyau, qui engendre un moment magnétique orbital  $\vec{m}_L$  découlant directement de l'approche ampérienne (Figure 1 [1]),
- le mouvement de rotation de l'électron sur lui-même, ou spin, qui crée un moment cinétique  $\vec{m}_s$ . Nous verrons son importance dans le paragraphe IV.3.

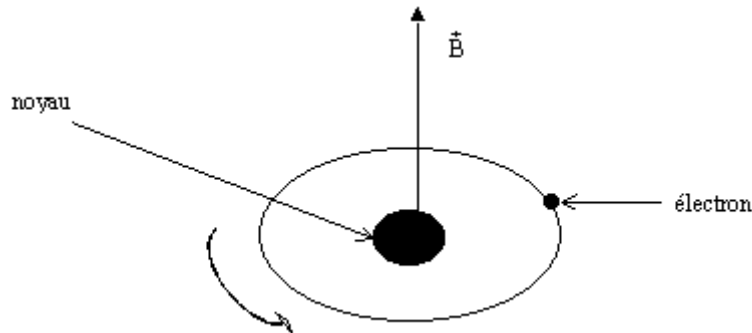


Figure 13 : Approche ampérienne ; création d'une induction  $\vec{B}$  à partir de la rotation d'un électron autour de son noyau

### III.1.2 Application à la magnétostatique

De façon simplifiée, l'approche ampérienne a pour conséquence l'équivalence entre un corps cylindrique uniformément aimanté selon son axe et un solénoïde, représentée sur la Figure 2.

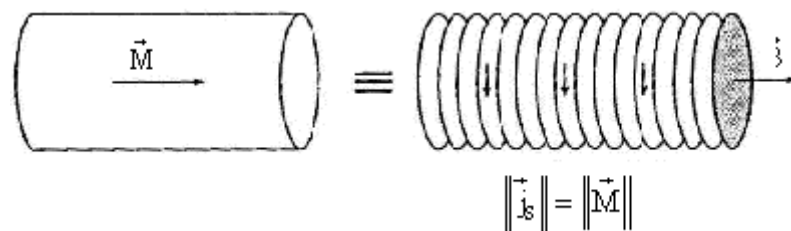


Figure 14 : Equivalence entre un corps cylindrique aimanté selon son axe et un solénoïde traversé par une densité de courant surfacique  $j_s$  dans l'approche ampérienne

## III.2 Approche coulombienne

### III.2.1 Présentation

Par analogie avec l'électricité où la notion de charge élémentaire existe (l'électron), Coulomb imagina l'existence de masses magnétiques. Il avait en effet constaté la forte analogie, à longue

distance, entre l'induction magnétique créée par une boucle de courant et le champ électrique engendré par un dipôle électrique.

Dans le cas d'une distribution de courant confinée à l'origine des coordonnées dans un volume  $V$ , on montre à partir de l'équation (3) que l'induction créée à grande distance par cette distribution vaut :

$$\vec{B} = \frac{\mu_0}{4\pi} \left[ 3 \frac{(\vec{m} \cdot \vec{r}) \vec{r}}{r^5} - \frac{\vec{m}}{r^3} \right] \quad (32)$$

Cette relation est à comparer avec le champ électrique créé par un dipôle électrique de moment  $\vec{p}$  :

$$\vec{E} = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left[ 3 \frac{(\vec{p} \cdot \vec{r}) \vec{r}}{r^5} - \frac{\vec{p}}{r^3} \right] \quad (33)$$

La ressemblance entre les équations (14) et (15) a conduit Coulomb à imaginer la notion de masse magnétique fictive. La figure 3 montre l'équivalence, valable uniquement à grande distance, entre ces deux problèmes : on peut voir sur cette figure l'allure similaire des lignes de champ électrique et d'induction magnétique.

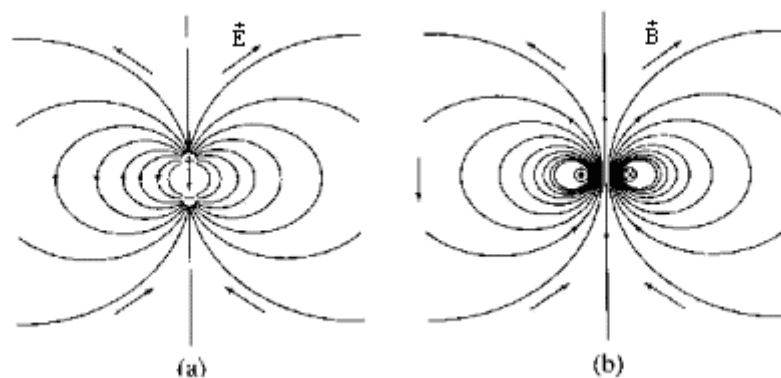


Figure 15 : Origine de l'approche coulombienne : (a) lignes de champ électrique engendrées par un dipôle (charges + et -) ; (b) lignes d'induction magnétique engendrées par une boucle de courant (dont le sens est indiqué sur la figure)

### III.2.2 Conséquence macroscopique de l'approche coulombienne

L'approche coulombienne a pour principale conséquence l'équivalence entre l'aimantation et la densité de charges magnétiques (figure 4). Un cylindre uniformément aimanté le long de son axe sera ainsi équivalent à deux disques de densités de charges opposées. Le champ  $\vec{H}_m$  créé par le cylindre aimanté est ainsi le même que celui créé par les deux densités de charges.

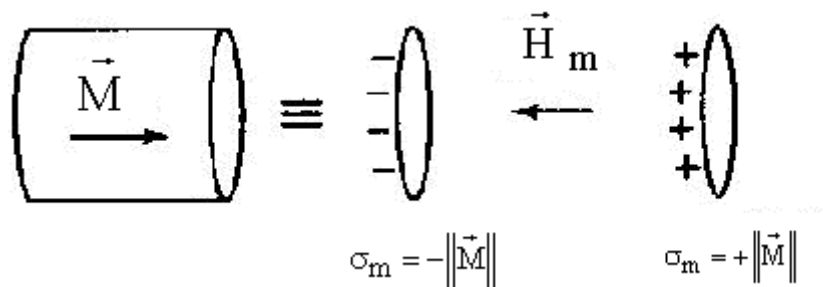


Figure 16 : Equivalence entre un corps cylindrique aimanté selon son axe et une distribution de charges magnétiques fictives situées sur les bases du cylindre

## IV Les différents types de matériaux magnétiques

Dans le système international, nous pouvons écrire, à partir de la relation (11), la valeur de l'induction magnétique  $\vec{B}$  à l'intérieur d'un matériau en fonction de l'excitation  $\vec{H}$  à l'extérieur.

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H} + \vec{M}) = \mu_0(1 + \chi)\vec{H} = \mu_0\vec{H} + \mu_0\chi\vec{H} = \mu_0\vec{H} \pm \mu_0|\chi|\vec{H} \quad (34)$$

Les différents types de matériaux magnétiques sont habituellement classés en fonction de leur réponse à une excitation extérieure  $\vec{H}$ , c'est-à-dire par le signe de leur susceptibilité.

### IV.1 Le vide

La susceptibilité magnétique  $\chi$  du vide est nulle. Il en résulte  $\vec{B} = \mu_0\vec{H}$ .

### IV.2 Les matériaux diamagnétiques

#### IV.2.1 Propriétés macroscopiques [1, 3]

Les matériaux pour lesquels  $\chi < 0$  sont appelés *diamagnétiques*. La valeur de leur susceptibilité, qui varie très peu (Figure 5 (b)) en fonction de la température, est le plus souvent voisine de  $10^{-5}$ . Leur aimantation induite par un champ extérieur a un sens opposé à celui du champ inducteur. Susceptibilité et aimantation sont représentées sur la Figure 5.

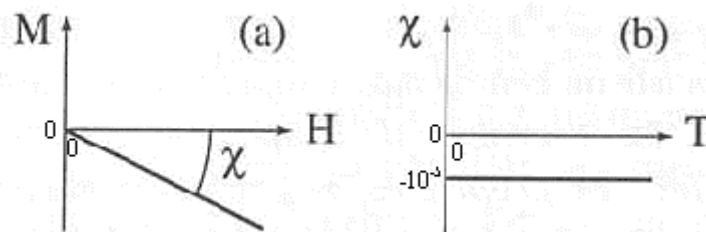


Figure 17 : (a) Evolution de l'aimantation en fonction du champ appliqué et (b) dépendance de la susceptibilité en fonction de la température pour les corps diamagnétiques

Le phénomène de diamagnétisme caractérise des corps dont les atomes ne sont pas magnétiques mais il existe aussi dans tous les corps possédant des atomes magnétiques à des degrés plus ou moins élevés. Cependant, le diamagnétisme n'y est la plupart du temps pas détectable, masqué par d'autres effets magnétiques.

Les orbitales des corps diamagnétiques sont pleines, soit à l'état atomique, soit à cause d'une liaison chimique. Les gaz rares sont par conséquent diamagnétiques. La plupart des gaz diatomiques et de nombreux solides ioniques le sont également. Cette particularité sera expliquée au paragraphe IV.2.2.

Le tableau 1 rassemble les susceptibilités de quelques uns de ces matériaux, purs ou composés.

Silicium	Argent	Cuivre	Plexiglas	Silice
$-0,34 \cdot 10^{-5}$	$-2,5 \cdot 10^{-5}$	$-1,18 \cdot 10^{-5}$	$-0,9 \cdot 10^{-5}$	$-1,2 \cdot 10^{-5}$

Tableau 3 : Susceptibilités magnétiques de quelques corps diamagnétiques à température ambiante [4]

#### IV.2.2 Approche microscopique

Nous ne détaillerons pas ici le diamagnétisme de manière exhaustive. Nous nous contenterons de présenter cette propriété de manière phénoménologique dans l'approche des électrons localisés, c'est-à-dire dans l'hypothèse où le magnétisme d'un corps n'est pas dû aux électrons de conduction. Cela se rapproche de l'approche ampérienne.

Dans ces conditions, chaque électron, de moment magnétique  $\vec{m}$  en rotation autour de son noyau devient une spire de courant. Sous l'action d'un champ magnétique  $\vec{H}$  perpendiculaire au plan de l'orbite, le courant dans la spire est modifié de manière que « la variation de flux magnétique créée par la spire sur elle-même soit égale et opposée au flux créé par l'application du champ » : c'est la loi de Lenz utilisée en électromagnétisme. Cette variation de courant induit une variation du moment orbital  $\Delta\vec{m}$  toujours opposée au champ appliqué, quel que soit le sens de déplacement de l'électron sur l'orbite (Figure 6). Elle est donc la même quel que soit le sens de parcours. Cela explique pourquoi les corps diamagnétiques ont leurs couches électroniques pleines comme on l'a dit



au paragraphe IV.2.1. Si une orbite est parcourue par deux électrons de spins opposés (cas des électrons appariés), l'aimantation résultante sera de sens opposé au champ puisque  $\Delta\vec{m}$  a le même sens quel que soit le sens de  $i$ . L'aimantation ne pourra donc jamais avoir le même sens que  $\vec{H}$ .



Figure 18 : Effet d'un champ magnétique sur deux électrons parcourant la même orbite en sens inverses

La susceptibilité diamagnétique s'exprime à partir du théorème de Larmor. Ce théorème suppose que « sous l'action d'une induction de module  $B$ , le mouvement des électrons autour d'un noyau central est, au premier ordre, le même qu'un mouvement en l'absence de cette induction auquel on superposerait une précession de vitesse angulaire  $\omega$  » :

$$\omega = \frac{eB}{2m_e} \quad (35)$$

où  $e$  est la charge élémentaire ( $e = 1,6 \cdot 10^{-19} \text{C}$ ) et  $m_e$  est la masse de l'électron ( $m_e = 9,1 \cdot 10^{-31} \text{kg}$ ).

La précession de Larmor s'apparente au mouvement d'une toupie dans le champ de pesanteur. Lorsqu'une toupie tourne dans le champ de pesanteur, les frottements tendent à aligner son axe avec la verticale : son extrémité  $K$  décrit une spirale. En l'absence de frottements, l'axe de la toupie fait un angle constant  $\theta$  avec la verticale tandis que l'extrémité inférieure  $K$  décrit un cercle de rayon constant : ce mouvement est identique à celui décrit par un moment magnétique libre soumis à une induction constante  $\vec{B}$  (Figure 7).

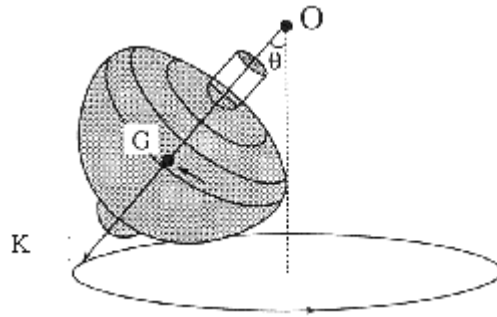


Figure 19 : Mouvement d'une toupie de centre de gravité G dans le champ de pesanteur en l'absence de frottements, identique à celui d'un moment magnétique  $\vec{m}$  dans une induction constante

La précession de Z électrons est équivalente à un courant électrique :

$$i = -\frac{Ze}{2\pi} \frac{eB}{2m_e} \quad (36)$$

Ce courant est le produit de la charge  $-Ze$  par le nombre de tours par unité de temps. On montre que le moment magnétique d'une boucle de courant de rayon  $\rho$  est donné par :

$$m = -\frac{Ze^2 B}{4m_e} \langle \rho^2 \rangle \quad (37)$$

où  $\langle \rho^2 \rangle$  est le carré moyen de la distance de l'électron à l'axe du champ passant par le noyau, lié, d'après la physique statistique, au carré moyen de la distance électron/noyau,  $r$ , par :

$$\langle \rho^2 \rangle = \frac{2}{3} \langle r^2 \rangle \quad (38)$$

Dans un corps composé de N atomes par unité de volume, la susceptibilité vaut :

$$\chi = \frac{\mu_0 M}{B} = \frac{\mu_0 N m}{B} \quad (39)$$

En combinant (19) (20) et (21), il vient :

$$\chi = -\frac{\mu_0 N e^2 Z R^2}{6m_e} \quad (40)$$

où :

N est le nombre d'atomes par unité de volume,

Z est le nombre d'électrons de l'atome considéré,

$R^2$  est la valeur moyenne du carré du rayon des différentes orbites électroniques, calculée grâce à la mécanique quantique.

La relation (22) transcrit la quasi-invariance de la susceptibilité en fonction de la température. En effet, tous les facteurs de cette relation sont indépendants ou quasi-indépendants de la température.

### IV.3 Les matériaux paramagnétiques [1, 2, 5]

#### IV.3.1 Généralités

Les matériaux paramagnétiques ont une susceptibilité magnétique positive qui a la propriété de varier comme l'inverse de la température. Ils possèdent des électrons célibataires.

En l'absence d'excitation extérieure, les moments, qui n'interagissent pas entre eux, sont orientés aléatoirement en raison de l'agitation thermique : l'aimantation est alors nulle (Figure 8 (a)). Sous l'action d'un champ appliqué  $\vec{H}$  et à température non nulle, les moments tendent à s'aligner le long des lignes de champ, dans le sens de  $\vec{H}$ , mais l'agitation thermique limite cet effet : la susceptibilité magnétique est donc faible (voir tableau 2).

On peut écrire dans le système international :  $\vec{M} = +|\chi|\vec{H}$ . Les deux vecteurs  $\vec{M}$  et  $\vec{H}$  ont cette fois même sens. L'effet du corps sur lui-même (voir équation (16)) s'ajoute donc à celui du champ appliqué. La Figure 8 (b) représente l'évolution de l'aimantation en fonction du champ appliqué pour différentes températures. La forte dépendance à la température apparaît.

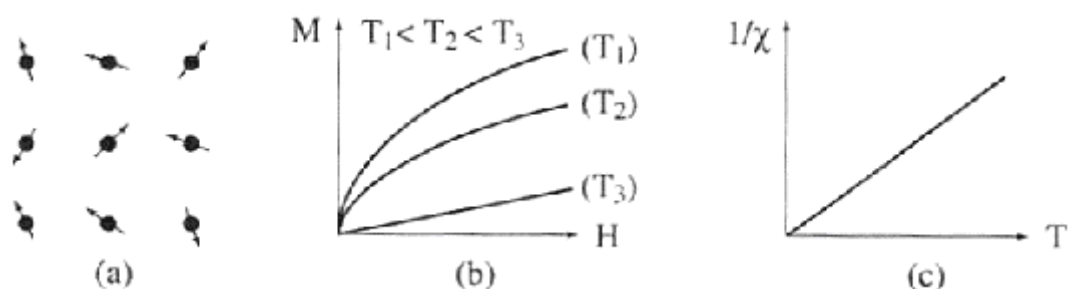


Figure 20 : (a) Isotropie des moments due à l'agitation thermique dans les matériaux paramagnétiques ; (b) comportement de l'aimantation sous l'action d'un champ appliqué à différentes températures ; (c) évolution de l'inverse de la susceptibilité en fonction de la température

Plus la température est élevée, plus l'agitation thermique est importante, moins l'aimantation est importante à  $\vec{H}$  constant. Au zéro absolu, l'agitation thermique étant inexistante, les matériaux paramagnétiques possèdent une forte aimantation.

Le tableau 2 donne, à titre d'exemple, la susceptibilité paramagnétique de divers corps à température ambiante.

<b>Aluminium</b>	<b>Potassium</b>	<b>Calcium</b>	<b>Magnésium</b>	<b>Lithium</b>
$+2,1 \cdot 10^{-5}$	$+0,6 \cdot 10^{-5}$	$2,0 \cdot 10^{-5}$	$0,6 \cdot 10^{-5}$	$1,4 \cdot 10^{-5}$

Tableau 4 : Susceptibilités magnétiques de quelques corps paramagnétiques à température ambiante [4]

#### IV.3.2 Loi de Curie

Les corps dits paramagnétiques, ont été caractérisés par Pierre Curie. Ce dernier constata que certains matériaux possèdent deux particularités : leur susceptibilité est positive d'une part et elle varie comme l'inverse de la température. Il en déduisit la loi qui porte son nom :

$$\chi = \frac{C}{T} \tag{41}$$

où T est la température et C est une constante appelée constante de Curie. La loi de Curie est représentée sur la Figure 8 (c).

#### IV.3.3 Détermination de la constante de Curie

La détermination de la valeur de C s'est faite en deux étapes : d'abord, Langevin imagina un modèle où le moment magnétique peut prendre toutes les valeurs et s'orienter dans toutes les directions possibles ; malheureusement, cette théorie différait légèrement des résultats expérimentaux. En effet, le moment magnétique est quantifié, ce dont Langevin n'avait pas tenu compte. Une fois cette quantification incluse, modèle et réalité concordent.

#### IV.3.3.1 Rappels de mécanique quantique : nombres quantiques associés à un atome ou un ion

L'état quantique d'un atome ou d'un ion peut être représenté par l'ensemble de ses nombres quantiques :

- S, valeur du spin total de l'atome,
- L, qui est la valeur maximale du moment cinétique orbital compatible avec la valeur de S,
- J, qui est la valeur du moment cinétique total. Sa valeur varie entre  $|L - S|$  (couche électronique non encore remplie à moitié) et  $L + S$  (couche électronique plus que remplie à moitié).

Ces trois nombres dépendent de la façon dont les couches électroniques des atomes sont remplies. Ce remplissage est régi par les règles de Hund, qui reposent sur le principe d'exclusion de Pauli et sur la répulsion coulombienne entre les électrons. Ainsi, chaque atome ou ion peut être représenté sous la forme  $^{2S_{\max}+1}X_J$ , où X est la lettre représentant la valeur maximale de L. L'ion  $\text{Co}^{2+}$  a ainsi la structure électronique  $^4F_{9/2}$ , ce qui signifie que son spin maximal vaut  $\frac{3}{2} (2 \cdot \frac{3}{2} + 1 = 4)$ , que son moment cinétique orbital maximal vaut 3 (avec la nomenclature S = 0 ; P = 1 ; D = 2 ; F = 3) et que la valeur du moment cinétique total J est  $\frac{9}{2}$ , calculé ainsi :  $\frac{3}{2} + 3 = \frac{9}{2}$ .

#### IV.3.3.2 Théorie quantique du paramagnétisme

Le moment magnétique  $\vec{m}$  (défini au paragraphe II.4) d'un électron ne prend également que certaines valeurs, proportionnelles au magnéton de Bohr,  $\mu_B$ , dont la valeur correspond au moment magnétique de l'électron de l'atome d'hydrogène dans l'état fondamental. Nous avons :

$$\mu_B = \frac{e\hbar}{2m_e} \quad (42)$$

où  $\hbar$  est la constante de Planck réduite ( $\hbar = \frac{h}{2\pi}$  ; h étant la constante de Planck :  $h = 6,62 \cdot 10^{-34}$  J.s) et  $m_e$  la masse de l'électron ( $m_e = 9,1 \cdot 10^{-31}$  kg).

Soit un corps paramagnétique plongé dans un champ magnétique  $\vec{H}$  et (Oz) un axe de l'espace défini par la direction du champ  $\vec{H}$  ; soit  $m_z$  la projection de  $\vec{m}$  sur (Oz) ; nous avons, pour un système électronique (un atome ou un ion) :

$$m_z = -g\mu_B m_J \quad (43)$$

où  $m_J$  peut prendre  $(2J+1)$  valeurs ( $J$  étant le moment cinétique de l'atome considéré, défini au paragraphe IV.3.3.1.) allant de  $-J$  à  $+J$  par pas de 1, et  $g$  est le facteur de Landé qui vaut, pour un atome libre :

$$g = 1 + \frac{J(J+1) + S(S+1) - L(L+1)}{2J(J+1)} \quad (44)$$

Les niveaux d'énergie  $U$  de ce système sont :

$$U = -g\mu_B m_J H. \quad (45)$$

Pour extrapoler le cas de l'atome (ou de l'ion) à celui d'un corps pur tout entier comprenant  $N$  atomes magnétiques par unité de volume, on utilise la statistique de Boltzmann pour un système à deux niveaux (spin  $+1/2$  ou  $-1/2$ ) ; on montre ainsi que l'aimantation d'un corps paramagnétique s'écrit :

$$M = M_s B_J \left( \frac{gJ\mu_B H\mu_0}{k_B T} \right) = NgJ\mu_B B_J \left( \frac{gJ\mu_B H\mu_0}{k_B T} \right) \quad (46)$$

où  $M_s$  est l'aimantation à saturation du corps et  $k_B$  la constante de Boltzmann,

$$k_B = 1,38.10^{-23} \text{ J/K}$$

et

$$B_J \left( \frac{gJ\mu_B H\mu_0}{k_B T} \right) = \frac{2J+1}{2J} \coth \left( \frac{(2J+1) gJ\mu_B H\mu_0}{2J k_B T} \right) - \frac{1}{2J} \coth \left( \frac{gJ\mu_B H\mu_0}{2J k_B T} \right) \quad (47)$$

est appelée fonction de Brillouin.

L'expression dans les parenthèses de l'équation (29) étant très petite, on peut faire un développement limité au voisinage de zéro de la fonction  $\coth$ . Il en résulte, en identifiant les relations (12), (22) et (27) :

$$\frac{M}{H} = \frac{\mu_0 Ng^2 J(J+1) \mu_B^2}{3k_B T} = \frac{C}{T} \quad (48)$$

**Et l'expression de la constante de Curie :**

$$C = \frac{\mu_0 N g^2 J(J+1) \mu_B^2}{3k_B} \quad (49)$$

L'expression (30) est très fidèle à la réalité et reste le modèle actuel du paramagnétisme. La Figure 9 [5] montre la concordance entre le modèle et la réalité pour trois ions. L'échelle des abscisses, rapport d'une induction sur une température, est directement issue de l'équation (29).

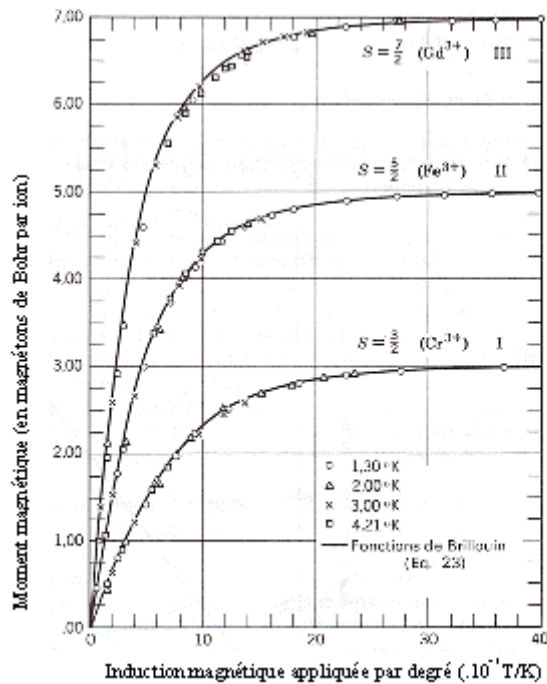


Figure 21 : Concordance, à des températures très faibles, entre modèle et résultats expérimentaux pour des échantillons sphériques d'alun de chrome (I), d'alun de fer ammoniacal (II) et d'octahydrate de sulfate de gadolinium (III).

## IV.4 Les matériaux ferromagnétiques

### IV.4.1 Propriétés macroscopiques

Des corps de susceptibilité très supérieure à l'unité seront appelés *ferromagnétiques*. Le ferromagnétisme pourrait être considéré, avec cette classification par susceptibilités, comme une sous-catégorie du paramagnétisme. On peut imaginer les matériaux ferromagnétiques comme des matériaux paramagnétiques dans lesquels de nombreuses interactions empêcheraient la distribution isotrope des moments magnétiques (Figure 10(a)).

Contrairement aux matériaux paramagnétiques, la susceptibilité magnétique ne devient pas infinie au zéro absolu. Son évolution met en évidence l'existence d'une température limite, appelée température de Curie, à laquelle la susceptibilité devient infinie (Figure 10 (c)). En dessous de cette température, la susceptibilité n'a pas de réalité physique.

Pour les températures supérieures à  $T_C$ , les corps ferromagnétiques deviennent paramagnétiques, l'aimantation évolue alors comme dans le cas du paramagnétisme (températures  $T_2$  et  $T_3$  Figure 10(b)). A  $T_C$ , on ne peut pas tracer la courbe (b) en raison du double comportement du corps.

Lorsque les corps ferromagnétiques ont été préalablement aimantés, ils possèdent une aimantation spontanée (Figure 10 (d)). La valeur  $M_0$  à  $T = 0$  correspond à l'alignement parfait des moments magnétiques. Au-delà de la température de Curie, les corps ferromagnétiques redeviennent paramagnétiques et suivent donc la loi de Curie (équation 23).

La plupart des matériaux ferromagnétiques ne sont pas des aimants permanents : c'est le cas du fer, du cobalt ou du nickel. Ces matériaux sont dits doux, ce qui signifie que les interactions des moments magnétiques sont insuffisantes pour maintenir durablement une aimantation spontanée anisotrope.

On peut cependant les aimanter préalablement et en faire de piètres aimants provisoires, qui se désaimantent sous l'effet d'un champ magnétique extérieur.

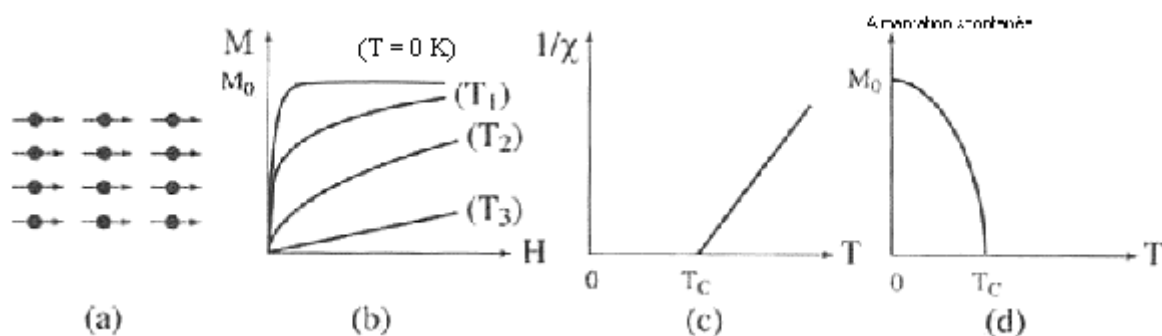


Figure 22 : (a) Alignement des moments magnétiques dans un corps ferromagnétique ; (b) variation sous champ de l'aimantation d'un corps ( $T_1 < T_C < T_2 < T_3$ ) ; (c) évolution de l'inverse de la susceptibilité en fonction de la température ; (d) existence d'une aimantation spontanée en dessous de  $T_C$



Les aimants permanents, par contre, possèdent une structure cristalline permettant un bon alignement des moments. Cette structure les protège des champs magnétiques perturbateurs susceptibles de les désaimanter. C'est le cas par exemple des aimants de type samarium-cobalt ( $\text{SmCo}_5$ ,  $\text{Sm}_2\text{Co}_{17}$ ).

#### IV.4.2 Cycle d'hystérésis

Lorsqu'on soumet un matériau ferromagnétique à un champ magnétique alternatif extérieur, sa réponse peut être décrite par une courbe appelée boucle d'hystérésis dont l'allure est donnée sur la Figure 11.

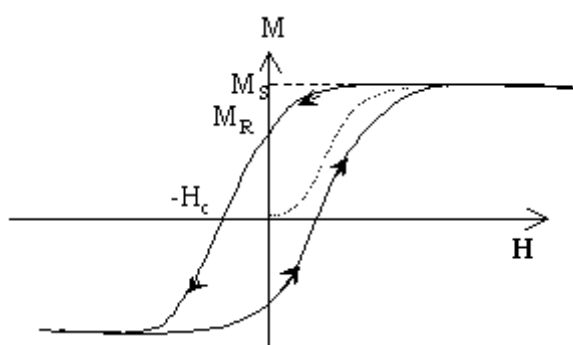


Figure 23 : Boucle d'hystérésis

Le champ coercitif  $\vec{H}_c$  est le champ qui annule l'aimantation après une première aimantation à saturation (appelée courbe de première aimantation, en pointillés sur la figure). Il caractérise donc l'aptitude d'un aimant à ne pas se désaimanter sous l'action d'un champ magnétique extérieur. Il correspond à l'intersection de la boucle d'hystérésis avec l'axe des abscisses. Quand  $H_c$  est très faible, les matériaux sont dits doux (cas du fer par exemple) ; si  $H_c$  est non nul et suffisamment grand, ils sont dits durs (cas des aimants permanents).

$M_S$  est l'aimantation à saturation du matériau, c'est-à-dire l'aimantation lorsque tous les moments sont alignés avec le champ.  $M_R$  est l'aimantation rémanente, aimantation qui subsiste sans excitation extérieure : c'est cette valeur qui caractérise, en autres, l'effet d'un aimant permanent.

Les théories permettant d'expliquer les propriétés macroscopiques des corps ferromagnétiques sont exposées dans le paragraphe suivant.

## IV.4.3 Le ferromagnétisme microscopique

### IV.4.3.1 Domaines de Weiss et parois de Bloch

Afin d'expliquer le phénomène d'hystérésis, Pierre Weiss a imaginé que les corps ferromagnétiques étaient divisés en domaines, ensembles toujours aimantés à saturation et comportant un très grand nombre d'atomes. Ces domaines sont séparés par des parois de Bloch, constituées par plusieurs plans atomiques dans lesquels l'aimantation change progressivement de direction et de norme d'un domaine à l'autre.

Lorsqu'on soumet un corps ferromagnétique à une excitation magnétique  $\vec{H}$ , les domaines dont l'aimantation a le même sens que  $\vec{H}$  grossissent au détriment des autres. Les parois de Bloch se déplacent jusqu'aux limites de l'échantillon. La Figure 12 montre le lien entre la courbe de première aimantation et l'existence des domaines et des parois.

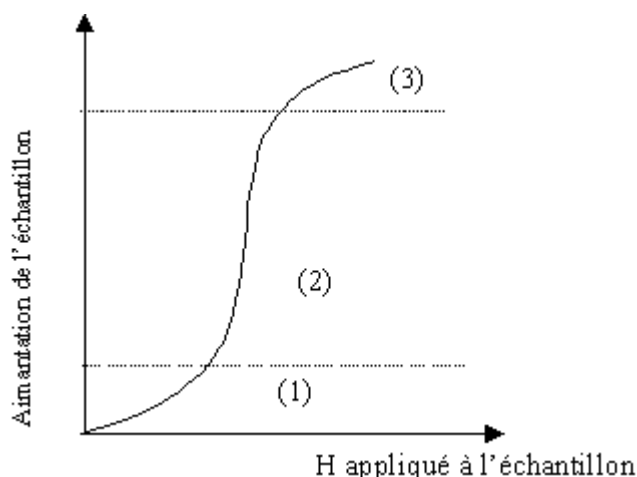


Figure 24 : Courbe de première aimantation d'un corps ferromagnétique

Dans la zone (1), les domaines de Weiss dont l'aimantation a le même sens que  $\vec{H}$  grossissent de manière réversible au détriment des autres. Dans (2), ce grossissement devient irréversible et le matériau gardera la trace de l'application de  $\vec{H}$ . Dans la région (3), tous les domaines voient leur aimantation tendre à s'aligner sur  $\vec{H}$ .

L'existence des domaines de Weiss explique également pourquoi tous les corps ferromagnétiques ne sont pas des aimants. L'arrangement de ces domaines n'est en effet pas aléatoire. Chaque corps « cherche » à organiser ses domaines dans le but de minimiser l'énergie magnétique qui dépend de l'interaction des moments, exactement comme dans un système

thermodynamique : c'est le cas dans les matériaux doux, qui n'ont pas de défaut structural s'opposant à la migration des parois ; dans les corps durs, l'existence de défauts empêche le déplacement des parois et donc la désaimantation.

La Figure 13 représente schématiquement l'organisation des domaines dans un aimant permanent (a) et dans un corps ferromagnétique désaimanté (b). Dans le cas (a), les lignes de champ se referment à l'extérieur du corps, ce qui induit un effet magnétique sur son environnement : le corps est dit « magnétique ». Dans le cas (b), les lignes d'induction produites par les domaines se referment à l'intérieur de l'échantillon, ce qui interdit tout effet extérieur.

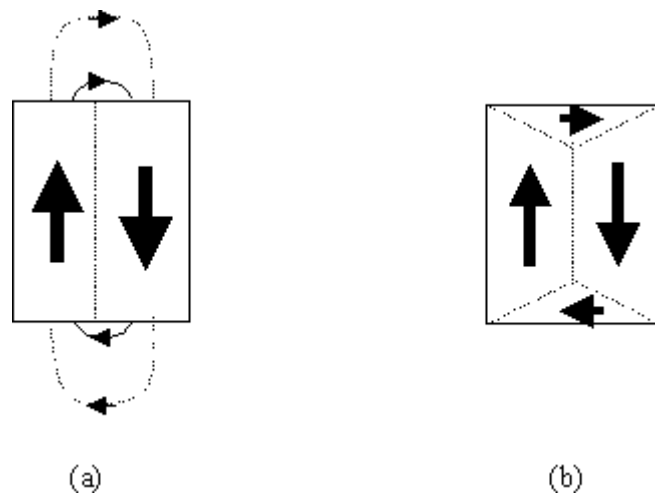


Figure 25 : (a) Organisation schématique des domaines dans un aimant et (b) dans un corps ferromagnétique désaimanté

#### IV.4.3.2 Les trois interactions à l'origine du ferromagnétisme

##### IV.4.3.2.1 L'interaction d'échange

Dans un corps ferromagnétique, les moments magnétiques de deux atomes voisins interagissent entre eux. Ce phénomène quantique est appelé interaction d'échange. L'énergie qui lui est associée s'écrit :

$$E_{ij} = -\mu_0 n_{ij} \vec{m}_i \cdot \vec{m}_j \quad (50)$$

où  $\vec{m}_i$  et  $\vec{m}_j$  sont les moments magnétiques des atomes voisins  $i$  et  $j$ . Le coefficient  $n_{ij}$  traduit le fait que les moments peuvent s'aligner parallèlement ou antiparallèlement : il vaut 1 ou  $-1$ .

L'énergie d'échange  $E_{\text{totale}}$  par unité de volume du matériau s'écrit :

$$E_{\text{totale}} = -\frac{\mu_0}{2} \sum_{i,i \neq j} n_{ij} \vec{m}_i \cdot \vec{m}_j = -\frac{\mu_0}{2} \sum_i \vec{m}_i \cdot \vec{H}_i \quad (51)$$

avec

$$\vec{H}_i = \sum_{j \neq i} n_{ij} \vec{m}_j \quad (52)$$

$\vec{H}_i$  est assimilable à un champ local agissant sur le moment  $\vec{m}_i$ . Sa valeur moyenne, à température fixée, constitue le champ moléculaire. Il se comporte comme un champ extérieur qui alignerait tous les moments et ce, même à la température ambiante. C'est là l'une des principales origines du ferromagnétisme.

#### IV.4.3.2.2 L'interaction avec le réseau : l'anisotropie magnétocristalline

Dans un cristal, chaque ion crée un champ électrique dans son environnement : c'est le champ cristallin. L'anisotropie magnétocristalline a pour origine l'interaction entre les moments magnétiques des électrons et ce champ. Cette interaction, mesurée par l'énergie d'anisotropie, est très variable selon la structure du cristal et joue, comme l'interaction d'échange, un très grand rôle pour les aimants permanents, notamment les aimants à base de terres rares (samarium et néodyme).

L'énergie d'anisotropie, ou énergie magnétocristalline, notée F, dépend de l'orientation du moment magnétique par rapport aux axes d'une maille élémentaire cristalline. Ainsi, dans le cas d'une maille cubique (Figure 14), on a, à l'ordre 2 des constantes d'anisotropie, à partir desquelles F peut s'écrire :

$$F = K_1(\alpha_2^2 \alpha_3^2 + \alpha_3^2 \alpha_1^2 + \alpha_1^2 \alpha_2^2) + K_2 \alpha_1^2 \alpha_2^2 \alpha_3^2 \quad (53)$$

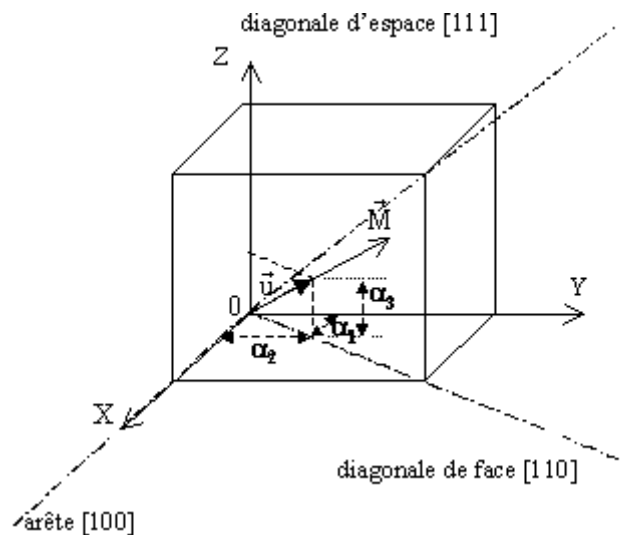


Figure 26 : Maille cubique élémentaire et orientation de l'aimantation

où  $K_1$  et  $K_2$  sont les constantes d'anisotropie des deux premiers ordres ;  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$  sont les cosinus directeurs de l'aimantation considérée par rapport aux trois axes du cristal ;  $\vec{u}$  est un vecteur unitaire de même direction que l'aimantation.

On montre que si  $K_1 > 0$ ,  $F$  est minimale pour les axes  $[100]$ ,  $[010]$  et  $[001]$  : ils sont dits de facile aimantation. Si  $K_1 < 0$ , c'est l'axe  $[111]$  qui sera de facile aimantation. L'énergie d'anisotropie agit donc comme une énergie fictive qui oriente spontanément l'aimantation d'un cristal le long de certains axes, grâce à la présence du champ cristallin.

Dans le cas d'une maille hexagonale représentée dans un repère sphérique  $(O, r, \theta, \varphi)$  avec l'axe  $[001]$  aligné sur  $(Oz)$  on montre que :

$$F = K_1' \sin^2 \theta + K_2' \sin^4 \theta + K_3' \sin^6 \theta + K_4' \sin^6 \theta \cos 6\varphi + \dots \quad (54)$$

Ainsi,  $\theta = 0$  minimise  $F$  : l'axe  $c$   $[001]$  est donc axe de facile aimantation.

Les valeurs des constantes d'anisotropie peuvent atteindre  $10^8 \text{ J/m}^3$  dans les alliages hexagonaux de terres rares : ils sont donc extrêmement anisotropes. Pour les cristaux cubiques, l'anisotropie est plus faible ( $10^4 \text{ J/m}^3$  dans le fer ou le nickel). Il existe en effet trois familles d'axes susceptibles d'être de facile aimantation. Ainsi, la direction de l'aimantation dans un cristal de fer est d'avantage isotrope : le fer se désaimante donc facilement.

La Figure 15 représente la variation, pour des températures inférieures à la température de Curie, de la norme de l'aimantation  $\vec{M}$  d'un corps dont l'axe c est de facile aimantation en fonction de la norme du champ appliqué  $\vec{H}$ . Deux comportements sont décrits pour atteindre la saturation. Le premier, (1), qui donne la norme de  $\vec{M}$  quand  $\vec{H}$  est appliqué selon l'axe c. Un faible champ suffit pour saturer le corps. Les domaines magnétiques dont l'aimantation fait un angle faible avec l'axe c grossissent très rapidement avec un faible champ au détriment des autres : l'aimantation à saturation est atteinte pour des champs faibles. Dans le second cas, (2),  $\vec{H}$  est appliqué perpendiculairement à l'axe c : le champ nécessaire pour atteindre la saturation est plus important. Aucun domaine n'est favorisé par rapport aux autres. Ceux dont l'aimantation est perpendiculaire à c ne parviennent pas à grossir suffisamment, avec un champ appliqué faible, au détriment des autres : c'est donc un axe de difficile aimantation et la saturation sera atteinte pour des champs plus forts.

Cette figure permet d'introduire la notion de champ d'anisotropie  $H_A$  : il correspond au champ minimal à appliquer à un corps le long d'un axe de difficile aimantation (c'est-à-dire ici perpendiculairement à c) afin de l'aimanter à saturation. L'énergie d'anisotropie est l'énergie qui oriente l'aimantation le long des axes de facile aimantation. Sur la Figure 15, cette énergie est égale à la surface délimitée par les deux courbes d'aimantation (zone hachurée sur la figure).

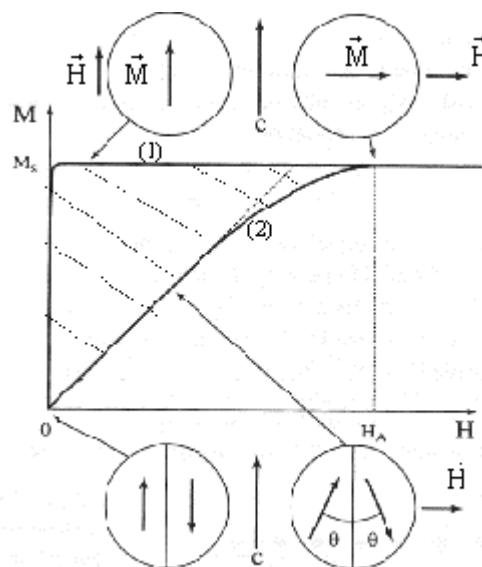


Figure 27 : Dépendance (pour  $T < T_c$ ) de l'aimantation en fonction du champ appliqué de norme  $H$  dans un corps où l'axe  $c$  est de facile aimantation ; orientation de  $\vec{M}$  par rapport à  $\vec{H}$  ; champ d'anisotropie

#### IV.4.3.2.3 L'interaction dipolaire magnétique

Chaque moment magnétique  $\vec{m}_i$  d'un corps subit, de la part des autres moments  $\vec{m}_j$ , une interaction dipolaire magnétique. Elle varie en  $\frac{1}{r_{ij}^3}$ , où  $r_{ij}$  est la distance entre l'atome portant le moment  $\vec{m}_i$  et l'atome portant le moment  $\vec{m}_j$ . On pourrait ainsi croire que cette interaction est vite négligeable avec l'augmentation de  $r_{ij}$  mais le nombre de voisins du moment  $\vec{m}_i$  varie comme  $r_{ij}^3$  : chaque moment a donc une influence sur un très grand nombre de voisins. L'interaction dipolaire est donc prépondérante à grande distance (c'est-à-dire s'il y a, dans un volume fixé, un grand nombre de voisins pour chaque atome considéré).

Le principal effet de l'interaction dipolaire est le bouclage des lignes de flux magnétique dans les matériaux. Ce processus s'explique par le fait que les moments, à courte distance, sont parallèles entre eux : l'interaction d'échange prédomine alors. De proche en proche, l'effet de l'interaction dipolaire permet de modifier la direction des moments par rapport à celle d'un moment pris pour origine : les lignes de flux se referment sur elles-mêmes.

L'interaction dipolaire magnétique à longue distance joue également un rôle très important dans le processus d'aimantation des matériaux magnétiques et dans les propriétés macroscopiques des aimants.

#### IV.4.3.3 Le champ démagnétisant

La forme d'un corps aimanté a une influence très importante sur la valeur du champ magnétique interne du corps : cela est une conséquence de l'interaction dipolaire magnétique. Un **champ** dit **démagnétisant** apparaît à l'intérieur du corps, dans le sens opposé à son aimantation. La Figure 16 représente les lignes d'induction et de champ magnétique, dans un cylindre uniformément aimanté selon son grand axe en l'absence de tout champ extérieur. Les lignes de champ sont, à l'intérieur du cylindre, de direction opposée à l'aimantation. Cette propriété est très importante, notamment pour les applications hyperfréquences. C'est elle qui va créer les conditions de non-réciprocité.

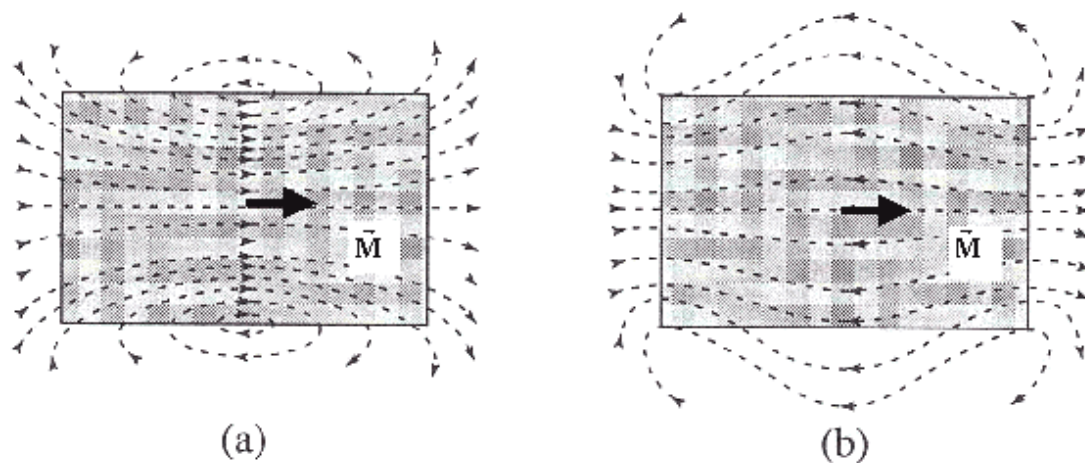


Figure 28 : (a) Lignes d'induction et (b) de champ à l'intérieur et à l'extérieur d'un cylindre uniformément aimanté en l'absence de champ extérieur

Soit un échantillon de dimensions finies soumis à un champ magnétique extérieur  $\vec{H}$ . Un champ démagnétisant  $\vec{H}_d$  apparaît à l'intérieur. Le champ  $\vec{H}_i$  à l'intérieur du matériau se trouve modifié ; nous avons :  $\vec{H}_i = \vec{H} + \vec{H}_d$ . Les composantes de  $\vec{H}_d$ , dans un repère orthonormé  $(O,x,y,z)$ , sont liées à celles de l'aimantation  $\vec{M}$  par les relations :

$$\begin{aligned} H_{dx} &= -N_x M_x \\ H_{dy} &= -N_y M_y \\ H_{dz} &= -N_z M_z \end{aligned} \tag{55}$$

avec

$$N_x + N_y + N_z = 1 \tag{56}$$

$N_x$ ,  $N_y$  et  $N_z$  sont appelés facteurs de champ démagnétisant ; ils dépendent de la forme de l'échantillon. Leurs valeurs sont représentées dans le tableau 3 pour des formes géométriques particulières. Ainsi, pour une plaquette mince, c'est-à-dire d'épaisseur très faible devant ses dimensions transversales, le champ à l'intérieur de la plaquette sera nul.



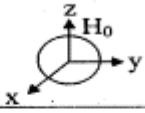

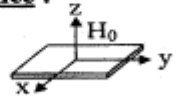
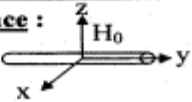
FORME	$N_x$	$N_y$	$N_z$
<b>Sphère :</b> 	1/3	1/3	1/3
<b>Disque plat :</b> 	0	0	1
<b>Plaquette mince :</b> 	0	0	1
<b>Cylindre mince :</b> 	1/2	0	1/2

Tableau 5 : Valeur des facteurs de champ démagnétisant pour des formes géométriques particulières

## IV.5 Les matériaux antiferromagnétiques

Comme dans le cas du paramagnétisme, la susceptibilité des corps antiferromagnétiques est faible et positive. Ces corps sont constitués de deux sous-réseaux de moments magnétiques antiparallèles (Figure 17 (a)), en dessous d'une température critique dite de Néel,  $T_N$ . Les aimantations des deux sous-réseaux sont opposées, de sorte que l'aimantation totale d'un corps antiferromagnétique est toujours nulle.

L'interaction entre les moments, appelée *interaction d'échange négative*, empêche l'alignement des moments dans un seul sens sous l'action d'un champ externe. Le comportement de la susceptibilité et de l'aimantation des corps antiferromagnétiques est représenté sur les figures I.17 (b) et (c). A haute température, le comportement est analogue au paramagnétisme.

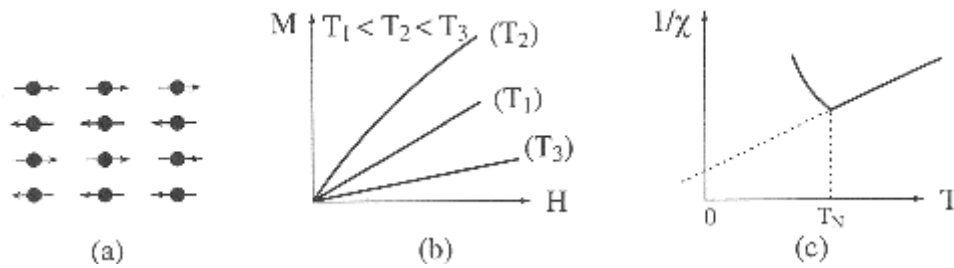


Figure 29 : (a) Arrangement des moments dans les corps antiferromagnétiques ; (b) évolution de l'aimantation en fonction du champ appliqué à trois températures différentes ; (c) dépendance de la susceptibilité en fonction de la température

#### IV.6 Les matériaux ferrimagnétiques

Les corps ferrimagnétiques sont des corps antiferromagnétiques dans lesquels les deux sous-réseaux n'ont pas la même aimantation (Figure 18 (a)). Il apparaît donc une aimantation spontanée en dessous de la température de Curie  $T_C$  (Figure 18 (d)). Ce comportement rappelle fortement le ferromagnétisme. Les corps ferrimagnétiques, comme les hexaferrites, présentent donc un fort intérêt macroscopique puisqu'ils induisent un effet magnétique extérieur. Dans de nombreux cas, leur structure cristalline leur confère, de plus, un champ coercitif intéressant. Leur comportement est synthétisé sur les figures 18 (b),(c) et (d).

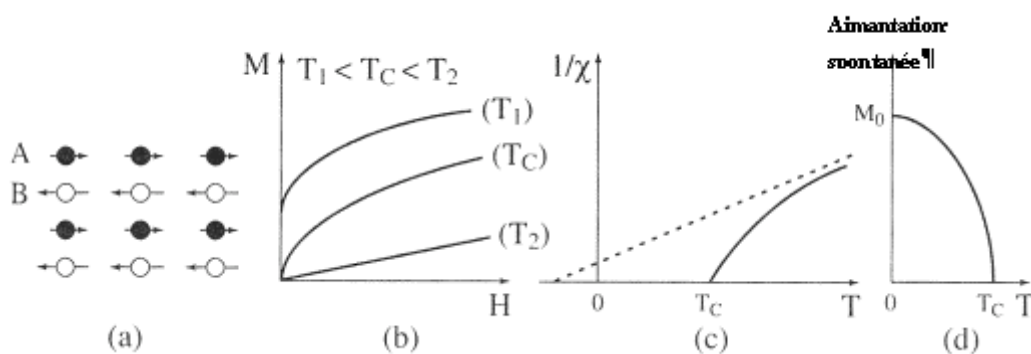


Figure 30 : (a) Arrangement des moments dans les corps ferrimagnétiques; (b) évolution de l'aimantation en fonction du champ appliqué à trois températures différentes ; (c) dépendance de la susceptibilité en fonction de la température ; (d) existence d'une aimantation spontanée aux températures inférieures à  $T_C$

## Bibliographie de l'annexe I

- [1] : DU TREMOLET DE LACHEISSERIE E., *Magnétisme, Tome I: Fondements*, Collection Grenoble Sciences, 1999.
- [2] : THOUREL L., *Dispositifs à ferrites pour micro-ondes*, Paris, Masson, 1969.
- [3] : JILES D., *Introduction to magnetism and magnetic materials*, Chapman ans Hall, 1989.
- [4] : BREUER H., *Atlas de la physique*, La Pochothèque, 1997.
- [5] : KITTEL C., *Physique de l'état solide*, Dunod, 1983.

## Annexe II : la pulvérisation cathodique radiofréquence magnétron

Nous présentons ici très sommairement la technique de dépôt que nous utilisons, c'est-à-dire la pulvérisation cathodique radiofréquence magnétron. Nous définissons également la notion d'efficacité (ou rendement) de pulvérisation indispensable à la compréhension du phénomène. Des ouvrages très spécialisés permettent d'avoir une vision plus complète de cette technique [1, 2, 3].

La description du dispositif de dépôt a été détaillée dans la troisième partie.

# I Généralités sur la pulvérisation cathodique

La pulvérisation cathodique est une technique de dépôt physique en phase vapeur (PVD) découverte en 1852 par Groove. En PVD, les éléments entrant dans la composition des dépôts sont introduits sous forme solide dans l'enceinte de dépôt. Ils sont ensuite mis en phase vapeur avant de se déposer sur les substrats placés en face de la cible.

## I.1 La pulvérisation cathodique

Le principe est le suivant : un gaz ionisable neutre, tel que l'Argon est introduit à faible pression (de l'ordre du Pascal) dans l'enceinte de dépôt. La cathode, sur laquelle est montée la cible de pulvérisation constituée du matériau à déposer, est polarisée négativement par rapport aux autres éléments de l'enceinte qui eux sont à la masse, d'où le nom de pulvérisation cathodique. Une décharge électrique est amorcée entre la cathode et les substrats, ce qui ionise le milieu gazeux. Il s'ensuit la coexistence dans l'enceinte d'ions positifs, d'espèces neutres et d'électrons : c'est un plasma. Sous l'effet de la différence de potentiel, les ions Argon, attirés par la cathode, viennent bombarder la cible de pulvérisation. Des atomes de la cible sont alors éjectés et vont se déposer sur les substrats.

## I.2 La pulvérisation cathodique radiofréquence

La polarisation de la cathode se fait, dans le cas des cibles conductrices, par une tension continue. Les cibles de pulvérisation isolantes, elles, sont polarisées par une tension alternative, ce qui limite l'apparition de charges électriques sur le matériau à déposer et évite ainsi de perturber le plasma. Généralement, la fréquence radiofréquence utilisée est 13,56 MHz.

Cette technique fonctionne également avec des matériaux conducteurs, ce qui permet d'obtenir un plasma très stable aux faibles pressions. Ces avantages sont dus au caractère alternatif de la polarisation, qui densifie ainsi le plasma.

## I.3 La pulvérisation cathodique radiofréquence magnétron

Nous avons vu qu'un plasma est composé, entre autres, de cations et d'électrons. Un champ magnétique placé au voisinage de la cible peut augmenter fortement la vitesse de dépôt en agissant

directement sur les électrons. Ceux-ci vont s'enrouler autour des lignes de champ magnétique (en pointillés sur la figure 1) et augmenter les chances d'ioniser les atomes d'Argon au voisinage de la cathode. Sur la figure 1, le champ magnétique est apporté par trois aimants dont les pôles Nord et Sud sont notés N et S.

Les caractéristiques précises de la cathode magnétron que nous utilisons ont été présentées dans la troisième partie. Elle est propre aux cibles magnétiques ; l'aimant central de la figure 1 est remplacé par un cylindre de Fer doux qui canalise les lignes de champ et affaiblit sa norme.

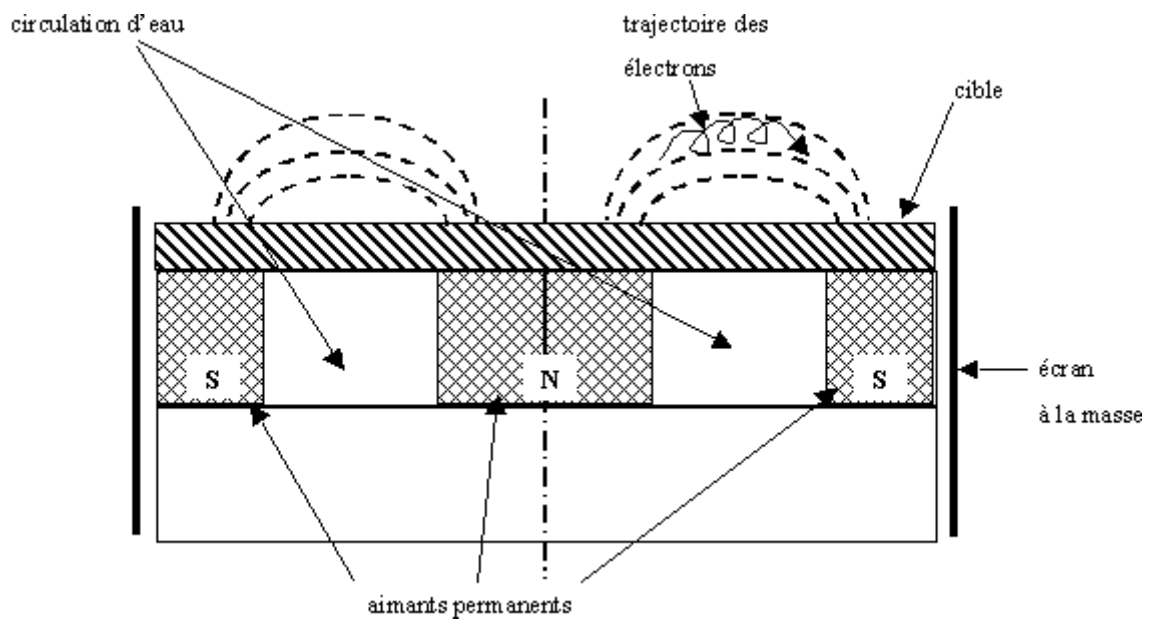


Figure 1 : Exemple de cathode magnétron pour matériaux non magnétiques

Dans la suite, nous allons voir les principaux mécanismes régissant la pulvérisation.

## II Interaction ions – matière

Lors de l'interaction entre les ions du gaz porteur de la décharge et les atomes du matériau constituant la cible, il existe plusieurs types de chocs élastiques ou inélastiques. La figure 2 résume ces différentes collisions.

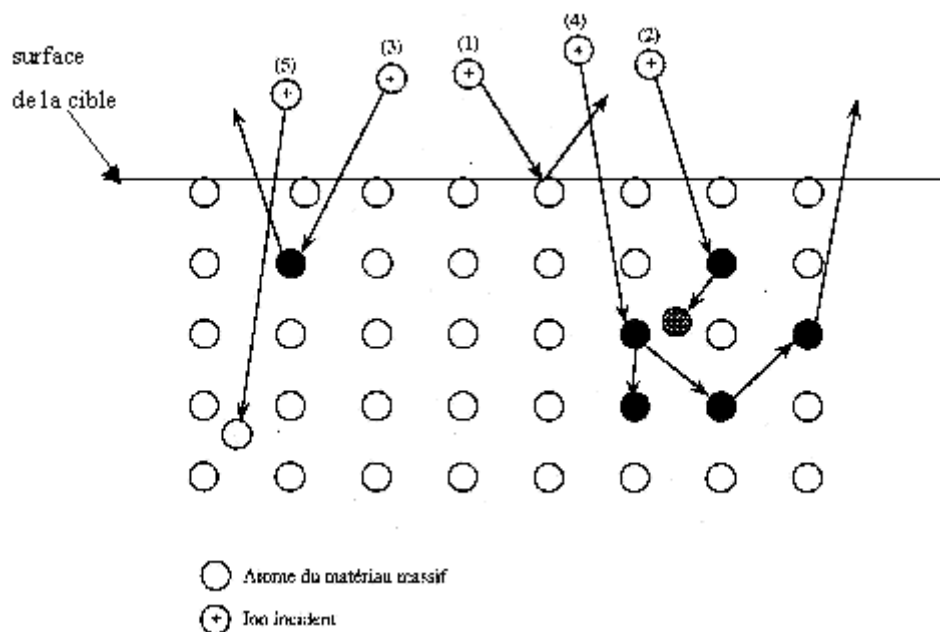


Figure 2 : Les différentes interactions ions – matière solide

Les cations d'Argon peuvent :

- être rétrodiffusés par un choc élastique (processus n°1),
- créer une lacune ou un défaut en déplaçant un atome de la cible (processus n°2),
- éjecter un atome des premières couches atomiques (processus n°3),
- éjecter un atome de la cible après des collisions en cascade (processus n°4),
- s'implanter dans la cible (processus n°5).

Les processus n°3 et 4 sont à l'origine de la formation des dépôts sur les substrats.

Il est important de noter que toutes ces collisions ne font intervenir que quelques atomes et non une ou plusieurs mailles cristallines : les espèces éjectées de la cible sont des atomes ou des



petits groupes d'atomes qui vont se combiner, après quelques collisions dans l'enceinte, à la surface des substrats. Cela signifie que le phénomène de cristallisation sur les substrats sera très différent de ceux rencontrés, par exemple, dans les dépôts par laser pulsé : dans ce dernier cas, un grand nombre de mailles cristallines est arraché de la cible, ce qui facilite un transfert stœchiométrique des espèces. Ces remarques ont des conséquences importantes que nous évoquons dans le paragraphe suivant.

### III Efficacité de pulvérisation

Le fait que la pulvérisation soit un ensemble d'interactions atome/atome ionisé signifie que les propriétés des espèces qui entrent en collision sont déterminantes dans les processus de dépôt. En particulier, on comprend aisément que l'angle d'attaque des ions Argon (de masse  $M_1$ ), les masses des atomes de la cible ( $M_2$ ), et les sections efficaces des atomes de la cible sont des paramètres fondamentaux.

On définit une grandeur  $S$ , appelée efficacité de pulvérisation, qui traduit l'aptitude des atomes de la cible à s'éjecter de la cible.  $S$  est le rapport du nombre d'atomes pulvérisés sur le nombre d'ions incidents. On montre que [1] :

$$S = C \frac{S_n(E)}{E_b} \alpha \left( \frac{M_2}{M_1}, \xi \right)$$

où :

- $C$  est une constante,
- $S_n(E)$  est la section efficace de ralentissement nucléaire, liée à la masse des atomes de la cible ( $M_2$ ) et des ions incidents ( $M_1$ ),
- $E_b$  est l'énergie de liaison des atomes du matériau à pulvériser, qui dépend de la nature des atomes de la cible et du type de liaison,
- $\alpha \left( \frac{M_2}{M_1}, \xi \right)$  est une fonction du rapport atomique  $\frac{M_2}{M_1}$  et de l'angle d'attaque  $\xi$  des ions

Argon par rapport à la normale à la cible.

L'efficacité de pulvérisation d'un matériau monoatomique peut être évaluée théoriquement à partir de l'équation (1) ; des tables, issues de mesures expérimentales, répertorient également les valeurs de  $S$  pour la plupart des corps purs.

En revanche, dans le cas des alliages, il est très difficile d'évaluer et de prévoir  $S$  en raison notamment du facteur  $E_b$  : les phénomènes mis en jeu sont très différents du cas d'un corps pur. L'équation (1) rend, dans ce cas, mal compte de la réalité physique. Ainsi, l'efficacité de pulvérisation d'un élément peut être très différente s'il est dans une cible monoatomique ou dans une

cible polyatomique [1]. C'est pourquoi seule l'expérience prévaut dans le cas des alliages métalliques comme les Samarium-Cobalt ou les Néodyme-Fer-Bore.

## Bibliographie de l'annexe II

[1] : RICHARDT A., DURAND A.M., *Le vide, les couches dures, les couches minces*, Editions In Fine, 1994.

[2] : RICHARDT A., DURAND A.M., *La pratique du vide et des dépôts de couches minces*, Editions In Fine, 1995.

[3] : RICHARDT A., DURAND A.M., *Les interactions ions énergétiques-solides*, Editions In Fine, 1997.

Annexe III : effet d'une couche magnétique  
aimantée perpendiculairement à sa surface sur son  
environnement proche ; importance du champ  
démagnétisant

# I Introduction

Nous avons présenté, dans la première partie, les structures envisagées pour intégrer les circulateurs et les antennes (figures I.5 et I.6). Nous avons abordé, dans l'annexe I, la notion de champ démagnétisant et nous avons vu qu'il a une importance fondamentale dans les couches magnétiques. Son effet dépend fortement des dimensions des couches considérées. Dans le cas de disques et de plaquettes minces, il est très défavorable : leur aimantation est annulée dans la direction perpendiculaire à leur plan (annexe I). Or, pour qu'un dispositif non réciproque fonctionne, il faut que ce champ démagnétisant ne contre pas complètement l'aimantation de la couche magnétique qui crée le champ statique. Il est donc intéressant de comprendre ce qu'on appelle disque et plaquette « minces » et pour quelles dimensions de couche l'effet magnétique devient nul.

Nous allons donc ici, à partir d'équations simples du magnétisme et de deux applications numériques, essayer de prévoir l'effet, sur une couche de ferrite doux, d'une couche d'aimant uniformément aimantée et orientée perpendiculairement à son plan. Deux approches vont être envisagées : nous allons d'abord considérer que la couche d'aimant est un cylindre puis qu'elle est un parallélépipède rectangle.

## II Couche d'aimant assimilée à un cylindre

La couche d'aimant, qui induit le champ statique indispensable aux conditions de non-réciprocité, est ici assimilée à un cylindre de centre O, de rayon R et de longueur 2L. Son aimantation  $\vec{M}_s$  est supposée à saturation, uniforme et orientée selon son grand axe, c'est-à-dire ici selon (Oz) (figure 1).

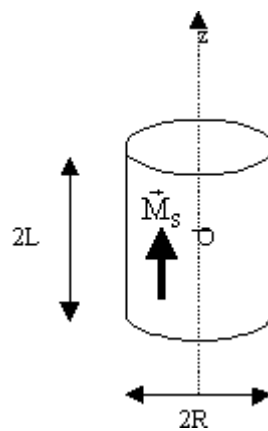


Figure 3 : Couche d'aimant assimilée à un cylindre aimanté

Ce cas correspond, dans la réalité, à un dépôt d'aimant sur un substrat de forme circulaire. Ce dépôt est supposé aimanté le long de son axe facile qui est orienté le long de (Oz). L'épaisseur de la couche vaut ici 2L.

L'expression de l'induction **[1]** créée en un point M de côte z sur l'axe (origine au centre du cylindre) est :

$$B_z = \frac{\mu_0 M_s}{2} \left[ \frac{L-z}{\sqrt{R^2 + (L-z)^2}} + \frac{L+z}{\sqrt{R^2 + (L+z)^2}} \right] \quad (2)$$

### III Couche d'aimant assimilée à un parallélépipède rectangle

La couche d'aimant est ici assimilée à un parallélépipède rectangle de centre O de dimensions 2a, 2b et 2c (figure 2). C'est ici le cas d'un dépôt d'épaisseur 2c réalisé sur un substrat rectangulaire. Pour rendre compte de la direction de l'aimantation de cette couche d'aimant, nous considérons que la face supérieure de la couche porte l'aimantation  $+M_s$  et sa face inférieure  $-M_s$ . C'est l'approche coulombienne évoquée dans l'annexe I.

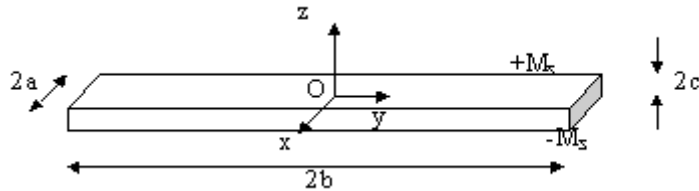


Figure 4 : Couche d'aimant assimilée à un parallélépipède rectangle

L'origine O du repère est prise au centre du parallélépipède rectangle.

La face supérieure d'aimantation  $+M_s$ , crée [2], en un point P de l'espace de coordonnées  $(x_0, y_0, z_0)$ , une induction dirigée selon (Oz), notée  $B_{z+}$  :

$$B_{z+} = \frac{\mu_0}{4\pi} M_s \left[ \arctan \frac{(a - x_0)(b - y_0)}{(z_0 - c)\sqrt{(a - x_0)^2 + (b - y_0)^2 + (z_0 - c)^2}} + \arctan \frac{(a - x_0)(b + y_0)}{(z_0 - c)\sqrt{(a - x_0)^2 + (b + y_0)^2 + (z_0 - c)^2}} \right. \\ \left. + \arctan \frac{(a + x_0)(b - y_0)}{(z_0 - c)\sqrt{(a + x_0)^2 + (b - y_0)^2 + (z_0 - c)^2}} + \arctan \frac{(a + x_0)(b + y_0)}{(z_0 - c)\sqrt{(a + x_0)^2 + (b + y_0)^2 + (z_0 - c)^2}} \right]$$

La face inférieure, d'aimantation  $-M_s$  crée au point P une induction dirigée selon (Oz), notée  $B_{z-}$  :



$$B_{z-} = -\frac{\mu_0}{4\pi} M_s \left[ \arctan \frac{(a-x_0)(b-y_0)}{(z_0+c)\sqrt{(a-x_0)^2+(b-y_0)^2(z_0+c)^2}} + \arctan \frac{(a-x_0)(b+y_0)}{(z_0+c)\sqrt{(a-x_0)^2+(b+y_0)^2(z_0+c)^2}} \right. \\ \left. + \arctan \frac{(a+x_0)(b-y_0)}{(z_0+c)\sqrt{(a+x_0)^2+(b-y_0)^2(z_0+c)^2}} + \arctan \frac{(a+x_0)(b+y_0)}{(z_0+c)\sqrt{(a+x_0)^2+(b+y_0)^2(z_0+c)^2}} \right]$$

En un point P' de l'axe (Oz), de coordonnées ( $x_0 = 0, y_0 = 0, z_0 = z$ ), ces équations deviennent :

$$\text{- pour la face supérieure : } B'_{z+} = \frac{\mu_0 M_s}{\pi} \arctan \frac{ab}{(z-c)\sqrt{a^2+b^2(z-c)^2}} \quad (3)$$

$$\text{- pour la face inférieure : } B'_{z-} = -\frac{\mu_0 M_s}{\pi} \arctan \frac{ab}{(z+c)\sqrt{a^2+b^2(z+c)^2}} \quad (4)$$

L'expression de la composante selon (Oz) de l'induction créée au point P' est donc :

$$B_z = \frac{\mu_0 M_s}{\pi} \left[ \arctan \frac{ab}{(z-c)\sqrt{a^2+b^2(z-c)^2}} - \arctan \frac{ab}{(z+c)\sqrt{a^2+b^2(z+c)^2}} \right] \quad (5)$$

## IV Comparaison des deux approches

Les équations (1) et (4) représentent les valeurs des composantes selon (Oz) des inductions créées par deux couches d'aimants aimantées à saturation, l'une circulaire, l'autre rectangulaire. Nous avons évalué numériquement ces deux types d'induction à partir de deux exemples réalistes envisageables pour des couches magnétiques dans un dispositif hyperfréquence.

### IV.1 Couche épaisse de dimensions transverses de l'ordre de grandeur de l'épaisseur : cas d'un champ démagnétisant « faible »

La figure 3 représente les résultats obtenus par les deux approches avec les données suivantes :

- les dimensions transverses valent  $R = 2,5 \mu\text{m}$  pour le cylindre et  $a = b = 2,5 \mu\text{m}$  pour le parallélépipède ;
- l'épaisseur des couches vaut  $2L = 2c = 10 \mu\text{m}$  ;
- la couche d'aimant est aimantée à saturation selon (Oz) et la valeur de  $\mu_0 M_S$  vaut 1,1 T.

En abscisse est reportée la cote  $z$  en  $\mu\text{m}$ , distance du point considéré au centre du cylindre ou du parallélépipède. La courbe rouge est tracée à partir de l'équation (4) et la courbe noire est tracée à partir de l'équation (1).

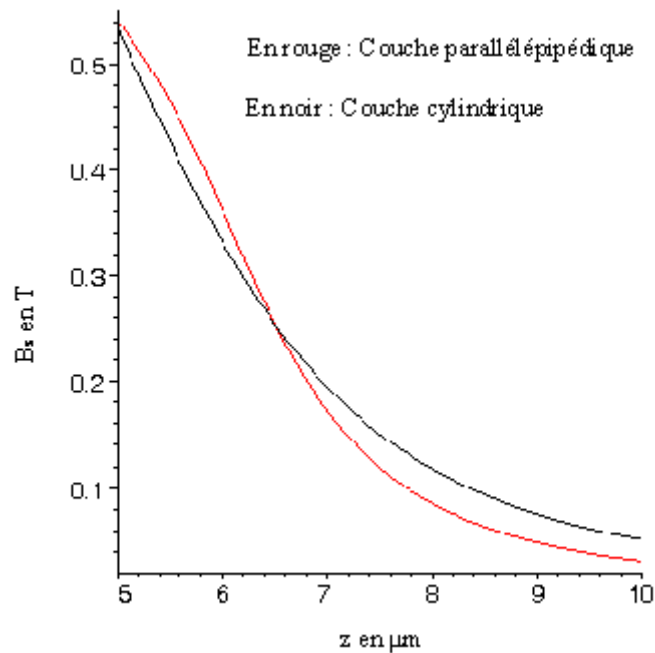


Figure 5 : Comparaison des deux approches pour des couches de dimensions transverses du même ordre que l'épaisseur

Dans ce cas les deux modèles convergent bien et donnent, à la surface de la couche (en  $z = 5 \mu\text{m}$ ), des valeurs d'inductions comprises entre  $6,6 \cdot 10^{-7} \text{ T}$  et  $6,8 \cdot 10^{-7} \text{ T}$ . Ces ordres de grandeur sont à comparer aux valeurs obtenues dans le cas des champs démagnétisants forts que nous présentons dans le paragraphe suivant.

## IV.2 Couche épaisse de dimensions transverses très grandes devant l'épaisseur : cas d'un champ démagnétisant fort

Nous étudions ici le cas d'une couche dont les dimensions transverses sont très grandes devant l'épaisseur. Les courbes des figures 4 et 5 sont tracées avec les valeurs suivantes :

- les dimensions transverses valent  $R = 2,5 \text{ mm}$  pour le cylindre et  $a = b = 2,5 \text{ mm}$  pour le parallélépipède ;
- l'épaisseur des couche vaut  $2L = 2c = 10 \mu\text{m}$  ;
- la couche d'aimant est aimantée à saturation selon (Oz) et sa valeur  $M_S = 1,1 \text{ T}$ .

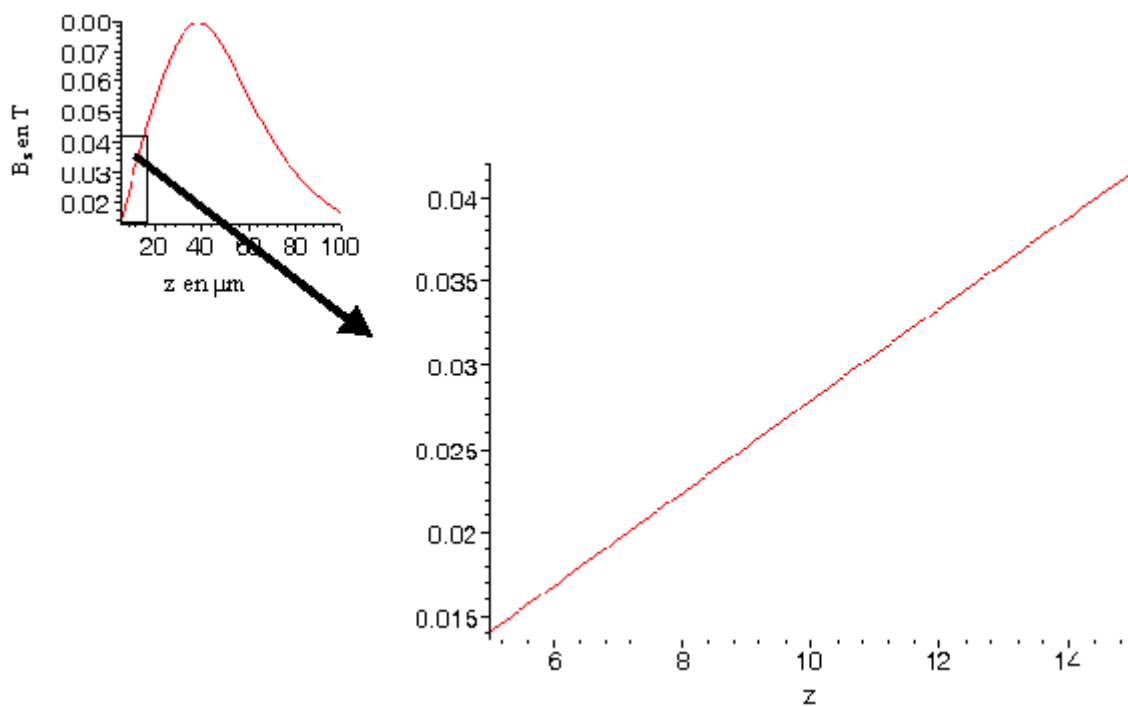


Figure 6 :  $B_z(z)$  pour couches de dimensions très grandes devant l'épaisseur dans le cas d'une couche parallélépipédique

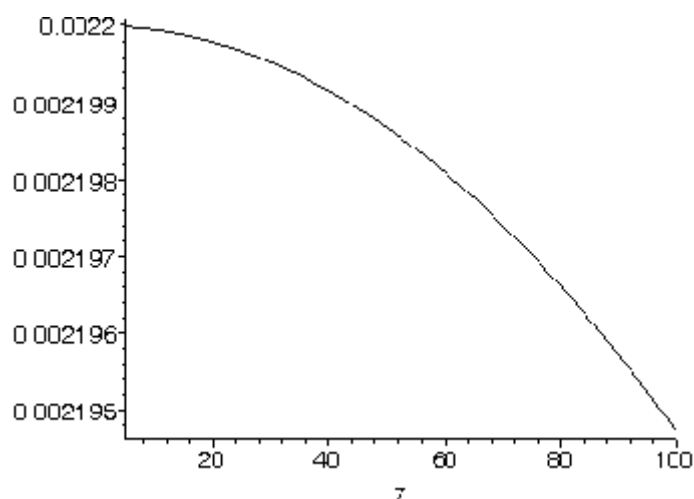


Figure 7 :  $B_z(z)$  pour des couches de dimensions très grandes devant l'épaisseur dans le cas d'une couche cylindrique

Nous constatons, en comparant les figures 4 et 5, que les deux modèles de couches divergent : pour ces dimensions transverses, contrairement au cas précédent, le comportement d'une couche cylindrique est donc différent de celui d'une couche parallélépipédique. De plus, les ordres de

grandeur obtenus sont bien plus faibles que dans le paragraphe IV.1 : la composante  $B_z$  est, à la surface de la couche, diminuée de 99,5 % par rapport au cas précédent !

## V Conclusion

A partir de ces exemples simples, il ressort que le problème du champ démagnétisant pour des couches aimantées perpendiculairement à leur plan est crucial. Les dimensions transverses des couches constituent donc un paramètre important dans les choix technologiques. Une superposition de plusieurs couches d'aimants pourra être envisagée pour renforcer l'induction à l'intérieur du ferrite doux. Ces problèmes nécessiteront une étude complète une fois que l'on aura réalisé des couches correctement texturées : les problèmes de champ démagnétisant conditionnent en effet le bon fonctionnement des dispositifs micro-ondes non réciproques intégrés.

### **Bibliographie de l'annexe III**

[1] : DU TREMOLET DE LACHEISSERIE E., *Magnétisme, Tome I : Fondements*, Collection Grenoble Sciences, 1999.

[2] : Communication personnelle de Monsieur D. Givord, laboratoire Louis Néel, Grenoble.

## Annexe IV : principales fiches JCPDS utilisées

Pattern : 27-1122		Radiation = 1.540598		Quality : Calculated			
Co <sub>5</sub> Sm		<b>2th</b>	<b>i</b>	<b>h</b>	<b>k</b>	<b>l</b>	
Cobalt Samarium		20.504	2	1	0	0	
		22.331	8	0	0	1	
		30.485	60	1	0	1	
		35.922	36	1	1	0	
		41.705	36	2	0	0	
		42.696	100	1	1	1	
		45.571	24	0	0	2	
		47.808	5	2	0	1	
		59.346	11	1	1	2	
		61.211	10	2	1	1	
		63.493	14	2	0	2	
		64.528	4	3	0	0	
		69.231	14	3	0	1	
		74.817	2	1	0	3	
		76.156	9	2	2	0	
		82.267	7	1	1	3	
		82.524	6	3	0	2	
		84.197	3	3	1	1	
		90.783	2	4	0	0	
		93.450	8	2	2	2	
		96.811	2	2	1	3	
		101.530	1	0	0	4	
		104.229	3	3	0	3	
		106.240	1	3	2	1	
		108.290	2	4	0	2	
		109.320	1	4	1	0	
		112.952	1	1	1	4	
		113.900	5	4	1	1	
		116.964	2	2	0	4	
		119.881	1	3	1	3	
		129.123	2	4	1	2	
		140.361	1	3	0	4	
		140.752	1	4	2	0	
		141.790	2	3	3	1	
		151.530	1	3	2	3	
<b>Lattice</b> : Hexagonal <b>S.G.</b> : P6/mmm (191) <b>a</b> = 4.99700 <b>c</b> = 3.97800 <b>Z</b> = 1		<b>Mol. weight</b> = 445.07 <b>Volume [CD]</b> = 86.02 <b>Dx</b> = 8.591 <b>Dm</b> = 8.580					
Khan, Y., Feldmann, J. Less-Common Met., volume 31, page 111 (1973). Natl. Bur. Stand. (U.S.) Monogr. 25, volume 13, page 90 (1976).							
<b>Radiation</b> : CuKα1 <b>Lambda</b> : 1.54060 <b>SS/FOM</b> : F30= 59(0.0121,42)		<b>Filter</b> : Not specified <b>d-sp</b> : Calculated spacings					

Figure 1 : fiche JCPDS de SmCo<sub>5</sub>



Pattern : 65-3640		Radiation = 1.540598					Quality : Calculated				
Co <sub>7</sub> Sm <sub>2</sub>		<b>2th</b>	<b>i</b>	<b>h</b>	<b>k</b>	<b>l</b>	<b>2th</b>	<b>i</b>	<b>h</b>	<b>k</b>	<b>l</b>
Cobalt Samarium		7.288	19	0	0	2	90.789	5	4	0	3
		14.582	8	0	0	4	91.575	1	4	0	4
		20.316	31	1	0	0	92.042	54	1	0	0
		20.645	62	1	0	1	92.042	54	2	2	12
		21.903	5	1	0	2	92.611	11	4	0	5
		21.918	37	0	0	6	92.982	20	3	1	11
		23.115	16	1	0	3	92.982	20	2	0	0
		25.087	5	1	0	4	93.878	1	4	0	6
		27.427	2	1	0	5	94.237	6	3	0	0
		29.386	38	0	0	8	94.933	1	2	1	7
		30.059	111	1	0	6	95.379	2	4	0	0
		32.922	743	1	0	7	95.615	4	3	1	12
		35.573	546	1	1	0	97.114	2	4	0	8
		35.973	44	1	0	8	97.114	2	1	0	0
		36.357	4	1	1	2	97.716	23	2	0	0
		36.944	5	0	0	10	98.050	44	2	2	14
		38.625	8	1	1	4	98.050	44	3	0	0
		38.181	81	1	0	9	98.513	10	3	1	13
		41.309	132	2	0	0	99.003	7	0	0	0
		41.483	350	2	0	1	99.003	7	4	0	9
		42.001	1	2	0	2	99.223	4	2	1	0
		42.176	999	1	1	6	100.603	2	3	2	1
		42.523	10	1	0	10	100.603	1	3	2	2
		42.854	78	2	0	3	100.954	1	3	2	1
		44.025	1	2	0	4	101.311	1	4	0	10
		44.693	135	0	0	12	101.889	12	3	1	14
		45.495	163	2	0	5	102.146	6	3	0	0
		45.985	75	1	0	11	102.633	2	1	0	0
		46.774	78	1	1	8	103.425	1	3	2	5
		47.244	29	2	0	6	103.803	13	4	0	11
		48.248	7	2	0	7	103.803	13	2	1	0
		48.559	25	1	0	12	104.730	5	3	2	8
		51.488	10	2	0	8	105.100	12	3	1	15
		52.223	18	1	1	10	105.100	12	2	2	7
		52.665	44	0	0	14	106.262	38	3	0	0
		53.239	28	1	0	13	106.541	18	3	0	0
		53.947	1	2	0	9	107.843	32	4	1	0
		55.630	5	2	1	0	107.843	32	4	1	1
		55.770	10	2	1	1	108.117	18	2	0	0
		56.186	1	2	1	2	108.117	18	4	1	2
		56.607	2	2	0	10	108.486	8	1	0	0
		57.026	39	1	0	14	108.717	19	2	1	0
		57.132	1	2	1	4	108.717	19	3	1	0
		58.302	12	1	1	12	109.553	26	4	0	13
		59.047	1	2	1	5	110.067	13	1	1	0
		59.455	2	2	0	11	110.158	5	3	2	9
		60.511	21	2	1	6	110.952	1	4	1	5
		60.919	15	1	0	15	110.952	1	0	0	0
		60.919	15	0	0	0	111.285	24	3	0	0
		62.215	189	2	1	7	112.252	79	4	1	6
		63.689	75	3	0	0	112.885	7	4	0	14
		64.149	39	3	0	1	112.885	7	3	1	0
		64.149	39	2	1	8	113.393	7	2	2	0
		64.400	6	3	0	2	113.911	3	4	1	7
		64.926	5	1	0	1	113.911	3	2	0	0
		65.175	86	1	1	14	113.911	3	2	0	0
		65.679	124	2	0	13	114.801	1	1	0	0
		65.922	62	3	0	4	115.148	7	3	2	11
		66.303	19	2	1	9	115.779	10	4	1	8
		67.050	1	3	0	5	116.568	1	4	0	15
		68.418	176	3	0	6	117.359	1	3	1	0
		68.699	88	2	1	10	118.106	3	4	1	9
		69.045	25	2	0	14	118.106	3	3	2	12
		69.045	25	1	0	0	119.840	1	2	1	0
		69.545	4	0	0	0	120.245	2	2	0	0
		70.016	1	3	0	7	120.476	3	4	1	10
		71.241	31	2	1	11	120.476	3	4	0	0
		71.844	17	3	0	8	121.419	6	3	2	13
		72.580	12	2	0	15	121.728	16	3	0	0
		72.580	12	1	1	1	122.245	10	3	0	0
		73.306	1	1	0	0	122.245	10	3	1	1
		74.013	9	2	1	12	122.949	3	1	1	0
		75.316	158	2	2	0	123.342	16	4	1	11
		75.791	1	2	2	2	123.342	16	2	2	0
		76.153	4	3	0	0	123.866	8	5	0	0
		76.280	5	2	0	10	123.866	8	5	0	1
		76.984	17	2	1	13	124.283	1	5	0	2
		77.211	9	2	2	4	125.136	11	3	2	14
		77.703	3	1	0	0	125.136	11	4	0	0
		78.845	7	3	0	11	125.970	1	5	0	4
		78.845	7	0	0	0	126.290	2	2	1	12
		79.973	3	3	1	0	126.550	2	4	1	0
		79.980	3	3	1	1	127.308	2	5	0	5
		79.980	3	2	2	8	127.308	2	2	0	0
		80.154	31	2	1	14	127.723	10	3	1	0
		80.154	31	2	0	0	127.723	10	3	0	0
		80.628	14	1	1	0	128.493	5	5	0	6
		80.842	7	3	1	4	128.987	2	5	0	15
		81.316	3	3	0	12	129.326	2	3	2	0
		81.800	1	3	1	5	129.518	3	1	0	0
		82.280	12	1	0	0					
		82.820	8	2	2	8					
		83.186	8	3	1	8					
		83.525	5	2	1	15					
		84.224	18	3	0	13					
		84.224	18	2	0	0					
		84.670	62	3	1	7					
		86.401	4	3	1	8					
		86.998	17	2	2	10					
		86.998	17	1	0	0					
		87.330	40	3	0	14					
		88.359	7	3	1	9					
		88.359	7	0	0	0					
		88.490	8	2	0	0					
		89.412	37	1	1	0					
		89.733	25	4	0	0					
		89.849	22	4	0	1					
		90.194	11	4	0	2					
		90.544	1	3	1	10					
<b>Radiation</b> : CuKα1		<b>Filter</b> : Not specified									
<b>Lambda</b> : 1.54060		<b>d-sp</b> : Calculated spacings									
<b>SS/FOM</b> : F30=1000(0.0000,30)											

Figure 2 : Fiche JCPDS de Sm<sub>2</sub>Co<sub>7</sub>

Pattern : 25-484		Radiation = 1.540598		Quality : Indexed		
Co <sub>17</sub> Sm <sub>2</sub>		<b>2<math>\theta</math></b>	<b>i</b>	<b>h</b>	<b>k</b>	<b>l</b>
Cobalt Samarium		21.136	2	1	0	0
		21.765	1	0	0	1
		30.495	30	1	0	1
		36.994	30	1	1	0
		42.973	45	2	0	0
		43.319	100	1	1	1
		44.347	30	0	0	2
		48.679	20	2	0	1
		49.613	3	1	0	2
		57.955	1	2	1	0
		59.096	8	1	1	2
		62.681	12	2	1	1
		63.493	20	2	0	2
		66.709	8	3	0	0
<b>Lattice</b> : Hexagonal		<b>Mol. weight</b> = 1302.66				
<b>S.G.</b> : P6/mmm (191)		<b>Volume [CD]</b> = 83.35				
<b>a</b> = 4.85620		<b>Dx</b> = 8.486				
<b>c</b> = 4.06130						
<b>Sample preparation</b> : High temperature phase heated 2 hours at 320 C, liquid N <sub>2</sub> quenched. <b>Data collection flag</b> : Ambient.						
Khan., Acta Crystallogr., Sec. B, volume 29, page 2502 (1973).						
<b>Radiation</b> : CoK $\alpha$ 1		<b>Filter</b> : Not specified				
<b>Lambda</b> : 1.78897		<b>d-sp</b> : Guinier				
<b>SS/FOM</b> : F14= 68(0.0147,14)		<b>Internal standard</b> : Si				

Figure 3 : fiche JCPDS de Sm<sub>2</sub>Co<sub>17</sub>

Pattern : 00-005-0727		Radiation = 1.540600		Quality : Not indexed		
Co		2 $\theta$	<i>l</i>	<i>h</i>	<i>k</i>	<i>l</i>
		41.685	20	1	0	0
		44.763	60	0	0	2
		47.569	100	1	0	1
Cobalt		62.728	1	1	0	2
		75.941	80	1	1	0
		84.197	80	1	0	3
		90.622	20	2	0	0
		92.540	80	1	1	2
		94.736	60	2	0	1
		98.737	20	0	0	4
<b>Lattice :</b> Hexagonal <b>S.G. :</b> P63/mmc (194)		<b>Mol. weight =</b> 58.93 <b>Volume [CD] =</b> 22.03				
<b>a =</b> 2.50310  <b>c =</b> 4.06050		<b>Dx =</b> 8.883  <b>Z =</b> 2				
<p><b>Structure:</b> Cobalt has a face-centered cubic (Cu type) structure (<math>\beta</math> form) above 450 C and a closed-packed hexagonal structure (<math>\alpha</math> form) stable at room temperature.</p> <p><b>General comments:</b> Mixtures normally coexist and pure cubic specimens can be retained at room temperature. The transition is martensitic with <math>M_s=388</math> C Troiano, Tokich, Trans. AIME, 176 728 (1948).</p> <p><b>Unit cell:</b> Reference reports: a=2.507, c=4.07.</p> <p><b>Data collection flag:</b> Ambient.</p>						
<p>Hofer, Peebles., J. Am. Chem. Soc., volume 69, page 897 (1947)</p> <p>CAS Number: 7440-48-4</p>						
<b>Radiation :</b> FeK $\alpha$ <b>Lambda :</b> 1.93730 <b>SS/FOM :</b> F10= 10(0.1020,10)		<b>Filter :</b> Beta <b>d-sp :</b> Debye-Scherrer				

Figure 4 : fiche JCPDS de Co

<p>Pattern : 43-1719</p>		<p>Radiation = 1.540600</p>		<p>Quality : High</p>																																									
<p>CoO</p>																																													
<p>Cobalt Oxide</p>																																													
<p>Lattice : Face-centered cubic</p>																																													
<p>S.G. : Fm-3m (225)</p>																																													
<p>a = 4.26120</p>																																													
<p>Mol. weight = 74.93</p>																																													
<p>Volume [CD] = 77.37</p>																																													
<p>Dx = 6.433</p>																																													
<p>Z = 4</p>																																													
<p>Color: Black</p>																																													
<p>Sample preparation: Co O was obtained by thermal decomposition of Co ( C2 O2 ).</p>																																													
<p>Additional pattern: See also calculated pattern 43-1004.</p>																																													
<p>Additional pattern: To replace 2-1201 and 9-402.</p>																																													
<p>Data collection Day: Ambient.</p>																																													
<p>Kirk S, Yakimov I, Blochin A, Soloyov L, Inst. of Chemistry, Academy of Sciences, Krasnoyarsk, Russia, ICDD Grant-In-Aid (1997), CAS Number: 1307-96-6</p>																																													
<p>Radiation : CuKα1</p>																																													
<p>Lambda : 1.54056</p>																																													
<p>SS/FOM : F8=329(0.0030.8)</p>																																													
<p>Filter : Monochromator crystal</p>																																													
<p>d-sp : Diffractometer</p>																																													
<p>External standard : Si</p>																																													
		<table border="1"> <thead> <tr> <th>2θ</th> <th>I</th> <th>h</th> <th>k</th> <th>l</th> </tr> </thead> <tbody> <tr> <td>35.403</td> <td>85</td> <td>1</td> <td>0</td> <td>0</td> </tr> <tr> <td>47.398</td> <td>100</td> <td>0</td> <td>0</td> <td>1</td> </tr> <tr> <td>61.480</td> <td>54</td> <td>2</td> <td>0</td> <td>0</td> </tr> <tr> <td>74.675</td> <td>20</td> <td>0</td> <td>1</td> <td>0</td> </tr> <tr> <td>87.815</td> <td>18</td> <td>0</td> <td>0</td> <td>2</td> </tr> <tr> <td>103.980</td> <td>7</td> <td>0</td> <td>2</td> <td>0</td> </tr> <tr> <td>107.875</td> <td>15</td> <td>0</td> <td>1</td> <td>1</td> </tr> </tbody> </table>		2θ	I	h	k	l	35.403	85	1	0	0	47.398	100	0	0	1	61.480	54	2	0	0	74.675	20	0	1	0	87.815	18	0	0	2	103.980	7	0	2	0	107.875	15	0	1	1		
2θ	I	h	k	l																																									
35.403	85	1	0	0																																									
47.398	100	0	0	1																																									
61.480	54	2	0	0																																									
74.675	20	0	1	0																																									
87.815	18	0	0	2																																									
103.980	7	0	2	0																																									
107.875	15	0	1	1																																									

Figure 5 : Fiche JCPDS de CoO

<b>Pattern : 42-1467</b> <b>Radiation = 1.540600</b> <b>Quality : High</b>						
<b>Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub></b> Cobalt Oxide	<table border="1"> <tr> <td> <b>2θ</b>            19.001            31.272            36.853            38.542            42.810            45.985            50.985            55.738            59.630            74.119            77.341            85.405            85.782            90.877            94.100            99.334            107.908            112.540            116.923         </td> <td> <b>I</b>            19            34            100            18            24            26            34            37            27            7            4            1            1            3            9            3            2            2            2         </td> <td> <b>h</b>            1            2            3            4            4            4            5            5            5            6            6            7            6            7            8            8            9            8            8         </td> <td> <b>k</b>            1            2            3            0            0            1            4            3            3            3            3            4            1            4            3            3            0            0            0            0         </td> <td> <b>l</b>            1            0            1            2            0            0            1            0            1            0            3            2            1            2            1            0            0            0            0            0         </td> </tr> </table>	<b>2θ</b> 19.001 31.272 36.853 38.542 42.810 45.985 50.985 55.738 59.630 74.119 77.341 85.405 85.782 90.877 94.100 99.334 107.908 112.540 116.923	<b>I</b> 19 34 100 18 24 26 34 37 27 7 4 1 1 3 9 3 2 2 2	<b>h</b> 1 2 3 4 4 4 5 5 5 6 6 7 6 7 8 8 9 8 8	<b>k</b> 1 2 3 0 0 1 4 3 3 3 3 4 1 4 3 3 0 0 0 0	<b>l</b> 1 0 1 2 0 0 1 0 1 0 3 2 1 2 1 0 0 0 0 0
<b>2θ</b> 19.001 31.272 36.853 38.542 42.810 45.985 50.985 55.738 59.630 74.119 77.341 85.405 85.782 90.877 94.100 99.334 107.908 112.540 116.923	<b>I</b> 19 34 100 18 24 26 34 37 27 7 4 1 1 3 9 3 2 2 2	<b>h</b> 1 2 3 4 4 4 5 5 5 6 6 7 6 7 8 8 9 8 8	<b>k</b> 1 2 3 0 0 1 4 3 3 3 3 4 1 4 3 3 0 0 0 0	<b>l</b> 1 0 1 2 0 0 1 0 1 0 3 2 1 2 1 0 0 0 0 0		
<b>Lattice : Face-centered cubic</b> <b>S.G. : Fm3m (227)</b> <b># = 8.08370</b>	<b>Mod. weight = 240.80</b> <b>Volume [CD] = 528.24</b> <b>Dx = 6.056</b> <b>Z = 8</b> <b>Mcor = 3.10</b>					
<b>Color: Black</b> <b>Sample source or locality:</b> Sample obtained from Fischer Scientific. <b>General comments:</b> Average relative standard deviation in intensity of the ten strongest reflections for three specimen mounts=4.0%. <b>General comments:</b> Validated by calculated pattern. <b>Additional pattern:</b> To replace 9-418. <b>Data collection flag:</b> Ambient.						
<b>Martin, K., McCarthy, G., North Dakota State University, Fargo, North Dakota, USA., ICDD Grant-In-Aid (1980).</b>						
<b>Radiation : CuKα1</b> <b>Lambda : 1.54060</b> <b>SS/FOM : F21=285(0.0028,25)</b>	<b>Filter : Monochromator crystal</b> <b>d-sp : Diffractometer</b> <b>Internal standard : Si</b>					

Figure 6 : fiche JCPDS de Co<sub>3</sub>O<sub>4</sub>

Pattern : 6-696		Radiation = 1.540598		Quality : High		
Fe		<b>2th</b>	<b>i</b>	<b>h</b>	<b>k</b>	<b>l</b>
Iron		44.674	100	1	1	0
Iron, syn		65.023	20	2	0	0
<b>Also called:</b> ferrite		82.335	30	2	1	1
		98.948	10	2	2	0
		116.390	12	3	1	0
		137.143	6	2	2	2
<b>Lattice :</b> Body-centered cubic		<b>Mol. weight =</b> 55.85				
<b>S.G. :</b> Im-3m (229)		<b>Volume [CD] =</b> 23.55				
<b>a =</b> 2.86640		<b>Dx =</b> 7.875				
<b>Z =</b> 2						
<p><b>Color:</b> Gray, light gray metallic  <b>General comments:</b> Total impurities of sample &lt;0.0013% each metals and non-metals.  <b>Temperature of data collection:</b> Pattern taken at 25 C.  <b>Sample preparation:</b> The iron used was an exceptionally pure rolled sheet prepared at the NBS, Gaithersburg, Maryland, USA., [Moore, G., <i>J. Met.</i>, <b>5</b> 1443 (1953)]. It was annealed in an H2 atmosphere for 3 days at 1100 C and slowly cooled in a He atmosphere.  <b>General comments:</b> <math>\gamma</math>-Fe (fcc)=(1390 C) <math>\delta</math>-Fe (bcc).  <b>General comments:</b> Opaque mineral optical data on specimen from Meteorite: <math>RR_2R_4=57.7</math>, <math>Disp.=16</math>, <math>VHN=158</math> (mean at 100, 200, 300), Color values= 311, 316, 57.9, Ref.: IMA Commission on Ore Microscopy QDF.  <b>Additional pattern:</b> See ICSD 64795 (PDF 85-1410).  <b>Data collection flag:</b> Ambient.</p>						
Swanson et al., Natl. Bur. Stand. (U.S.), Circ. 539, volume IV, page 3 (1965). CAS Number: 7439-89-6						
<b>Radiation :</b> CuK $\alpha$ 1		<b>Filter :</b> Beta				
<b>Lambda :</b> 1.54060		<b>d-sp :</b> Not given				
<b>SS/FOM :</b> F6=225(0.0044,6)						

Figure 7 : fiche JCPDS de Fe

<p>Pattern : 42-1120</p>		<p>Radiation = 1.540600</p>		<p>Quality : High</p>																																									
<p>Mo</p>																																													
<p>Molybdenum</p>																																													
<p>Lattice : Body-centered cubic S.G. : Im3m (229) a = 3.14720</p>		<p>Mol. weight = 95.94 Volume [CC] = 31.17 Dx = 10.221</p>																																											
<p>Z = 2</p>		<p>Wcor = 7.38</p>																																											
<p>Sample source or locality: Sample from Johnson Matthey, AESAR 10030, Lot G11A06. Color: Black Additional pattern: To replace 4-809. Data collection flag: Ambient</p>																																													
<p>Schreiner, W., Intelligent Controls Inc., Amawalk, NY, USA., ICDD Grant-in-Aid (1991).</p>																																													
<p>Radiation : CuKα1 Lambda : 1.54060 SS/POM : F7=80(0.0125,7)</p>		<p>Filter : Monochromator crystal d-sp : Diffractometer Internal standard : Al2O3</p>																																											
		<table border="1"> <thead> <tr> <th>2θh</th> <th>I</th> <th>h</th> <th>k</th> <th>l</th> </tr> </thead> <tbody> <tr><td>40.516</td><td>100</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>58.870</td><td>16</td><td>0</td><td>0</td><td>1</td></tr> <tr><td>67.826</td><td>3</td><td>0</td><td>1</td><td>0</td></tr> <tr><td>81.428</td><td>1</td><td>0</td><td>1</td><td>1</td></tr> <tr><td>101.413</td><td>14</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>115.969</td><td>3</td><td>1</td><td>0</td><td>1</td></tr> <tr><td>132.647</td><td>24</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td></tr> </tbody> </table>		2θh	I	h	k	l	40.516	100	1	0	0	58.870	16	0	0	1	67.826	3	0	1	0	81.428	1	0	1	1	101.413	14	1	0	0	115.969	3	1	0	1	132.647	24	1	1	0		
2θh	I	h	k	l																																									
40.516	100	1	0	0																																									
58.870	16	0	0	1																																									
67.826	3	0	1	0																																									
81.428	1	0	1	1																																									
101.413	14	1	0	0																																									
115.969	3	1	0	1																																									
132.647	24	1	1	0																																									

Figure 8 : fiche JCPDS de Mo





Pattern : 48-1751		Radiation = 1.540598					Quality : High				
Fe <sub>17</sub> Nd <sub>2</sub>		<b>2<math>\theta</math></b>	<b>i</b>	<b>h</b>	<b>k</b>	<b>l</b>	<b>2<math>\theta</math></b>	<b>i</b>	<b>h</b>	<b>k</b>	<b>l</b>
Iron Neodymium		20.685	2	1	1	0	*95.750	7	4	4	3
		21.361	2	0	0	3	97.224	1	2	6	-1
		24.982	6	0	2	1	98.552	1	2	6	2
		27.931	4	0	2	-2	98.942	1	1	5	8
		29.910	35	1	1	3	99.920	2	2	3	-10
		31.095	10	0	1	-4	100.127	3	0	7	-4
		32.645	7	1	2	-1	101.507	9	3	3	9
		35.021	5	1	2	2	101.787	2	1	3	-11
		36.244	45	0	3	0	103.028	2	1	7	0
		37.643	26	0	2	4	103.898	6	2	6	-4
		38.059	1	0	1	5	104.142	2	3	5	-5
		42.092	63	2	2	0	106.546	2	3	4	8
		42.457	100	0	3	-3	107.109	15	0	3	-12
		43.336	17	1	2	-4	107.388	2	1	6	7
		43.531	27	0	0	6	107.889	14	4	4	6
		43.692	11	0	2	-5	107.983	5	2	6	5
		44.566	1	1	3	1	108.235	1	0	1	-13
		47.679	26	2	2	3					
		48.663	4	1	1	6					
		48.805	5	1	2	5					
		49.579	2	0	4	-1					
		51.279	2	0	4	2					
		52.826	3	0	1	-7					
		53.247	3	1	3	4					
		54.279	3	2	3	-1					
		55.887	5	2	3	2					
		56.743	4	1	4	0					
		57.336	3	0	2	7					
		57.737	1	0	4	-4					
		57.892	6	0	3	-6					
		61.330	20	1	4	-3					
		61.640	12	1	2	-7					
		62.014	15	2	3	-4					
		62.165	20	2	2	6					
		62.306	1	0	4	5					
		62.943	2	0	5	1					
		64.402	1	0	5	-2					
		64.862	1	0	2	-8					
		65.192	4	3	3	0					
		66.387	4	2	3	5					
		67.028	1	2	4	1					
		67.601	1	0	0	9					
		68.427	1	2	4	-2					
		68.888	1	1	2	8					
		69.475	15	3	3	3					
		69.770	2	1	3	7					
		70.117	3	0	5	4					
		70.981	3	1	5	-1					
		71.551	7	1	1	9					
		72.370	2	1	5	2					
		73.626	1	0	4	-7					
		73.996	7	2	4	4					
		74.245	2	0	5	-5					
		76.955	28	0	6	0					
		77.470	11	2	3	-7					
		77.801	6	1	5	-4					
		78.073	3	2	4	-5					
		79.191	16	0	3	-9					
		80.003	1	3	4	2					
		80.376	2	0	4	8					
		80.699	1	2	5	0					
		80.931	1	0	6	3					
		81.371	2	0	2	10					
		81.697	1	3	3	6					
		81.827	3	1	5	5					
		82.936	1	2	2	9					
		84.125	1	2	3	8					
		84.682	8	2	5	-3					
		85.121	1	1	2	-10					
		86.923	1	0	1	11					
		88.653	2	2	4	7					
		90.593	1	0	2	-11					
		91.536	1	0	5	-8					
		91.850	18	4	4	0					
		92.345	7	1	5	-7					
		92.827	12	0	6	-6					
		93.525	2	0	7	-1					
		94.040	12	1	4	-9					
		94.326	1	1	2	11					
		94.846	3	0	7	2					
		95.750	7	0	0	12					
<b>Lattice</b> : Rhombohedral		<b>Mol. weight</b> = 1237.88									
<b>S.G.</b> : R-3m (166)		<b>Volume [CD]</b> = 794.23									
<b>a</b> = 8.57850		<b>Dx</b> = 7.764									
<b>c</b> = 12.46220		<b>Z</b> = 3									
<p><b>Sample preparation:</b> Prepared by arc melting constituents under argon, annealing at 1070 K for 280 hours in a quartz tube and quenching into cold water.</p> <p><b>Temperature of data collection:</b> Pattern taken at 295 K.</p> <p><b>Color:</b> Metallic</p> <p><b>Additional pattern:</b> See also calculated pattern 40-875.</p> <p><b>Data collection flag:</b> Ambient.</p>											
<p>Pecharsky, V., Akselrud, L., Davydov, V., L'viv Inst. of Theoretical Material Research, Ukraine., ICDD Grant-in-Aid (1996).</p>											
<b>Radiation</b> : CuK $\alpha$ 1		<b>Filter</b> : Beta									
<b>Lambda</b> : 1.54060		<b>d-sp</b> : Diffractometer									
<b>SS/FOM</b> : F30=105(0.0087,33)											

Figure 10: fiche JCPDS de Nd<sub>2</sub>Fe<sub>17</sub>

Pattern : 41-1089		Radiation = 1.540600		Quality : High																																																																																																																							
Nd <sub>2</sub> O <sub>3</sub>																																																																																																																											
Neodymium Oxide																																																																																																																											
Lattice : Hexagonal S.G. : P-3m1 (164) a = 3.82970 c = 5.99870 Z = 1		Mol. weight = 336.48 Volume [CD] = 76.19 Dx = 7.333 I/cor = 5.80																																																																																																																									
<p>Color: Light blue</p> <p>Sample preparation: Sample annealed at 1100 C for 72 hours.</p> <p>General comments: Average relative standard deviation in intensity of the ten strongest reflections for three specimen mounts = 5%.</p> <p>Additional pattern: To replace 6-408.</p> <p>Additional pattern: Validated by a calculated pattern 43-1023.</p> <p>Additional pattern: See ICSD 100206, 100207, (PDF 83-1346, 83-1347).</p> <p>Data collection flag: Ambient.</p>																																																																																																																											
Welton-Holzer, J., McCarthy, G., North Dakota State University, Fargo, North Dakota, USA, ICDD Grant-In-Aid (1989).																																																																																																																											
Radiation : CuKα1 Lambda : 1.54056 SS/FOM : F26= 72(0.0103,35)		Filter : Monochromator crystal d-sp : Diffractometer Internal standard : Si																																																																																																																									
<table border="1"> <thead> <tr> <th>2θ</th> <th>I</th> <th>h</th> <th>k</th> <th>l</th> </tr> </thead> <tbody> <tr><td>26.895</td><td>26</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>28.767</td><td>37</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>30.775</td><td>100</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>40.510</td><td>56</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>47.437</td><td>24</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>53.850</td><td>23</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>54.948</td><td>19</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>57.006</td><td>13</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>57.602</td><td>3</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>61.759</td><td>4</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>64.129</td><td>6</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>74.214</td><td>6</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>75.813</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>77.750</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>81.447</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>83.510</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>87.961</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>88.330</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>89.004</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>89.894</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>100.876</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>106.415</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> <tr><td>107.122</td><td>1</td><td>1</td><td>0</td><td>0</td></tr> </tbody> </table>		2θ	I	h	k	l	26.895	26	1	0	0	28.767	37	1	0	0	30.775	100	1	0	0	40.510	56	1	0	0	47.437	24	1	0	0	53.850	23	1	0	0	54.948	19	1	0	0	57.006	13	1	0	0	57.602	3	1	0	0	61.759	4	1	0	0	64.129	6	1	0	0	74.214	6	1	0	0	75.813	1	1	0	0	77.750	1	1	0	0	81.447	1	1	0	0	83.510	1	1	0	0	87.961	1	1	0	0	88.330	1	1	0	0	89.004	1	1	0	0	89.894	1	1	0	0	100.876	1	1	0	0	106.415	1	1	0	0	107.122	1	1	0	0		
2θ	I	h	k	l																																																																																																																							
26.895	26	1	0	0																																																																																																																							
28.767	37	1	0	0																																																																																																																							
30.775	100	1	0	0																																																																																																																							
40.510	56	1	0	0																																																																																																																							
47.437	24	1	0	0																																																																																																																							
53.850	23	1	0	0																																																																																																																							
54.948	19	1	0	0																																																																																																																							
57.006	13	1	0	0																																																																																																																							
57.602	3	1	0	0																																																																																																																							
61.759	4	1	0	0																																																																																																																							
64.129	6	1	0	0																																																																																																																							
74.214	6	1	0	0																																																																																																																							
75.813	1	1	0	0																																																																																																																							
77.750	1	1	0	0																																																																																																																							
81.447	1	1	0	0																																																																																																																							
83.510	1	1	0	0																																																																																																																							
87.961	1	1	0	0																																																																																																																							
88.330	1	1	0	0																																																																																																																							
89.004	1	1	0	0																																																																																																																							
89.894	1	1	0	0																																																																																																																							
100.876	1	1	0	0																																																																																																																							
106.415	1	1	0	0																																																																																																																							
107.122	1	1	0	0																																																																																																																							

Figure 11 : fiche JCPDS de Nd<sub>2</sub>O<sub>3</sub>