

Caractérisation des propriétés élastiques du PZT déposé en couches minces par acoustique picoseconde

F. Casset^a, A. Devos^b, A. Le Louarn^c, P. Emery^c, G. Le Rhun^a, S. Fanget^a et E. Defay^a

^aCEA, LETI, MINATEC Campus, 17 rue des Martyrs, 38054 Grenoble, France

^bIEMN/ISEN-CNRS, 41, Bd Vauban, 59000 Lille, France

^cMENAPIC, 41, Bd Vauban, 59000 Lille, France

fabrice.casset@st.com

Le PZT déposé en couches minces est un matériau piézoélectrique particulièrement bien adapté pour servir d'actionneur dans de nombreuses applications MEMS. La connaissance de ses propriétés mécaniques, le module d'Young et le coefficient de Poisson, est indispensable pour dimensionner au mieux nos MEMS piézoélectriques. Nous avons choisi d'utiliser l'acoustique picoseconde, afin de caractériser les couches minces de PZT. Cette technique permet de transposer à l'échelle nanométrique le principe du sonar. Dans un milieu élastique, la propagation des ondes acoustiques dépend des constantes d'élasticité du matériau. Il est ainsi possible d'accéder aux modules d'élasticité, dont le module d'Young, à partir de la mesure de la vitesse du son dans le matériau, notamment les vitesses longitudinale et transverse. Nous avons étudiés de nombreux échantillons de PZT polycristallins orientés (100). A partir des mesures d'acoustiques picoseconde, nous avons extrait $E = 82$ GPa et $\nu = 0.4$. Ces données d'entrée peuvent désormais être utilisées pour dimensionner nos MEMS.

1 Introduction

Les MEMS intéressent les industriels depuis de nombreuses années et pour de nombreuses applications. En parallèle de l'essor des MEMS, de nouveaux matériaux ont fait leur apparition, tels que les matériaux piézoélectriques. Entre autre, le $\text{Pb}(\text{Zr}_x, \text{Ti}_{1-x})\text{O}_3$ (PZT) déposé en couches minces est un matériau piézoélectrique particulièrement bien adapté pour servir d'actionneur dans de nombreuses applications MEMS du fait de son fort coefficient piézoélectrique [1, 2]. Néanmoins, le PZT est un matériau complexe. En particulier, son module d'Young et son coefficient de Poisson sont fortement dépendants du procédé de mise en œuvre. Il en résulte que leur caractérisation est indispensable afin de préciser ce matériau pour, au final, dimensionner au mieux les MEMS à base de PZT. Nous avons choisi d'utiliser l'acoustique picoseconde, afin de mesurer le module d'Young (E) et le coefficient de Poisson (ν) des couches minces de PZT, au sein de leur empilement technologique, de manière non destructive et sans contact. Cette technique permet de transposer à l'échelle nanométrique le principe du sonar. Dans un milieu élastique, la propagation des ondes acoustiques dépend des constantes d'élasticité du matériau. Il est ainsi possible d'accéder aux modules d'élasticité, dont le module d'Young, à partir de la mesure de la vitesse du son dans le matériau. Nous allons commencer par présenter le principe de l'acoustique picoseconde. Puis nous présenterons les résultats de mesures sur du PZT polycristallin majoritairement orienté (100). La moyenne des vitesses acoustiques longitudinales mesurées sur ces échantillons est $c_{L(100)} = 4.7 \pm 0.1$ nm/ps. La vitesse transverse est quant à elle $c_{T(100)} = 1.9 \pm 0.1$ nm/ps. A partir de ces vitesses et de la théorie de l'élasticité, nous pouvons calculer $E = 82$ GPa et $\nu = 0.4$. Ces données d'entrée peuvent désormais être utilisées pour dimensionner nos MEMS piézoélectriques.

2 L'acoustique picoseconde

Le principe de l'acoustique picoseconde est basé sur la génération d'ondes acoustiques dans la matière à partir d'impulsions lumineuses ultra-courtes (de l'ordre de la centaine de femtoseconde avec un taux de répétition de 80 MHz), issues d'un laser impulsif. Nous allons voir qu'il est possible de générer et de mesurer la vitesse d'une onde acoustique longitudinale ou transverse. Le croisement des deux mesures va nous permettre de calculer E et ν sans faire d'hypothèse sur l'un ou l'autre.

2.1 Ondes acoustiques longitudinales

Lorsque le laser est pointé sur le matériau à étudier, il va générer des ondes acoustiques longitudinales qui vont se propager dans la matière, orthogonalement au plan du substrat, et vont connaître de multiples réflexions sur les interfaces qu'elles vont rencontrer (Figure 1-a). Il s'agit ensuite de détecter et d'analyser les ondes acoustiques réfléchies, de retour à la surface de l'échantillon. Leur signature sera caractéristique du matériau sondé. La plupart du temps, il s'agira de mesurer le temps de vol de l'onde acoustique dans le matériau. L'acquisition de ce temps nous permettra de définir avec une grande précision l'épaisseur de la couche, sa vitesse acoustique, sa densité ou encore ses propriétés mécaniques, selon les données d'entrée dont nous disposerons. Pour détecter ces ondes réfléchies, nous ne pouvons pas suivre temporellement les ondes acoustiques du fait de leur rapidité. Nous utilisons alors une détection stroboscopique par le biais d'un montage dit « pompe – sonde » (Figure 1). Pour cela, nous séparons le faisceau laser en un faisceau de pompe générant l'onde acoustique et un faisceau de sonde, retardé temporellement par une ligne à retard, détectant le retour de certaines impulsions acoustiques à la surface de l'échantillon.

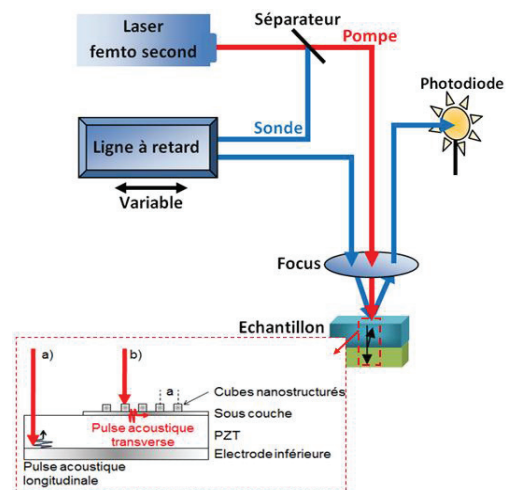


Figure 1: Présentation schématique de la technique d'acoustique picoseconde pour la mesure a) d'ondes longitudinales et b) d'ondes transverses.

Dans les milieux transparents tel que le PZT, l'absorption sera très faible et le faisceau de pompe pénétrera profondément dans la couche et pourra même la traverser entièrement. La génération thermoélastique de l'onde acoustique aura lieu à l'interface inférieure de la

couche transparente, typiquement à l'interface PZT/Pt, comme le schématise la Figure 2. Cette impulsion acoustique se propagera dans le PZT en direction de la surface de l'échantillon. En arrivant à la surface, elle va se réfléchir et changer le signe de son déplacement en provoquant un changement d'épaisseur global de la couche. Si l'impulsion est en compression, elle sera responsable localement d'une faible baisse de l'épaisseur de la couche. Si par contre elle est en tension, il en résultera une faible augmentation d'épaisseur [3]. Ce changement d'épaisseur sera détecté par la sonde en provoquant un saut de réflectivité. Néanmoins il est important dans ce cas de connaître parfaitement l'épaisseur de la couche étudiée afin de ne pas introduire d'incertitude dans la vitesse acoustique calculée.

Le faisceau de sonde peut également pénétrer profondément dans la matière. Il pourra être réfléchi par l'impulsion acoustique elle-même, qui peut ainsi être suivie dans toute l'épaisseur de la couche étudiée. En effet, comme le schématise la Figure 2-b, cette impulsion acoustique peut être considérée comme une fine couche de matériau se déplaçant dans la matière et présentant un indice différent de celui du milieu [4]. Cette réflexion va interférer avec la réflexion partielle de la sonde à la surface de l'échantillon. La différence de phase entre ces faisceaux dépend de la distance entre l'impulsion et la surface de l'échantillon. Ainsi ce phénomène se caractérise par une sinusoïde appelée oscillation Brillouin, de période T , fonction des propriétés du matériau et de la vitesse longitudinale, comme le montre l'Eq. (1) [5]. Nous privilégierons l'étude de l'oscillation Brillouin pour extraire la vitesse acoustique longitudinale du PZT, c_L , indépendamment de l'épaisseur de la couche.

$$T = \frac{\lambda}{2nc_L \cos \theta} \quad (1)$$

Avec λ étant la longueur d'onde du laser, n l'indice optique de la couche étudiée et θ l'angle d'incidence du laser dans l'échantillon d'indice n (avec $n \cdot \sin \theta = n_i \cdot \sin \theta_i$, $\theta_i = 5^\circ$ classiquement, étant l'angle d'incidence en surface d'échantillon).

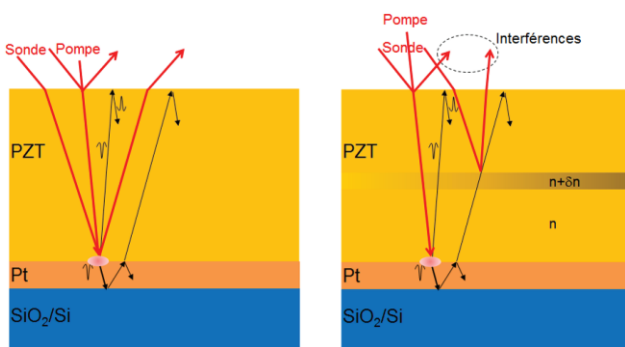


Figure 2: Schématisation du trajet de l'impulsion acoustique dans une couche transparente telle que le PZT – Mise en évidence du saut de réflectivité (a) et des oscillations Brillouin (b).

2.2 Ondes acoustiques transverses

Une des limites de l'acoustique picoseconde réside dans le fait que l'on ne peut générer classiquement que des ondes acoustiques longitudinales. Or notre objectif est de mesurer le module d'Young et le coefficient de Poisson des films minces. Pour cela, il est nécessaire d'avoir accès également à la vitesse acoustique transverse. Pour ce faire, comme le montre la Figure 3, nous utiliserons un réseau carré, périodique de plots métalliques nanostructurés à la surface de l'échantillon [4, 5, 6, 7]. Cette astuce nous permet de nous affranchir de la limitation de l'acoustique picoseconde. En effet, lorsque le laser est pointé sur ces plots, il provoque une élévation de la température qui induit une contrainte thermique présentant la même périodicité que le réseau illuminé. Nous générons ainsi deux types de modes de vibration schématisés sur la Figure 3: des modes individuels (modes propres de vibration du cube) et des modes collectifs issus des ondes de surface générées par la périodicité des contraintes thermiques, fonction du pas du réseau de plots.

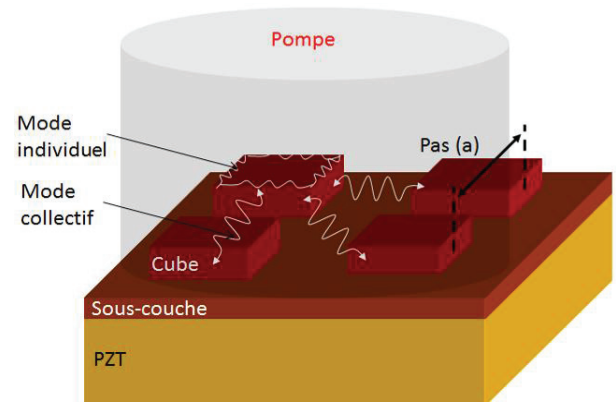


Figure 1: Schéma illustrant la génération des modes individuels et collectif du fait de l'illumination du réseau de plots nanostructure par le faisceau de pompe.

Les fréquences des différents vecteurs d'onde du mode collectif excité par un réseau périodique carré de plots métalliques s'expriment en fonction notamment du pas (a) du réseau :

$$f_{i,j}(a) = c_0 \sqrt{\frac{a^2 h}{a^2 h + d^2 h_c}} \frac{\sqrt{i^2 + j^2}}{a} \quad (2)$$

Avec h_c étant l'épaisseur du plot et h l'épaisseur de sous-couche. (i, j) nous permet de préciser la direction de propagation de l'onde, i étant le nombre de plots selon l'axe horizontal et j le nombre de plot selon l'axe vertical, dans un repère où l'origine est un des plots illuminés. Cette équation nous permet de modéliser les différentes branches correspondantes aux fréquences des différents vecteurs d'onde du mode considéré. Il est important de noter, à la vue de l'équation précédente, que les fréquences des différents vecteurs d'onde vont présenter des rapports remarquables entre elles $\sqrt{i^2 + j^2}$, valant $1, \sqrt{2}, 2, \sqrt{5} \dots$. Si nous traçons le graphe $f_{i,j} = f(1/a)$, nous pouvons extraire c_0 , qui est la vitesse d'une onde de surface se propageant entre les plots infiniment espacés. L'évolution de cette

vitesse en fonction de h peut être modélisée par l'Eq. (3), qui nous permet d'extraire la vitesse de Rayleigh de la couche étudiée telle que le PZT.

$$c(h) = \left(c_R^{\text{couche étudiée}} - c_R^{\text{souscouche}} \right) e^{-\frac{h}{\delta}} + c_R^{\text{souscouche}} \quad (3)$$

δ est un facteur correctif qui rend compte de la pénétration et de la décroissance de l'onde de surface sur une profondeur δ dans les couches considérées [5].

A partir de c_R , nous pouvons extraire la vitesse acoustique de l'onde transverse (c_t) en utilisant l'approximation de Viktorov, reportée à l'Eq. (4), qui nous fournit une approximation du rapport c_R/c_t dans le cas des matériaux isotropes [8].

$$\frac{c_R}{c_t} = \frac{0.718 - \frac{c_t^2}{c_L^2}}{0.75 - \frac{c_t^2}{c_L^2}} \quad (4)$$

Comme décrit dans [9], à partir de l'équation de mouvement dans un milieu élastique isotrope, nous pouvons extraire c_L et c_t en fonction des propriétés mécaniques du milieu : le module d'Young (E), le coefficient de Poisson (ν) et la densité (ρ).

$$c_L = \sqrt{\frac{E(1-\nu)}{\rho(1+\nu)(1-2\nu)}} \quad (5)$$

$$c_t = \sqrt{\frac{E}{2\rho(1+\nu)}} \quad (6)$$

A partir des deux équations précédentes, nous pouvons accéder au système d'Eq. (7), à l'aide duquel on pourra calculer E et ν , sans avoir à faire l'hypothèse de l'un ou l'autre.

$$\begin{cases} \nu = \frac{c_L^2 - 2c_t^2}{2(c_L^2 - c_t^2)} \\ E = 2c_t^2 \rho \left(1 + \frac{c_L^2 - 2c_t^2}{2(c_L^2 - c_t^2)} \right) \end{cases} \quad (7)$$

3 Caractérisation du PZT par acoustique picoseconde

3.1 Mesure de la vitesse acoustique longitudinale

La figure suivante donne une coupe MEB du PZT majoritairement orienté (100) que nous étudions. Ce PZT a été déposé par la méthode sol-gel dans son empilement classique d'actionneur, à savoir au-dessus de son électrode inférieure de platine. Nous estimons l'épaisseur du PZT à 506 nm.

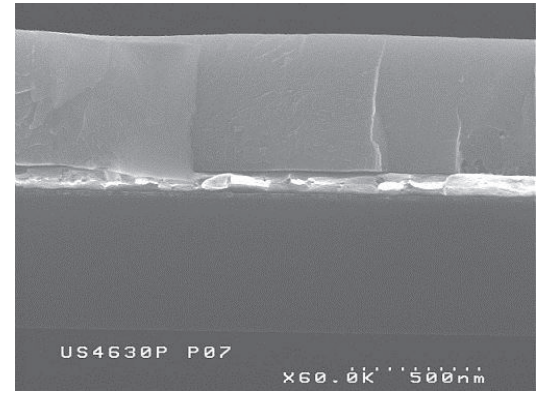


Figure 4: Coupe MEB du PZT étudié.

Nous effectuons une mesure d'acoustique picoseconde en pointant le laser sur le PZT. Nous sommes en milieu transparent et nous générons une impulsion acoustique à l'interface PZT/Pt. La Figure 5 donne la variation relative de réflectivité ($\Delta R/R$) en fonction du temps, pour une longueur d'onde $\lambda = 425$ nm pour laquelle nous connaissons l'indice optique ($n \approx 2.71$). Comme expliqué précédemment, dans cette configuration, nous pouvons observer une oscillation Brillouin que nous mettons en évidence sur la Figure 5. La mesure de la période de cette oscillation et l'Eq. (1) nous permettent de calculer la vitesse acoustique longitudinale du PZT comme étant $c_L = 4.73 \pm 0.07$ nm/ps. Notons que de nombreuses mesures ont été réalisées sur différentes épaisseurs de PZT (100) [10]. Cette valeur est en bonne adéquation avec les autres résultats obtenus sur ce matériau.

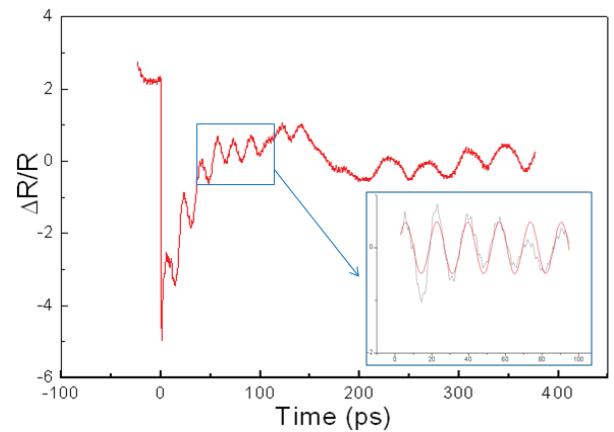


Figure 5: Mesure d'acoustique picoseconde à $\lambda = 425$ nm sur l'échantillon de PZT et zoom sur l'oscillation Brillouin.

3.2 Mesure de la vitesse acoustique transverse

Nous commençons par considérer un système Pt/PZT. Dans ce cas, la sous-couche et les plots seront en Platine. Nous étudions deux échantillons possédant des plots de Pt de 100 nm d'épaisseur sur une sous-couche de Pt, soit de 15 nm soit de 100 nm d'épaisseur, sur le PZT de la Figure 4. Nous dirigeons la pompe sur le réseau de plots. Dans ce cas, le laser excite des modes de vibration individuels, fonction de la taille et de la nature du plot et des modes

collectifs, fonction du réseau considéré et en particulier du pas (a) entre les plots. Nous faisons les transformées de Fourier des signaux expérimentaux afin de mettre en évidence les fréquences des différents modes excités. Les fréquences successives des modes collectifs, $f_{i,j}(a)$ s'expriment par l'Eq. (2). Ils peuvent être repérés par le fait qu'ils présentent les facteurs remarquables évoqués précédemment. Les modes individuels ont été simulés par un logiciel de simulation par éléments finis (*CoventorWare*®). La recherche des fréquences des modes collectifs et des modes individuels a été réalisée sur les réseaux de plots présentant des pas allant de $a = 400$ à 800 nm. La Figure 6 donne un exemple de transformée de Fourier réalisée sur le signal mesuré sur un réseau de plot de pas $a = 500$ nm (épaisseur de sous-couche 50 nm). Nous identifions les fréquences des modes collectifs respectivement à 3.33 , 4.7 et 6.67 GHz. Ces fréquences présentent des rapports remarquables entre elles de respectivement 1.41 et 2 . Elles sont donc en parfait accord avec la théorie. Nous identifions également les modes individuels, respectivement à 7.45 (simulé à 7.75), 10.91 (simulé à 10.53) et 11.67 GHz (simulé à 11.48 GHz). Les écarts, inférieurs à 4% entre la mesure et la simulation sont tout à fait satisfaisants.

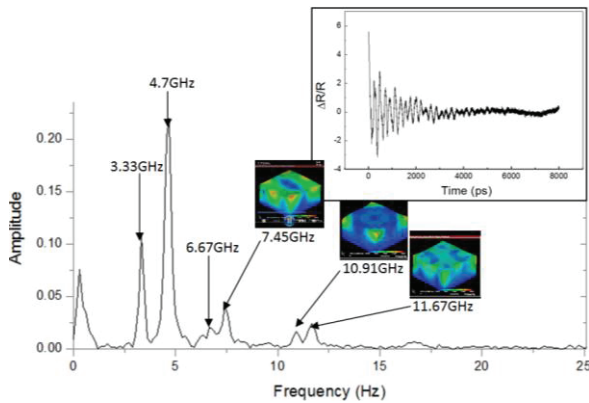


Figure 6: Transformée de Fourier et signal d'acoustique picoseconde en RB à $\lambda = 800$ nm mesuré sur un échantillon avec un réseau de plots de Pt de pas $a = 500$ nm sur sous-couche Pt 50 nm d'épaisseur sur PZT (100).

L'analyse des transformées de Fourier des signaux mesurés sur les différents réseaux de plots nous permet de tracer l'évolution des fréquences des modes collectifs en fonction de l'inverse du pas des réseaux. Nous reportons en Figure 7 les mesures relatives à la sous-couche de platine de 50 nm d'épaisseur et en Figure 8 celles relatives à la sous-couche de platine de 15 nm d'épaisseur. Nous reportons sur ces graphes les fréquences mesurées ainsi que les fréquences modélisées par l'Eq. (2). Pour faire coïncider le modèle et les mesures, le seul paramètre d'ajustement est c_0 introduit précédemment. Le bon accord entre les mesures et toutes les branches de fréquences modélisées sur les Figures 7 et 8 nous permet d'extraire $c_{0, 50\text{nm}} = 1.36$ nm/ps et $c_{0, 15\text{nm}} = 1.55$ nm/ps.

La vitesse acoustique c_0 , d'un système tel que le système Pt/PZT, en fonction de l'épaisseur de platine, s'exprime par l'Eq. (3). Nous savons que $c_R^{Pt} = 1.31$ nm/ps car ce matériau a été étudié par ailleurs à l'IEMN/ISEN (mesures d'une couche de platine sur Pyrex).

Nous ajustons δ et c_R^{PZT} afin de faire correspondre le modèle aux points expérimentaux comme le montre la Figure 9. Nous extrayons ainsi $c_R^{PZT} = 1.84$ nm/ps (avec $\delta = 55$).

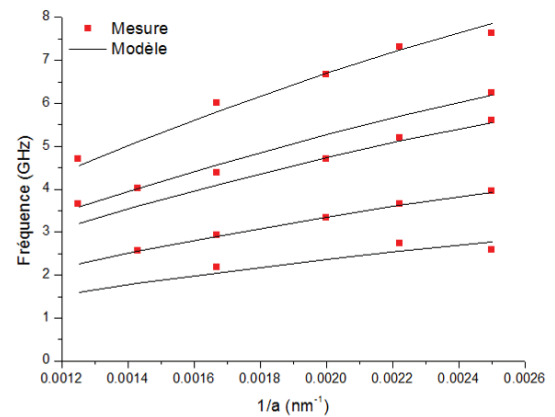


Figure 7: Fréquence des modes collectifs en fonction de l'inverse du pas du réseau de plots – Echantillon avec sous-couche de platine de 50 nm sur PZT (100).

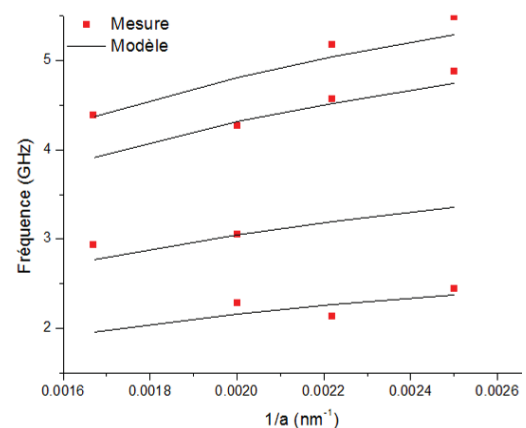


Figure 8 : Fréquence des modes collectifs en fonction de l'inverse du pas du réseau de plots – Echantillon avec sous-couche de platine de 15 nm sur PZT (100).

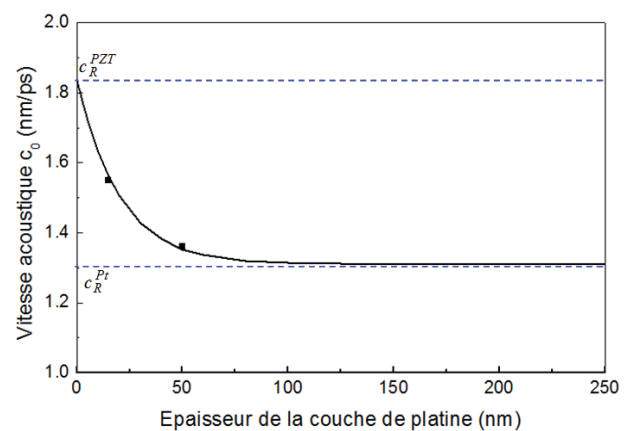


Figure 9 : Evolution de la vitesse acoustique c_0 du système Pt/PZT en fonction de l'épaisseur de platine.

3.3 Calcul du module d'Young et du coefficient de Poisson du PZT

A partir de l'Equation 4, nous calculons $c_t = 1.95$ nm/ps. Le système d'Eq. (7) nous permet d'extraire $E = 82$ GPa et $\nu = 0.39$, sans faire l'approximation de l'un ou de l'autre. On peut ainsi voir tout l'intérêt de l'acoustique picoseconde pour la caractérisation des couches minces.

4 Conclusion

Nous avons présenté l'acoustique picoseconde. Cette technique permet de transposer le principe du sonar à l'échelle nanométrique. Elle nous a permis de mesurer la vitesse acoustique longitudinale du PZT et également d'extraire la vitesse acoustique transverse, en intégrant des plots nanostructurés à la surface de notre échantillon. Pour la première fois, le PZT déposé en couches-minces a été entièrement caractérisé en utilisant des mesures longitudinales et transverses par acoustique picoseconde. Nous avons pu extraire $E = 82$ GPa et $\nu = 0.39$, sans faire l'approximation de l'une ou de l'autre de ces valeurs. Désormais, ces données peuvent être utilisées pour le dimensionnement prédictif de MEMS piézoélectriques.

Références

- [1] R. Dejaeger, F. Casset, B. Desloges, G. Le Rhun, P. Robert, S. Fanget, Q. Leclere, K. Ege, JL. Guyader, Development and characterization of a piezoelectrically actuated MEMS digital loudspeaker, *European Conference on Solid-State Transducers (Euroensors)*, (2012).
- [2] F. Casset, JS. Danel, C. Chappaz, Y. Civet, M. Amberg, M. Gorisse, C. Dieppedale, G. Le Rhun, S. Basrour, P. Renaux, E. Defay, A. Devos, B. Semail, P. Ancey, S. Fanget, Low voltage actuated plate for haptic applications with PZT thin-film, *The 17th International Conference on Solid-State Sensors, Actuators and Microsystems (Transducers)*, (2013).
- [3] A. Devos, JF. Robillard, R. Côte, P. Emery, High-laser-wavelength sensitivity of the picosecond ultrasonic response in transparent thin films, *Physical Review B* 74, 064114, (2006).
- [4] PA. Mante, Génération par impulsions laser ultracourtes d'ondes acoustiques hautes fréquences par des nanostructures, *Thèse de l'université de Lille 1*, (2010).
- [5] JF. Robillard, Etude par acoustique picoseconde des vibrations individuelles et collectives de nanostructures organisées, *Thèse de l'Université de Lille 1*, (2008).
- [6] PA. Mante, JF. Robillard, A. Devos, Complete thin film mechanical characterization using picosecond ultrasonics and nanostructured transducers: experimental demonstration on SiO₂, *Applied Physics Letters* 93, 071909, (2008).
- [7] PA. Mante, A.Devos, JF. Robillard, Towards thin film complete characterization using picosecond ultrasonics, *IEEE Int. Ultrasonics Symposium*, pp. 1203-1206, (2008).

- [8] E. Dieulesaint et D. Royer, *Ondes élastiques dans les solides – Application au traitement du signal*, Masson and Cie, (1974).
- [9] LD. Landau and EM. Lifshitz, *Theory of elasticity – Course of theoretical Physics, Volume 7*, Pergamon press, Second revised and enlarged edition, (1970).
- [10] F. Casset, A. Devos, S. Yin, B. Vilquin, G. Saint-Girons, J. Abergel, G. Le Rhun, P. Emery, P. Ancey, S. Fanget and E. Defay, Single crystal and polycrystalline thin-film PZT complete elastic characterization using Picosecond Ultrasonics, *3rd International Symposium on Laser Ultrasonics and Advanced Sensing*, (2013).