

# Conception d'un cristal phononique bidimensionnel pour les ondes de surface

Différentes méthodes de simulation de la propagation des ondes élastiques dans des cristaux phononiques ont été développées au sein du département de Physique et Métrologie des Oscillateurs du laboratoire FEMTO-ST, préliminairement à ces travaux de thèse. En plus des méthodes de différences finies mentionnées au chapitre 2, d'autres outils théoriques ont été mis en place dans le but de calculer les relations de dispersion des modes susceptibles de se propager dans la structure considérée. En particulier, un modèle de développement en ondes planes (ou PWE), ainsi qu'un modèle de type éléments finis, permettent d'obtenir les diagrammes de bandes de structures composites anisotropes quelconques. Ils offrent ainsi la possibilité de déterminer, le cas échéant, la position et la largeur des bandes interdites du cristal phononique. Nous ne revenons dans cette section que très succinctement sur les principes fondamentaux sous-jacents à ces modèles théoriques. Nous nous attachons en fait surtout à une étude synthétique de certains paramètres géométriques clef, avant de nous attarder plus longuement sur la géométrie finalement retenue dans le cadre de notre étude expérimentale.

## 3.1 Méthode de décomposition en ondes planes

Nous avons mentionné dans le chapitre précédent que la méthode des différences finies avait été introduite à la fois pour pallier les limitations liées à la méthode de décomposition en ondes planes, sur lesquelles nous reviendrons par la suite, mais également pour obtenir des informations supplémentaires, en termes de spectre de transmission notamment, sur la propagation d'ondes dans les cristaux phononiques. Elle n'introduit en revanche guère d'amélioration au niveau de la précision de calcul, la discrétisation du pas introduisant un nouveau facteur limitant. Par ailleurs, la formulation même du modèle rend difficile toute application de conditions aux limites à la surface, indispensables ici. Nous sommes ainsi revenus sur la méthode PWE qui, par sa

formulation plus versatile, permet l'intégration de nouvelles conditions relatives à la propagation comme au substrat. Une méthode de décomposition en ondes planes étendue a ainsi été développée, permettant la modélisation de cristaux phononiques pour les ondes de surface dans un matériau piézoélectrique.

### 3.1.1 Principes fondamentaux

La méthode PWE s'est imposée comme l'un des outils de modélisation privilégié des cristaux photoniques [8] et figure par ailleurs parmi les premiers formalismes à avoir été employés afin de mettre théoriquement en évidence l'existence de bandes interdites pour les ondes élastiques [104, 35]. Elle permet de représenter de façon assez directe, du point de vue du formalisme mathématique comme de la mise en œuvre numérique, la propagation de champs (électromagnétiques ou de déplacement, en l'occurrence) dans un milieu périodique. Elle est d'ailleurs bien connue en acoustique où elle est employée pour simuler des structures périodiques de type transducteurs composites qui trouvent leurs applications dans le domaine de l'imagerie médicale par exemple [105, 106].

Le principe de base de la méthode de décomposition en ondes planes consiste à décomposer en séries de Fourier les champs propagatifs dans le domaine fréquentiel, c'est-à-dire dans le référentiel défini par le réseau réciproque du cristal (voir annexe A). Kushwaha *et al.* [35] ont en particulier appliqué cette méthode au cas d'un réseau bidimensionnel, en limitant toutefois dans un premier temps leur analyse à des milieux isotropes et à des champs de déplacement purement transverses. Dans cette configuration, les polarisations dans le plan et hors plan du champ de déplacement peuvent être découplées. L'équation caractéristique du milieu, exprimée en fonction du champ de déplacement  $\mathbf{u}$ , n'est alors autre que l'équation du mouvement d'une particule de densité  $\rho$ , elle-même fonction du milieu et donc périodique :

$$\rho(\mathbf{r}) \frac{\partial^2 \mathbf{u}}{\partial t^2} = \nabla_t \cdot (\rho c_t^2(\mathbf{r}) \cdot \nabla_t \mathbf{u}) \quad (3.1)$$

où  $\nabla_t$  désigne l'opérateur gradient transverse,  $c_t$  est la vitesse transverse de l'onde acoustique dans le milieu qui adopte ici également la forme d'une fonction périodique. Les fonctions  $\rho(\mathbf{r})$  et  $\rho c_t^2(\mathbf{r})$  peuvent alors être décomposées sur la base des vecteurs d'onde du réseau réciproque de la maille considérée :

$$\begin{aligned} \rho(\mathbf{r}) &= \sum_G \rho(\mathbf{G}) e^{j\mathbf{G}\mathbf{r}} \\ \rho c_t^2(\mathbf{r}) &= \sum_G \rho c_t^2(\mathbf{G}) e^{j\mathbf{G}\mathbf{r}} \end{aligned} \quad (3.2)$$

où les coefficients de Fourier  $\rho(\mathbf{G})$  et  $\rho c_t^2(\mathbf{G})$  du développement précédent sont de la forme :

$$C(\mathbf{G}) = \frac{1}{A} \int_s C(\mathbf{r}) e^{-j\mathbf{G}\mathbf{r}} d^2\mathbf{r} \quad (3.3)$$

### 3.1 Méthode de décomposition en ondes planes

---

$A$  désigne ici la surface de la cellule élémentaire du système. Il est ainsi possible d'exprimer la densité du milieu périodique en fonction d'une part d'une densité moyenne  $\bar{\rho}$  et d'autre part d'un terme prenant en compte le contraste  $\Delta\rho$  des densités de la matrice  $\rho_a$  et des inclusions  $\rho_b$  tels que :

$$\begin{aligned}\bar{\rho} &= \rho_a F + \rho_b (1 - F) \\ \Delta\rho &= (\rho_a - \rho_b)\end{aligned}\tag{3.4}$$

Ici,  $F$  est le facteur de remplissage de la structure, qui se définit comme le rapport des surfaces d'une inclusion et d'une cellule élémentaire du réseau périodique :

$$F = \frac{A_b}{A_a}$$

où  $A_a$  et  $A_b$  représentent respectivement les surfaces de la cellule élémentaire et de l'inclusion. Il est donc directement lié au rapport diamètre  $d$  sur période  $a$  de la structure, comme défini en annexe A.

$B(\mathbf{G})$  est par ailleurs un coefficient dépendant de la géométrie de la maille :

$$B(\mathbf{G}) = \frac{1}{A} \int_s e^{-j\mathbf{G}\mathbf{r}} d^2\mathbf{r}\tag{3.5}$$

Enfin, le théorème de Bloch-Floquet permet d'écrire le champ de déplacement sous la forme :

$$\mathbf{u}(\mathbf{r}, t) = e^{i(\mathbf{k}\cdot\mathbf{r} - \omega t)} \sum_{\mathbf{G}} u_{\mathbf{k}}(\mathbf{G}) e^{i\mathbf{G}\cdot\mathbf{r}}\tag{3.6}$$

En substituant ces dernières expressions dans l'équation du mouvement (3.1), on obtient un système d'équations linéaires admettant pour inconnues les coefficients de Fourier du champ de déplacement  $u_{\mathbf{k}}(\mathbf{G})$  et les fréquences propres  $\omega$ . Le diagramme de bandes s'obtient alors en faisant varier le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  afin de couvrir la première zone de Brillouin irréductible telle que définie en annexe A. Sigalas et Economou [104] ont généralisé le calcul aux milieux anisotropes, démontrant ainsi la possibilité d'ouvrir des bandes interdites pour les ondes élastiques dans des systèmes tridimensionnels. Tanaka et Tamura [57, 58] ont par la suite introduit la possibilité de simuler des structures cette fois-ci semi-infinies, mais à l'image de leurs prédécesseurs, leurs travaux sont initialement restés limités à des fluides ou à des solides purement élastiques.

La prise en compte de la piézoélectricité est finalement apparue sous l'impulsion de travaux menés dans le domaine de l'imagerie médicale, en particulier autour des transducteurs composites piézoélectriques. Ces piézocomposites consistent en un arrangement ordonné de cylindres de céramique piézoélectrique, généralement du titano-zirconiate de plomb ( $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$  ou PZT), entourés d'une matrice en polymère. Cette configuration périodique a naturellement poussé à user de la méthode de décomposition en ondes planes pour procéder à l'étude de la propagation d'ondes dans de telles structures [106]. Néanmoins, la prise en compte de la nature piézoélectrique

de ces composants n'a été rendue possible que plus tard, par l'intégration de la formulation de Fahmy-Adler aux équations de base du modèle PWE.

### 3.1.2 Prise en compte de la piézoélectricité : formulation de Fahmy-Adler

La formulation de Fahmy-Adler introduite au chapitre 1 nous a permis d'écrire l'équation de propagation des ondes planes dans un solide piézoélectrique en exprimant les tenseurs de contraintes et de déplacement généralisés en fonction des composantes des tenseurs élastiques, piézoélectriques et diélectriques du matériau. Cette section revient très brièvement sur les concepts de base de cette formulation avant de donner quelques pistes quant à son application au développement en ondes planes. Cette extension de la méthode PWE est issue des travaux de thèse de Mikaël Wilm [107] et a fait l'objet de diverses publications [108, 109, 110, 63].

On cherche dans ce cadre à résoudre le problème de propagation des ondes élastiques en considérant comme inconnues les composantes normales des champs électro-acoustiques. On introduit donc pour cela le vecteur d'état  $\mathbf{h} = (\mathbf{u} \ \tau_2)^T$  où  $\mathbf{u}$  et  $\tau_2$  ont été définis à la section 1.3.1 comme étant respectivement le champ de déplacement généralisé et le tenseur de contraintes généralisé à un coefficient  $j\omega$  près. Les composantes normales des champs étant continues au passage d'une interface, ce vecteur d'état est solution du problème aux valeurs propres suivant :

$$s_2 \mathbf{h} = \mathbf{M} \mathbf{h}$$

où  $s_2$  est la composante normale de la lenteur  $s$ . La matrice  $\mathbf{M}$  est une matrice de dimension 8, composée de quatre sous-matrices de rang 4 :

$$\mathbf{M} = \begin{bmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{bmatrix}$$

avec :

$$\begin{aligned} \mathbf{M}_{11} &= -\mathbf{A}_{22}^{-1} (s_1 \mathbf{A}_{21} + s_3 \mathbf{A}_{23}) \\ \mathbf{M}_{12} &= \mathbf{A}_{22}^{-1} \\ \mathbf{M}_{21} &= \tilde{\rho} + s_1^2 (\mathbf{A}_{12} \mathbf{A}_{22}^{-1} \mathbf{A}_{21} - \mathbf{A}_{11}) + s_3^2 (\mathbf{A}_{32} \mathbf{A}_{22}^{-1} \mathbf{A}_{23} - \mathbf{A}_{33}) \\ &\quad + s_1 s_3 (\mathbf{A}_{12} \mathbf{A}_{22}^{-1} \mathbf{A}_{23} + \mathbf{A}_{32} \mathbf{A}_{22}^{-1} \mathbf{A}_{21} - \mathbf{A}_{13} - \mathbf{A}_{31}) \\ \mathbf{M}_{22} &= -(s_1 \mathbf{A}_{12} + s_3 \mathbf{A}_{32}) \mathbf{A}_{22}^{-1} \end{aligned} \tag{3.7}$$

$\tilde{\rho}$  désigne la densité et les matrices  $\mathbf{A}_{ij}$  sont uniquement fonction des constantes du matériau considéré comme introduit au chapitre 1. La matrice  $\mathbf{M}$  ne dépend finalement que des lenteurs transverses  $s_1$  et  $s_3$  et des propriétés des matériaux.

Dans le cas précis d'une application de cette formulation de Fahmy-Adler à un réseau périodique de type cristal phononique, on procède au préalable à un développement en séries de Bloch-Floquet ou de Fourier des grandeurs physiques du problème : contraintes et déplacements

généralisés ainsi que constantes matériaux, à l'image de ce qui a été présenté en section 3.1.1. Par combinaison dans l'équation définissant le vecteur d'état  $\mathbf{h}$ , on obtient alors un système d'équations qui reste valable quels que soient la dimension de la périodicité, la forme de l'inclusion et de la cellule élémentaire et le vecteur d'onde  $\mathbf{k}$ . Ce dernier point est capital, puisqu'il permet de prendre en compte la propagation d'une onde avec une incidence quelconque dans la structure. Il est alors possible de calculer les diagrammes de bandes pour les modes hors-plan dans des cristaux phononiques bidimensionnels [109]. On pourra alors parler avec une certaine rigueur de bandes interdites complètes pour les ondes de volume.

#### 3.1.3 Cas d'inclusions vides dans une matrice solide

La méthode de calcul décrite dans les paragraphes précédents n'est applicable en l'état qu'à des systèmes de type inclusions solides dans une matrice solide. La prise en compte d'inclusions "vides" nécessite une adaptation de la notion de constantes matériau. On cherche en quelque sorte à définir un solide fictif présentant une série de propriétés reproduisant les conditions de propagation d'une onde élastique dans le vide parfait [63].

Une première étape consiste à annuler les constantes piézoélectriques dans la matrice représentative des constantes matériau de l'inclusion. On impose ensuite la valeur de la permittivité électrique du vide aux composantes diagonales du tenseur des constantes diélectriques, i.e.  $\epsilon_{ii} = \epsilon_0$ . Par ailleurs, l'absence de contraintes dans le vide impose l'adoption d'un tenseur élastique fictif  $c_{ijkl}$  nul pour satisfaire à l'équation constitutive (3.1) quel que soit le champ de déplacement. De ce fait, la densité  $\rho$  du matériau doit elle-même être ramenée à zéro pour satisfaire à la relation fondamentale de la dynamique :

$$\rho \frac{\partial^2 u_j}{\partial t^2} = \frac{\partial T_{ij}}{\partial x_i}$$

Cette solution doit néanmoins rester compatible avec les conditions aux limites imposées intrinsèquement par une surface libre, conditions qui découlent elles-mêmes de la relation de continuité des composantes des champs de déplacement et des composantes transverses des contraintes. Or une condition de surface libre impose une annulation des contraintes, ce qui est compatible avec les hypothèses de tenseur élastique et de densité nuls précédemment introduites.

#### 3.1.4 Prise en compte des conditions de surface

La dernière étape de l'adaptation de cette méthode de décomposition en ondes planes à la simulation des cristaux phononiques étudiés a été de prendre en compte les conditions aux limites à la surface du substrat supportant la propagation.

Les modèles précédemment présentés considèrent pour la plupart un réseau phononique infini, ne rendant ainsi nullement compte des conditions aux limites observées à la surface d'une structure réelle. La propagation d'ondes à la surface d'une structure bidimensionnelle semi-infinie a en revanche été théoriquement étudiée puis observée par Torres *et al.* [67] lors d'une expérience mettant en jeu des inclusions cylindriques de mercure de dimension millimétrique dans une matrice

d'aluminium. Toujours d'un point de vue théorique, les travaux de Tanaka et Tamura [57, 58] puis de Wu *et al.* [111] ont montré la possibilité de calculer les courbes de dispersion pour les modes de surface, aussi bien pour les modes de type Rayleigh que pour les ondes de surface à pertes (pseudo-ondes de surface, sur lesquelles nous reviendrons dans la suite de ce document), pour des systèmes élastiques anisotropes de composition solide-solide. La prise en compte simultanée des conditions de surface, de la piézoélectricité et du cas de compositions solide-vide a été assurée par Vincent Laude [63], sur la base du code de calcul développé par Mikaël Wilm. De façon très sommaire, la prise en compte des conditions de surface consiste à considérer le cristal phononique comme semi-infini et ainsi à imposer des contraintes normales à la surface  $T_2$  nulles (conditions de surface libre), soit :

$$\sum_{q=1}^N A_q (T_{2j})_q = 0, \quad (3.8)$$

où  $N$  désigne le nombre d'ondes partielles physiquement susceptibles de se propager dans le milieu semi-infini [63] et  $A_q$  l'amplitude associée à la composante  $(T_{2j})_q$ .

D'un point de vue purement électrique, les conditions de surface libre imposent la continuité de la composante normale à la surface du champ de déplacement électrique :

$$\sum_{q=1}^N A_q [D_{2q} - \epsilon_0 |\kappa_m| \phi_q] = 0, \quad (3.9)$$

où  $|\kappa_m| = \sqrt{(k_1 + G_1)^2 + (k_2 + G_2)^2}$ .

La condition de court-circuit implique une annulation du potentiel électrique à la surface et se ramène alors à :

$$\sum_{q=1}^N A_q \phi_q = 0, \quad (3.10)$$

Dans ce dernier cas, les conditions à la limite en surface doivent satisfaire aux deux équations (3.8) et (3.10), ce qui conduit à un système à  $N$  équations admettant pour déterminant :

$$\Delta_{cc} = \begin{vmatrix} (T_{2j})_q \\ \phi_q \end{vmatrix} \quad (3.11)$$

Les ondes de surface susceptibles de se propager sur une surface libre dans un milieu semi-infini sont donc celles dont le vecteur d'onde réciproque  $\mathbf{G}$  satisfait à l'équation  $\Delta_{cc} = 0$ . De manière similaire, les ondes de surface se propageant en surface libre vérifient l'équation  $\Delta_l = 0$  avec :

$$\Delta_l = \begin{vmatrix} (T_{2j})_q \\ D_{2q} - \epsilon_0 |\kappa_m| \phi_q \end{vmatrix}, \quad (3.12)$$

Le cas où les deux déterminants  $\Delta_{cc}$  et  $\Delta_l$  sont simultanément nuls se traduit par l'existence d'un mode de surface insensible aux conditions aux limites électriques et donc non piézoélectri-

quement couplé. Dans le cas où il existerait en revanche un décalage en fréquence entre les zéros respectifs des deux déterminants, il est possible d'estimer la valeur du coefficient de couplage de l'onde de surface correspondante par la formule usuellement employée, à savoir :

$$K^2 = 2(\omega_l - \omega_{cc})/(\omega_l + \omega_{cc}) \quad (3.13)$$

La résolution des systèmes d'équations (3.12) et (3.11) nous permet donc de déterminer les couples vecteurs d'ondes - fréquences des modes se propageant dans le substrat considéré, et ainsi de tracer les courbes de dispersion des modes de surface dans une structure bidimensionnelle piézoélectrique. L'un des résultats phares de cette étude théorique est la coïncidence obtenue entre position et largeur de la bande interdite pour les ondes de volume et pour les ondes de surface, au moins pour le cas d'une matrice carrée d'inclusions d'air ou de vide dans le niobate de lithium [63]. La figure 3.1 nous permet d'établir une comparaison directe entre les courbes de dispersion des deux types d'ondes dans ce cas précis pour lequel le rapport entre diamètre de l'inclusion et constante de maille est de 0,9. Ces résultats revêtent une importance certaine d'un point de vue physique comme d'un point de vue pratique. Ils montrent en effet, du moins dans le cas considéré, que l'existence de modes propagatifs de surface est conditionnée par celle de modes de volume dans la structure. Si l'on se place d'un point de vue plus pratique, le calcul numérique des diagrammes de bandes pour les ondes de surface est souvent bien plus coûteux en termes de temps de calcul que pour les ondes de volume. En limitant les simulations de structures à ondes de surface à des simulations pour les ondes de volume, on peut procéder à des dimensionnements rapides des structures phononiques.

Le modèle de décomposition en ondes planes présenté ci-dessus nous a permis d'établir les positions et largeurs des bandes interdites dans un cristal phononique pour les ondes de volume comme pour les ondes de surface et autorise la prise en compte du cas d'inclusions d'air dans une matrice solide. Cependant, la méthode PWE reste une méthode intrinsèquement approchée : les séries de Fourier formant la base de décomposition peuvent certes s'écrire formellement sous la forme d'une somme infinie de termes, mais elles doivent nécessairement être tronquées lors d'une évaluation numérique de la fonction, introduisant inévitablement des erreurs d'autant plus importantes que le nombre d'harmoniques calculés est réduit. De plus, dans le cas de conditions géométriques quelque peu extrêmes, notamment dans celui de facteurs de remplissage très élevés, les calculs de diagrammes de bandes tendent à perdre en fiabilité. Des méthodes plus rigoureuses s'imposent alors.

## 3.2 Méthode des éléments finis

Les analyses par éléments finis permettent de s'affranchir des limitations énoncés. Elles présentent de plus le considérable avantage de prendre en compte de façon très précise les abrupts contrastes des conditions de propagation intervenant dans des cristaux phononiques air/solide. Des travaux ont donc été menés au sein de l'équipe Acoustique et Microsonique, principalement

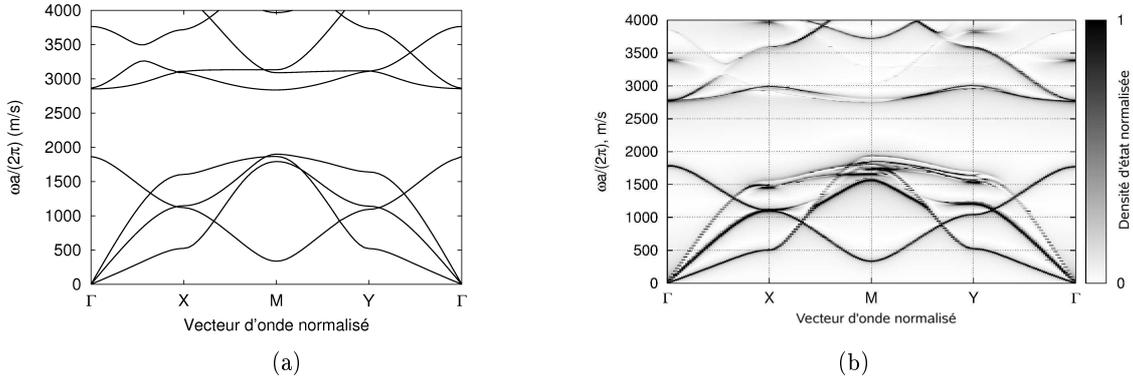


FIG. 3.1 – Diagrammes de bandes pour (a) les ondes de volume et (b) les ondes de surface se propageant suivant les directions principales  $\Gamma$ -X-M-Y- $\Gamma$  de la première zone de Brillouin d'un cristal phononique consistant en un système d'inclusions d'air dans une matrice de niobate de lithium avec un facteur de remplissage de l'ordre de 64%.

par Abdelkrim Khelif, dans le but de définir un outil adapté aux cristaux phononiques. Ils ont abouti à l'implémentation d'un code éléments finis pour les ondes de volume.

Dans le cadre de ce modèle, le cristal phononique est considéré comme un arrangement périodique infini dans les directions X et Y. Le domaine est ensuite fragmenté en cellules élémentaires indexées par la paire d'entiers  $(m, p)$ , chacune étant composée d'un trou unique entouré du matériau constitutif de la matrice. Cette cellule élémentaire est ensuite divisée en éléments connectés par des nœuds. On excite alors la structure complète par une onde plane, caractérisée par un vecteur d'onde réel  $\mathbf{k}$ . Si l'on applique maintenant les conditions de Bloch-Floquet aux frontières de chaque cellule, les champs dans la structure doivent obéir aux conditions de périodicité du réseau. Le déplacement mécanique au niveau du nœud  $i$  s'écrit alors :

$$u_i(x + ma_1, y + pa_2, z) = u_i(x, y, z) \exp[-j(k_x ma_1 + k_y pa_2)]$$

où  $k_x$  et  $k_y$  sont les composantes du vecteur d'onde de Bloch suivant les directions X et Y et  $a_1$  et  $a_2$  désignent respectivement le pas de la structure suivant ces mêmes directions.

Ces conditions de périodicité permettent ainsi de réduire l'objet du modèle à une cellule élémentaire unique qui est alors maillée en prenant comme grandeurs physiques du problème le champ de déplacement mécanique  $\mathbf{u}$  et le potentiel électrique  $\phi$ . Si l'on se restreint à une variation harmonique des champs en  $\exp(j\omega t)$ , où  $\omega$  désigne la fréquence angulaire, l'équation générale de piézoélectricité en l'absence de force extérieure s'écrit :

$$\begin{bmatrix} K_{uu} - \omega^2 M_{uu} & K_{u\phi} \\ K_{\phi u} & K_{\phi\phi} \end{bmatrix} \begin{pmatrix} \mathbf{u} \\ \phi \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.14)$$

Ici,  $K_{uu}$  et  $M_{uu}$  désignent respectivement les matrices de constantes de rigidité et de masses,  $K_{\phi u}$  et  $K_{u\phi}$  sont les matrices de couplage piézoélectrique et  $K_{\phi\phi}$  est la partie purement diélectrique du problème. La périodicité de la variation de la fréquence angulaire en fonction du vecteur d'onde

permet encore une réduction du champ de considération du problème à la zone de Brillouin irréductible. Le diagramme de bandes de la structure considérée est alors obtenu par résolution de ce problème piézoélectrique pour différentes valeurs du vecteur d'onde  $\mathbf{k}$  dans la première zone de Brillouin.

Ce modèle nous a permis de lever les difficultés liées aux structures présentant des facteurs de remplissage élevés, ainsi que les erreurs et les incertitudes qui restent fonctions du nombre de termes évalués lors du calcul numérique de la décomposition en séries de Fourier. Dans la suite de ce document, notamment pour les simulations des cristaux phononiques en niobate de lithium à maille carrée, cette méthode de simulation par éléments finis est préférentiellement employée. Cette démarche a été adoptée du fait de la correspondance des positions et largeurs de bandes interdites pour les ondes de volume et les ondes de surface, au moins dans le cas d'un réseau carré de trous dans une matrice de niobate de lithium.

## 3.3 Considérations géométriques

On cherche maintenant à définir une géométrie de maille permettant l'ouverture d'une bande interdite large dans un cristal phononique consistant en un réseau de trous percés dans un substrat massif de niobate de lithium. Dans le cadre de ces travaux de thèse, nous nous sommes essentiellement focalisés sur l'étude d'une géométrie de maille carrée. Nous fournissons néanmoins quelques résultats ayant trait à un réseau triangulaire. Nous nous sommes ensuite penchés sur l'influence du facteur de remplissage de la structure, défini comme le rapport surfacique entre l'inclusion et la matrice dans la première zone de Brillouin.

### 3.3.1 Préambule : quelques notions générales sur la propagation d'ondes dans le niobate de lithium

Le niobate de lithium est un matériau fortement anisotrope sur le plan de la propagation d'ondes élastiques, présentant de ce fait des variations de vitesses de propagation conséquentes suivant les axes considérés. Il bénéficie néanmoins des propriétés de symétrie des matériaux de la classe cristallographique trigonale  $3m$  à laquelle il appartient. Nous nous intéressons ici essentiellement à la propagation d'ondes dans un substrat de niobate de lithium en coupe Y, type de substrat qui est principalement exploité dans la suite de ce document. Dans ce cas précis, l'axe cristallographique Y du matériau est orienté normalement à la surface, qui est donc définie par le plan XZ.

Le niobate de lithium en coupe Y supporte la propagation (usuelle...) d'ondes de volume longitudinales et transverses, mais également de deux types de modes de surface, comme le montre la figure 3.2 :

- une onde de surface pure, correspondant à un mode de Rayleigh, sans perte, et dont la vitesse est inférieure à celles des modes de volume du substrat ( $3690 \text{ m.s}^{-1}$  contre  $4030 \text{ m.s}^{-1}$  en propagation suivant X,

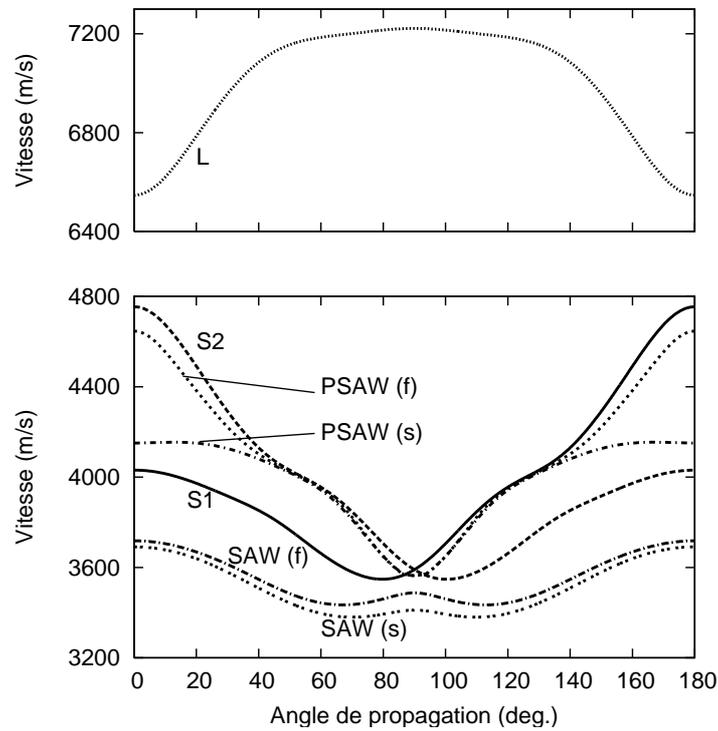


FIG. 3.2 – Vitesses des modes de volume et de surface dans le plan (XZ) pour un substrat de niobate de lithium en coupe Y. Les courbes de dispersion notées L, S<sub>1</sub> et S<sub>2</sub> correspondent aux modes de volume longitudinaux et transverses (*shear*) respectivement. Les vitesses de l'onde de Rayleigh (SAW) et de la pseudo-onde de surface (PSAW) sont également représentées pour des conditions de surface libre comme de court-circuit.

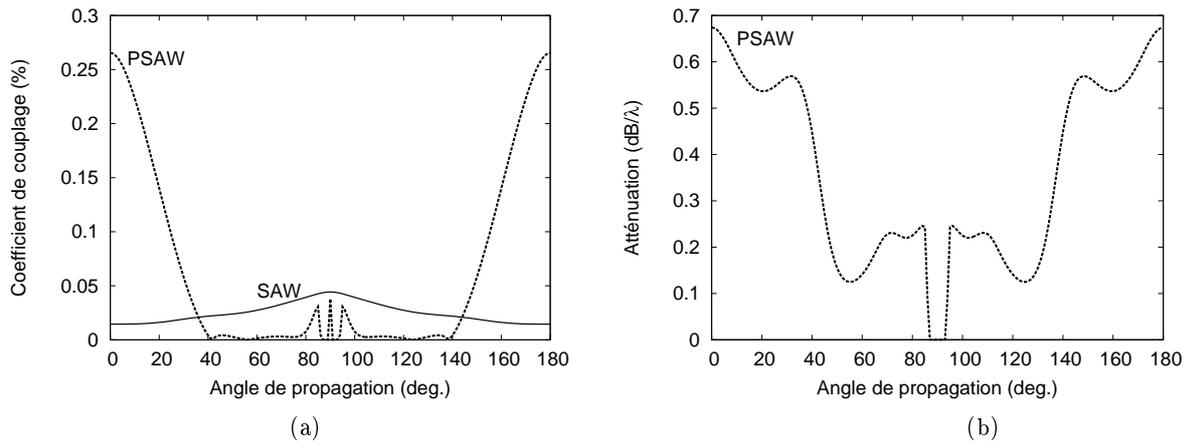


FIG. 3.3 – (a) Coefficients de couplage et (b) atténuation de l'onde de surface (SAW) et la pseudo-onde de surface (PSAW) dans le plan (XZ) pour un substrat de niobate de lithium en coupe Y. Le coefficient d'atténuation de l'onde de Rayleigh est bien évidemment nul, et ce quel que soit la direction de propagation.

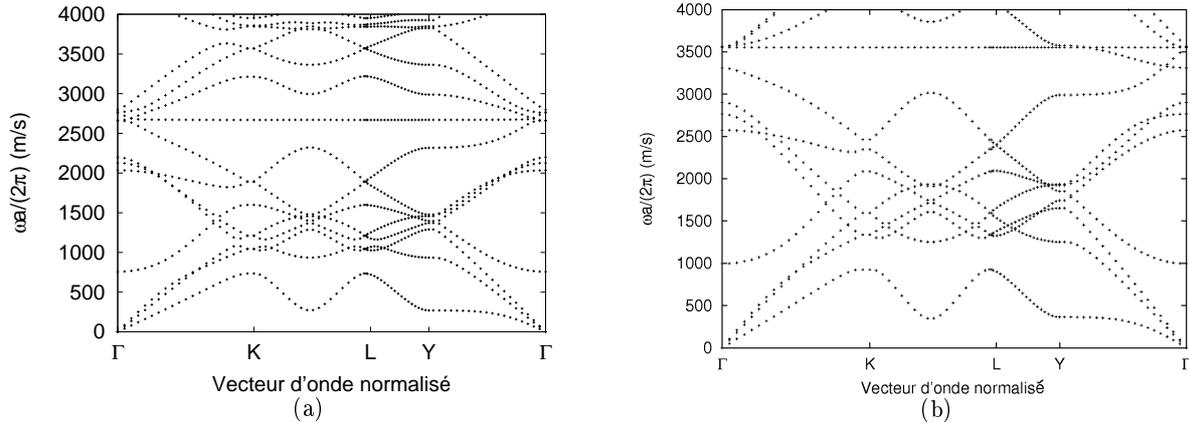


FIG. 3.4 – Diagrammes de bandes pour un cristal phononique à maille triangulaire consistant en un réseau de trous d’air dans une matrice (a) en niobate de lithium et (b) en silicium avec un rapport diamètre sur période de l’ordre de 90%.

- une onde de surface à pertes, dite pseudo-onde de surface (PSAW : *Pseudo-Surface Acoustic Wave*), plus lente que le mode longitudinal et le premier mode transverse de volume ( $v=4150 \text{ m.s}^{-1}$ ).

Cette dernière onde présente un coefficient de couplage bien plus élevé que celui de l’onde de Rayleigh, comme l’illustre la figure 3.3 mais n’existe que dans une gamme angulaire limitée autour de l’axe X. Comme nous le verrons à l’étape de caractérisation de nos cristaux phononiques, cette PSAW affecte principalement les réponses électriques des dispositifs assurant une propagation d’onde selon (YX).

### 3.3.2 Symétrie de la maille

La transposition à l’acoustique de la plupart des phénomènes optiques observés dans ces structures périodiques peut dans un premier temps pousser à l’emploi de la géométrie de réseau la plus populaire en optique, le réseau triangulaire. En effet, cette symétrie permet l’obtention de larges bandes interdites photoniques pour les deux polarisations possibles des ondes optiques (TE – Transverse Electric ou TM – Transverse Magnetic) dans les structures 2D [8].

Nous avons ainsi en premier lieu étudié le cas d’un cristal phononique consistant en une maille triangulaire vide/niobate de lithium. Nous avons maintenu un facteur de remplissage de la structure identique à celui du réseau carré mentionné précédemment, c’est-à-dire égal à 64% environ. Le rapport diamètre sur longueur caractéristique est alors de  $d/a = 0,84$ . Le diagramme de bandes correspondant et obtenu par développement en ondes planes est représenté sur la figure 3.4a. Les courbes de dispersion sont tracées suivant les directions principales de la zone irréductible de Brillouin pour un réseau anisotrope A, c’est-à-dire suivant  $\Gamma$ -K-L-Y- $\Gamma$ .

Il est intéressant de constater que ce réseau ne satisfait pas aux conditions nécessaires à l’ouverture d’une bande interdite complète. Si l’on pourrait au prime abord incriminer l’anisotropie du niobate de lithium, les résultats de simulation présentés sur la figure 3.4b montrent qu’il en est

en fait de même pour un matériau cubique comme le silicium.

Cette impossibilité d'ouvrir des bandes interdites phononiques complètes dans des structures triangulaires solide/vide témoigne des limites de l'analogie habituellement faite entre cristaux phononiques et cristaux photoniques. Plusieurs différences, de caractère fondamental, intrinsèques à la nature même de la propagation de ces deux types d'ondes, méritent ici d'être soulignées. Des interfaces de type diélectrique/vide en optique n'induisent en effet qu'une perturbation des conditions de propagation de l'onde, via le changement d'indice entre matrice et inclusions. En revanche, on observe une réflexion totale de l'onde acoustique à une telle interface. Par ailleurs, s'il est commun en optique de ne considérer qu'une polarisation de l'onde lumineuse (soit TE soit TM) lors de la conception et de la caractérisation d'un cristal photonique, le fort couplage des modes élastiques transverses et longitudinaux se propageant dans la structure rend cette simplification non applicable dans la plupart des cas. Enfin, le seul contraste de constantes élastiques entre matrice et inclusions ne suffit pas à rendre compte des phénomènes de bandes interdites phononiques : la vitesse de propagation des ondes dans les deux matériaux ainsi que leur densité entrent également en ligne de compte, là où l'onde optique n'est finalement sensible qu'au contraste de propriétés diélectriques.

La géométrie de maille carrée a par contre fait l'objet d'un nombre considérable de travaux et s'est révélée une base solide de travail pour l'obtention de bandes interdites complètes pour les ondes élastiques, comme nous avons eu l'occasion de le constater au chapitre 1. Les travaux menés au sein de l'équipe et présentés précédemment ont montré la possibilité d'obtenir une bande interdite de largeur relative de l'ordre de 30% dans un réseau carré niobate de lithium/vide présentant un rapport  $d/a$  de l'ordre de 0,9 (soit  $F = 64\%$ ). C'est donc à partir de cette symétrie de maille que nous allons concevoir notre cristal phononique. Il convient maintenant d'évaluer l'influence du facteur de remplissage sur les propriétés de la bande interdite.

### 3.3.3 Facteur de remplissage

Nous nous attachons ici au cas d'inclusions cylindriques dans un réseau carré pour lequel le facteur de remplissage  $F$  est tel que :

$$F = \frac{\pi d^2}{4a^2}$$

La figure 3.5 illustre l'évolution de la largeur (ainsi que de la position) de la bande interdite théoriquement prévue dans un cristal phononique consistant en un réseau carré de trous cylindriques dans du niobate de lithium. La largeur de bande décroît rapidement avec le facteur de remplissage, et s'annule finalement pour des valeurs de  $F$  en deçà de 50%, ce qui correspond à un rapport diamètre sur période d'environ 0,8. Si la forte anisotropie du niobate de lithium peut paraître comme un facteur défavorable à l'ouverture de bandes interdites, elle ne semble pas être l'unique cause de la faible marge de manœuvre induite par cette condition sur le facteur de remplissage. En effet, des résultats similaires ont également pu être observés en simulant les structures de bandes de cristaux phononiques air/silicium. A la lumière de ces résultats théoriques, nous avons jeté notre dévolu sur des réseaux de rapport  $d/a$  une fois encore de l'ordre de

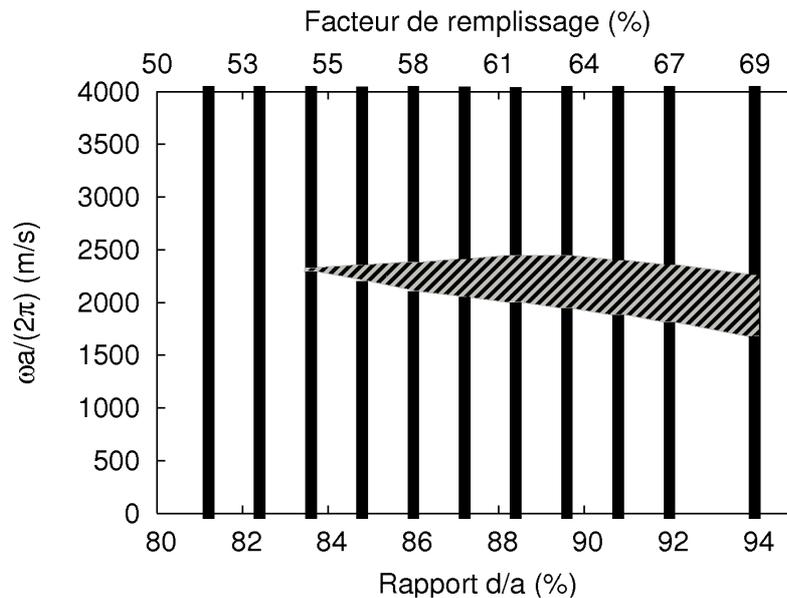


FIG. 3.5 – Position et largeur de la bande interdite en fonction du rapport diamètre sur période pour un cristal phononique en niobate de lithium à maille carrée.

0,9 pour mener la partie expérimentale de ces travaux. Nous verrons que d'autres dispositifs avec des facteurs de remplissage plus faibles ont toutefois été fabriqués dans un but de confrontation des résultats.

D'un point de vue relevant purement de la fabrication, ce comportement de la variation de la largeur relative de la bande interdite va imposer des conditions très spécifiques en termes de contrôle des dimensions du réseau, la résolution d'un système de lithographie optique rendant très difficile la réalisation de réseaux phononiques de période inférieure à  $6 \mu\text{m}$ .

### 3.4 Conclusion

Ce chapitre a donc été consacré à une brève introduction des différents outils de simulation dédiés à la conception de structures à bandes interdites élastiques pour les ondes de surface. Ces modèles fondés sur la méthode de décomposition en ondes planes ou sur celle des éléments finis et développés préalablement à ces travaux de thèse nous ont permis d'évaluer l'influence de la géométrie de la maille et du facteur de remplissage de la structure sur les positions et largeurs des bandes interdites. Il a en particulier été montré que dans le cas au moins d'un cristal phononique constitué d'un arrangement suivant une maille carrée de trous d'air dans une matrice de niobate de lithium, les bandes interdites pour les ondes de surface coïncident avec celles obtenues pour les ondes de volume. À la lumière de ces analyses, nous avons choisi de procéder à la fabrication d'un cristal phononique présentant un rapport diamètre de l'inclusion sur période du réseau de l'ordre de 0,90 (soit un facteur de remplissage autour de 64%). Dans ces conditions, une bande interdite de largeur relative de l'ordre de 34% est attendue, avec une fréquence normalisée  $\omega a/2\pi$  centrée autour de 2000. Si la valeur réelle de la période du cristal importe peu du point de vue

théorique, elle est en revanche conditionnée par des impératifs relevant du procédé de fabrication, comme nous le verrons dans le chapitre à venir.

## Chapitre 4

# Fabrication d'un cristal phononique piézoélectrique en niobate de lithium

L'avènement des cristaux photoniques n'a fait qu'accentuer un besoin préexistant en termes de micro-usinage du niobate de lithium. En effet, l'importance acquise par ce matériau dans le domaine de l'optique intégrée a vite conduit à s'interroger sur les possibilités de le structurer afin d'améliorer encore l'efficacité des dispositifs existants. De nombreux efforts ont par exemple été dédiés au cas des guides d'ondes "en crête" (en anglais *ridge waveguides*). Une telle configuration permet surtout de placer de façon optimale les électrodes d'un modulateur électro-optique de type Mach-Zendher [112] ou encore d'améliorer l'efficacité d'un convertisseur de polarisation [113]. Des travaux visant à déterminer un procédé d'usinage approprié ont de ce fait été initiés dès le début des années 70. Pourtant, et ce malgré la multiplicité des méthodes employées, aucune voie n'a vraiment su s'imposer. Il perdure donc encore un champ d'investigation relativement vaste, dont témoigne par exemple le nombre de travaux encore consacrés à la réalisation de structures ne présentant pourtant pas une géométrie particulièrement complexe, ni même des dimensions très réduites.

Cette section, qui ne se prétend nullement exhaustive, revient donc sur différentes techniques d'usinage employées afin de graver le niobate de lithium, principalement en coupe Y. Des méthodes de structuration nécessitant une altération *a priori* du matériau comme celles visant à attaquer le  $\text{LiNbO}_3$  dans sa forme massive sont présentées. L'idée ici est de dégager quelques procédés particulièrement adaptés à l'application cristaux phononiques visée, avant de nous intéresser à celui qui a été développé et mis en œuvre dans le cadre de ces travaux de thèse.

### 4.1 Usinage collectif du niobate de lithium : état de l'art

Le niobate de lithium, comme la plupart des autres matériaux piézoélectriques, a acquis au cours du temps la réputation d'être particulièrement difficile à usiner. La multitude de méthodes développées à cette fin en témoigne : gravures sèches comme humides, procédés standard de salle blanche comme techniques alternatives plus lourdes. Si aucune méthode privilégiée n'a

vraiment su se dégager de la littérature, nous verrons qu'additionnellement à une attaque directe du substrat, les propriétés physiques de ce matériau, en particulier sa ferroélectricité, peuvent également être employées à bon escient à des fins de structuration.

#### 4.1.1 Gravure directe du niobate de lithium

##### Gravure sèche non réactive

La relative inertie du niobate de lithium dans son état initial dans des solutions de gravure humide – nous verrons en effet qu'une altération préalable des propriétés physico-chimiques du matériau s'impose – a très rapidement poussé au développement de techniques coûteuses et technologiquement exigeantes. De façon assez surprenante, la gravure ionique compte parmi les premières méthodes employées à cette fin. Les travaux de Kaminow *et al.* [112] ou encore de Minakata [114] ont mené à la réalisation de guides de type *ridge* pour des applications modulateurs dès 1974 et 1979 respectivement. Au-delà de la seule structuration, la gravure ionique a permis de combiner système de lithographie optique et attaque du matériau, dans le but de définir des motifs avec une relativement grande précision. D'autres moyens d'usinage que l'on peut qualifier de mécaniques, dans le sens où ils ne font pas appel à des procédés impliquant une réactivité chimique du niobate de lithium, ont également été exploités, comme l'usinage ultrasonore [115]. Ces techniques ont néanmoins rapidement atteint leurs limites : l'usinage ultrasonore permet seulement de définir des structures grossières, avec une flexibilité réduite en termes de géométries réalisables et le manque de sélectivité de la gravure ionique a rapidement conduit à chercher des alternatives. La gravure ionique réactive est alors apparue comme une solution pouvant laisser espérer une amélioration de cette sélectivité, et ce par la possibilité qu'elle offre de mettre en jeu des espèces chimiques susceptibles d'affecter plus nettement le niobate de lithium que le matériau constituant le masque.

##### Gravure ionique réactive

La gravure ionique réactive permet de combiner à la fois les avantages d'une attaque chimique, à savoir exploiter la réactivité des matériaux mis en jeu pour améliorer la vitesse de gravure ou assurer une meilleure sélectivité du masque, et ceux d'une attaque ionique du substrat cible. Elle consiste à exposer le substrat à un plasma provenant de l'ionisation d'espèces gazeuses judicieusement choisies. Le substrat est placé sur un support isolant (de silice, par exemple). Une puissance radio-fréquence est alors appliquée au porte-substrat générant ainsi un champ électrique à l'origine du plasma. La forte mobilité des électrons, comparativement à celle des ions en présence, va favoriser le déplacement des premiers dans la chambre, ainsi que leur collision et leur absorption par les parois de l'enceinte. Le porte-substrat développe ainsi une tendance à se charger négativement, attirant les ions chargés positivement du plasma. A l'action chimique se superpose donc une attaque mécanique dont la puissance dépend de l'énergie cinétique des ions incidents, et ainsi par là même de la tension d'accélération et du libre parcours moyen des ions. Ce dernier paramètre, s'il est élevé, assure le caractère anisotrope de la gravure.

Jackel *et al.* [116] ont très tôt obtenu des résultats satisfaisants en termes de vitesse de gravure. Trois espèces réactives, à savoir le tétrafluorométhane  $\text{CF}_4$ , le trifluorométhane  $\text{CHF}_3$  et le dichlorodifluorométhane  $\text{CCl}_2\text{F}_2$ , ont été étudiées sous différentes conditions de pression ou de débit de gaz. L'influence de l'argon et de l'oxygène sur la vitesse et la qualité de gravure a également été évaluée. Les motifs gravés sont de dimension variant de 1 à 10  $\mu\text{m}$ , la surface à préserver étant protégée par un masque de chrome ou de nickel. La gravure par dichlorodifluorométhane s'est révélée la plus concluante. Des vitesses de gravure de l'ordre de  $55 \text{ nm}\cdot\text{min}^{-1}$  ont pu être mesurées, permettant d'obtenir des motifs de 1,5  $\mu\text{m}$  de large pour 1,1  $\mu\text{m}$  de profondeur. Néanmoins, à ce point de fonctionnement précis, la sélectivité du masque se trouve fortement réduite, et les rugosités de surface importantes. Chung *et al.* [117] se sont pour leur part intéressés à l'effet du  $\text{CF}_4$  exclusivement, et à une pression de 20 Pa. Si une sélectivité de 10 avec le masque de chrome a pu être atteinte, la vitesse de gravure est très lente (de l'ordre de  $1,5 \text{ nm}\cdot\text{min}^{-1}$ ) et n'atteint que  $5 \text{ nm}\cdot\text{min}^{-1}$  si la sélectivité est sacrifiée et réduite à 5. D'autres travaux dédiés au développement de procédés de gravure ionique réactive, ne se sont pas montrés plus concluants [118]. Foglietti *et al.* [119] ont pour leur part tenté de graver des motifs submicrométriques en structurant une fine couche de chrome déposée sur le substrat de niobate de lithium par lithographie électronique. Ils ont de la sorte pu obtenir des réseaux de diffraction de 350 nm de période pour une profondeur de 400 nm, mais la gravure ionique réactive réalisée par action du  $\text{CHF}_3$  à un débit de 10 sccm, une pression de 50  $\mu\text{bar}$  et une densité de puissance de  $0,53 \text{ W}\cdot\text{cm}^{-2}$  montre une rugosité de surface (mesurée pic à pic) d'au moins 6 nm, croissante avec la profondeur, pour des vitesses de gravure autour de  $7 \text{ nm}\cdot\text{min}^{-1}$  seulement. Enfin, Winnall et Winderbaum [120] ont étudié une gravure de type  $\text{CF}_4 : \text{O}_2$  sur les coupes X et Z du niobate de lithium, avec un masque de gravure en chrome et nickel. Il ressort de leurs travaux que le rapport des vitesses de gravure entre ces deux coupes est de 8 : 15, témoignant du caractère très anisotrope de leur procédé. La vitesse de gravure maximale obtenue est de  $3,8 \text{ nm}\cdot\text{min}^{-1}$ , pour une sélectivité de masque de 4 seulement par rapport au niobate de lithium. Si la présence d'oxygène permet d'améliorer quelque peu la verticalité des flancs, cela se fait au détriment de l'état de surface. De plus, la pente observée demeure considérable, de l'ordre de  $20^\circ$ .

### Usinage par faisceau d'ions focalisés

Les procédés présentés dans la section précédente sont fondés sur l'emploi de techniques de photolithographie et de transfert des motifs sur le substrat de niobate de lithium par gravure ionique. Une alternative à la définition de motifs de dimension submicrométrique, assez inexploitée jusqu'à présent, consisterait à graver le niobate de lithium par faisceau d'ions focalisés (FIB : Focused Ion Beam). Lacour *et al.* [121] ont en effet montré qu'il était possible d'obtenir des trous de 500 nm de diamètre et de 2  $\mu\text{m}$  de profondeur par usinage FIB. Roussey *et al.* [122] ont pour leur part réduit la dimension des trous à 250 nm, pour une profondeur de l'ordre de 1,5  $\mu\text{m}$  également. Les travaux poursuivis au sein de l'Institut FEMTO-ST laissent encore augurer d'une amélioration de ces résultats. Cette technique permet donc d'obtenir des trous de diamètre submicrométrique et avec un rapport de forme de l'ordre de 5 au moins dans du niobate

de lithium, ce qui, nous le verrons un peu plus loin dans ce chapitre, se révèle difficile par gravure ionique réactive. L'inconvénient majeur réside dans le temps d'usinage des structures : si la vitesse de gravure peut être optimisée, notamment en modifiant l'énergie d'exposition, ou en assistant chimiquement le procédé mécanique, chaque trou doit être usiné indépendamment, ce qui peut se révéler rédhibitoire si le nombre, la surface ou la profondeur des motifs à graver devient conséquente. Il est ainsi difficilement envisageable d'usiner par FIB des cristaux phononiques de dimensions micrométriques du fait de l'importante quantité de matière à graver. Cette méthode reste néanmoins parmi les plus efficaces pour réaliser des structures photoniques bidimensionnelles sur niobate de lithium aux échelles optiques.

#### 4.1.2 Gravure par altération des propriétés physico-chimiques du matériau

La résistance du niobate de lithium aux procédés de gravure sèche comme humide ont poussé à chercher des moyens d'altérer la structure de ce matériau afin d'en faciliter une attaque physique et/ou chimique. La coupe Z du niobate de lithium s'est ainsi trouvée au centre d'un intérêt tout particulier du fait des possibilités offertes par l'inversion de domaines ferroélectriques. En effet, il a été observé dès 1966 par Nassau *et al.* [123] que les vitesses de gravure des deux domaines dans un bain humide étaient suffisamment distinctes pour pouvoir procéder à une gravure différentielle du matériau. Cette pratique s'est étendue à d'autres méthodes que l'inversion classique de domaines ferroélectriques, par exemple par exposition à un faisceau électronique ou encore par utilisation de la technique d'échange protonique.

#### Solutions de gravure humide

La gravure humide présente le net avantage d'être une technique collective, dont la mise en œuvre ne requiert guère d'équipements lourds. Largement répandue dans les procédés de salle blanche, elle présente usuellement l'avantage d'être sélective et de permettre un usinage isotrope comme anisotrope du matériau. Dans le cas du niobate de lithium, elle a dans un premier temps été employée par Nassau *et al.* [123] pour mettre en évidence l'orientation des domaines ferroélectriques, artificiellement imposée par la technique dite d'inversion de domaines (*periodic poling*). En effet, les vitesses de gravure des domaines positifs et négatifs ne sont pas égales, permettant de mettre en évidence l'orientation des dipôles dans le matériau par gravure différentielle. A cette fin, une solution composée d'un mélange à une proportion de 1 : 2 d'acide fluorhydrique HF et d'acide nitrique HNO<sub>3</sub> à 110°C (température d'ébullition du mélange) a été employée, solution qui demeure encore à l'heure actuelle la plus largement utilisée.

#### Gravure assistée par inversion de domaines ferroélectriques

Les expériences initiales de Nassau ont par la suite été appliquées à des fins d'usinage du niobate de lithium. Deux voies ont plus particulièrement été explorées :

- Inversion de domaine classique, c'est-à-dire par application d'un champ électrique élevé sur le substrat. Les zones à préserver, pour lesquelles les domaines doivent être maintenus dans

leur état initial, sont protégées par une couche de résine assurant une isolation électrique. Il est donc nécessaire de procéder à une photolithographie préliminaire afin de délimiter les motifs à inverser.

- Inversion de domaine par faisceau électronique. Cette technique permet d'inverser localement les domaines ferroélectriques, permettant d'une part de s'affranchir de l'étape de lithographie mentionnée sur le point précédent, et d'autre part de définir de façon beaucoup plus aisée des motifs submicroniques.

Les travaux de Barry *et al.* [124] et de Restoin *et al.* [125] ont respectivement mis ces techniques en application, en associant donc cette inversion de domaine à une attaque différentielle des domaines positifs et négatifs par voie humide ( $\text{HF}+\text{HNO}_3$  ou  $\text{HF}$  seul). Le motif défini par photolithographie ou par faisceau électronique est fidèlement transféré sur la face  $-z$  du cristal. La face  $+z$  exhibe quant à elle une géométrie liée aux plans cristallins du niobate de lithium présentant des formes triangulaires ou hexagonales représentative de la classe de symétrie  $3m$ . Cette méthode présente toutefois deux inconvénients notables. Elle ne peut être employée que sur la coupe Z du niobate de lithium limitant ainsi la gamme d'applications potentielles des structures réalisables. Par ailleurs, la solution de gravure humide tend à attaquer de manière préférentielle les zones du substrat présentant des défauts structuraux (qui peuvent, par exemple, résulter des étapes de polissage du substrat effectuées chez le fournisseur) provoquant le transfert par gravure de motifs indésirables.

### Gravure assistée par échange protonique

À l'image de l'inversion de domaine, l'échange protonique est une technique qui a été déviée de sa fonction initiale, à savoir la réalisation de guides d'ondes pour l'optique intégrée, afin d'induire une fragilité structurelle permettant une fois encore la réalisation d'une gravure différentielle [126]. De façon très sommaire, elle consiste à substituer des ions hydrogène  $\text{H}^+$  aux ions lithium  $\text{Li}^+$  par immersion du substrat de niobate de lithium dans un bain d'acide benzoïque [127] ou d'acide benzoïque dilué par du benzoate de lithium [128] (on parle alors de *soft proton exchange*) à des températures autour de  $200^\circ\text{C}$ . Les ions hydrogène sont implantés localement, induisant une modification de l'indice de réfraction de la zone échangée avec un profil de type saut d'indice. L'épaisseur de la couche échangée dépend à la fois du temps et de la température de diffusion. Cette technique présente toutefois le net désavantage d'affecter considérablement et négativement les propriétés électro-optiques ou encore non-linéaires du niobate de lithium et d'induire des contraintes mécaniques élevées au niveau de la zone échangée [129]. Cette étape d'échange est donc souvent suivie d'un recuit permettant de restaurer quelque peu les propriétés initiales du matériau et de réduire ces contraintes. Elle conduit par ailleurs à une migration plus en profondeur des ions hydrogène (et à une migration vers l'extérieur des ions lithium) et à l'établissement d'un gradient d'indice de réfraction en lieu et place du profil à saut d'indice obtenu par échange seul.

Dans les expériences de Laurell *et al.* [126], un masque de titane a été employé pour définir les zones à échanger. À noter que cette opération est souvent effectuée en usant d'un masque de ré-

sine photosensible, assurant les mêmes fonctions et permettant de s'affranchir des phénomènes de fluctuations des caractéristiques de l'échange du fait de la création de potentiels électrochimiques parfois observables près des zones métallisées. Le substrat de niobate de lithium est ensuite gravé chimiquement par la solution habituelle de HF et de HNO<sub>3</sub> évoquée plus tôt dans cette section. Il a été démontré que la profondeur de gravure est directement conditionnée par celle de la zone échangée, dans le cas d'un échange par acide benzoïque pur comme dilué. Du point de vue des dimensions latérales, les motifs gravés sont plus larges que ceux définis sur le masque, effet qui a été imputé à une diffusion latérale des ions H<sup>+</sup>. En revanche, l'étape de recuit, si elle permet de restaurer au moins partiellement les propriétés physiques du substrat, rétablit par ailleurs partiellement également la structure cristalline initiale, résultant ainsi en une réduction de la profondeur atteignable et une augmentation de la rugosité de surface à l'issue de la gravure. Wang *et al.* [130] ont cherché à réduire la diffusion latérale de l'échange de façon à améliorer la verticalité des flancs en appliquant un potentiel contradirectionnel au gradient de diffusion. Des motifs de 2,35 μm de profondeur présentant des profils de flancs verticaux sur 1,23 μm ont ainsi pu être obtenus. Enfin, Ting *et al.* [131] ont également tenté d'obtenir des profils de gravure plus lisses et verticaux en modifiant quelque peu la solution d'échange standard par addition d'acide adipique.

Malgré ces encourageants résultats, la profondeur maximale atteignable dans le cadre d'un tel procédé reste limitée par la profondeur de la zone échangée, qui excède très rarement les 3 μm. De plus, les deux dernières expériences présentées, si elles sont prometteuses, n'ont pas posé la problématique du recuit post-échange, nécessaire à la restauration des propriétés physiques du matériau. Or la plupart des applications mettant en jeu le niobate de lithium sont fondées sur ses hauts coefficients électro-optiques, photoélastiques, piézoélectriques ou encore non-linéaires.

### Gravure assistée par irradiation laser

L'irradiation par laser constitue une alternative à la photolithographie pour la définition spatiale des zones à altérer en vue d'une attaque chimique.

Ashby et Brannon [132] ont adopté une méthode particulièrement originale consistant à déposer sur la surface du niobate de lithium à usiner un film de poudre de fluorure de potassium (KF). La surface est alors localement portée au point de fusion par un faisceau laser pulsé nanoseconde émettant dans l'ultraviolet avec une densité de puissance minimale de l'ordre de 5 MW.cm<sup>-2</sup>. Les zones de LiNbO<sub>3</sub> en fusion vont alors subir une réaction avec le KF, résultant en la formation d'un solide soluble dans l'eau que l'on peut éliminer par simple rinçage. Des trous d'une profondeur de l'ordre de 5 μm ont ainsi pu être obtenus. Un tel procédé permet de s'affranchir des phénomènes de redépôt qui constituent généralement le facteur limitant des procédés d'ablation laser. Toutefois, le profil de gravure dépend de la répartition d'énergie initiale du faisceau incident, ce qui nuit à l'uniformité de la gravure, introduisant notamment un manque de verticalité des flancs, ou encore une rugosité de surface importante dans les zones exposées à de fortes densités de puissance.

Brown *et al.* [133] se sont penchés sur la possibilité d'induire à la fois une exaltation et une inhi-

bition (on parle alors de LIFE : *Light Induced Frustration Etching* [134]) des réactions chimiques se produisant avec le niobate de lithium. Il a été montré que sur un substrat de  $\text{LiNbO}_3$  en coupe X, il était possible par irradiation d'une partie de la surface par un laser excimère KrF de longueur d'onde 248 nm, mais à une densité de puissance juste en dessous du seuil d'ablation, d'induire un endommagement des zones illuminées sans graver directement le matériau. Celui-ci est ensuite attaqué par gravure humide, laquelle affecte préférentiellement les zones irradiées.

### 4.1.3 Une technique alternative : l'ablation laser

Pour des motifs de taille supérieure, l'usinage laser constitue une bonne alternative aux procédés de salle blanche. Les lasers UV continus comme les lasers à impulsions femto-secondes permettent de générer des impulsions très énergétiques propices à l'attaque de tous types de matériaux. Nous revenons ici brièvement sur les gravures par lasers fluorés ou chlorés, ainsi que sur l'ablation laser femto-seconde. Dans ce dernier cas, nous présentons quelques résultats obtenus dans le cadre d'une tentative de fabrication de cristaux phononiques par la compagnie IBMM – Institute of Bioelectronic and Molecular Microsystems – basée au sein de *the School of Informatics of the University of Wales, Bangor* au Pays de Galles.

#### Ablation par laser ultraviolet

Les lasers à ultraviolets et parmi eux les lasers à gaz chlorés ou fluorés se sont révélés des candidats intéressants pour la réalisation de structures, à une échelle de plusieurs micromètres, dans le niobate de lithium. Eyett et Bäuerle [135] ont employé un laser chlorure de xénon ( $\text{XeCl}$ ) à 308 nm, obtenant des motifs de diamètres entre 24 et 175  $\mu\text{m}$  d'une rugosité satisfaisante, sans endommagement visible autour de la zone d'ablation. La vitesse de gravure est inversement proportionnelle au diamètre du faisceau laser incident. Des résultats similaires ont été obtenus en employant un laser fluorure de krypton ( $\text{KrF}$ ) à 248 nm afin de réaliser des structures en "V" pour le positionnement de fibres optiques [136]. La société britannique Exitech Ltd s'est également largement impliquée dans l'étude de différentes sources lasers, notamment excimères à 248 nm ou 157 nm [137, 138] (cette dernière longueur d'onde ayant été écartée rapidement) pour des applications en réalisation de "V" de positionnement. D'autres tentatives ont été effectuées à des longueurs d'ondes plus élevées, hors de la gamme d'absorption du niobate de lithium, initiées par Christensen et Müllenborn [139] par laser argon à 351 nm. Exitech Ltd a fait usage de lasers à solide, en l'occurrence d'un vandanate dopé néodyme  $\text{Nd} : \text{YVO}_4$  à 355 nm à des fins de découpe, notamment [137].

#### Ablation par laser impulsif

Ces résultats prometteurs en termes de qualité d'usinage nous ont conduits à entrer en contact avec la société IBMM, institut nouvellement fondé au Pays de Galles pour la réalisation d'un cristal phononique en niobate de lithium. Les systèmes optiques usuels ne permettant que très difficilement de focaliser un faisceau laser à des diamètres de l'ordre du micron, et le système

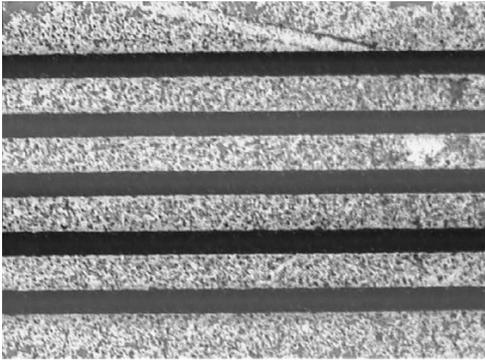


FIG. 4.1 – Pistes de  $20\ \mu\text{m}$  de large et de  $50\ \mu\text{m}$  de période usinées par laser femtoseconde dans un substrat de niobate de lithium en coupe Y. *Images Nadeem Rizvi, IBMM*

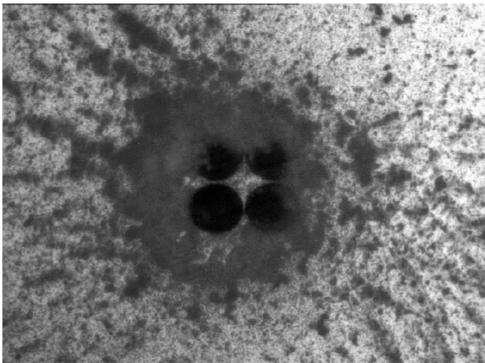


FIG. 4.2 – Illustration des phénomènes de redépôt observés lors de l'usinage d'un réseau de trous. Le trou percé en dernier lieu (en bas à gauche) est quasiment exempt de particules indésirables, celles-ci s'étant en fait redéposées dans tous les autres trous.

d'usinage laser par projection de masque étant exclu dans le cas d'un usinage par laser femtoseconde, l'idée a ici été de déterminer les conditions d'usinage optimales pour la réalisation d'un réseau carré avec un diamètre d'inclusion de l'ordre de  $30$  à  $50\ \mu\text{m}$ , présentant des rapports de forme aussi élevés que possible, et un rapport diamètre sur période supérieur à  $0,9$  de façon à se placer dans les conditions d'obtention d'une bande interdite phononique complète. Le temps de fabrication d'une telle structure par laser excimère s'étant révélé rédhibitoire, cette option a été abandonnée au profit de l'ablation par laser femtoseconde, et ce malgré la bonne qualité de profil de trous obtenue.

Un motif test consistant en une série de pistes de  $20\ \mu\text{m}$  de large par  $25\ \mu\text{m}$  de profondeur a pu être réalisé sans difficulté majeure, comme le montre la figure 4.1. Le dispositif optique et les paramètres employés à cette fin ont ainsi servi de base à l'usinage plus spécifique des trous. Des trous de différents diamètres ont ensuite été définis par changement des lentilles de focalisation du faisceau laser. Le substrat, en l'occurrence une plaquette de niobate de lithium en coupe Y, est laissé fixe, le faisceau laser balayant la surface.

Les premiers essais ont laissé transparaître deux difficultés majeures :

- un endommagement de la surface du substrat (cassures) autour des trous,
- la présence d'un nombre conséquent de débris à l'intérieur des trous (figure 4.2).

Si une réduction de la densité d'énergie du faisceau a permis de réduire les fractures en surface, le phénomène de redépôt de ces débris, de dimension considérable par rapport au diamètre du trou n'a pu être complètement éradiqué. Il est en effet possible d'éliminer ces résidus par un

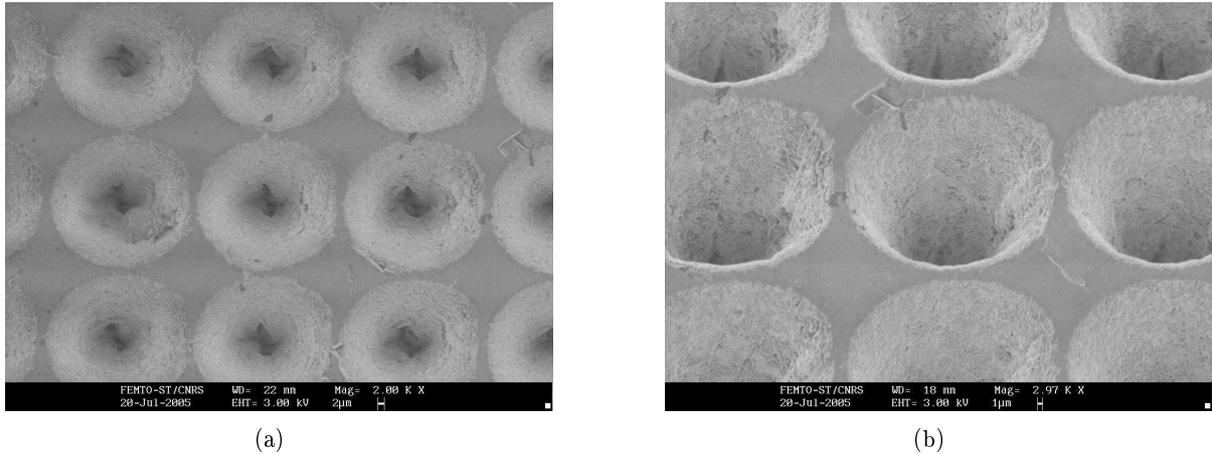


FIG. 4.3 – Images prises au microscope électronique à balayage de réseaux de trous usinés par impulsions laser femtosecondes.

bain ultrasonique subséquemment à l'usinage, mais la présence de ces particules empêchent une gravure en profondeur du substrat (figure 4.2). Le procédé employé a donc été optimisé afin de minimiser ces effets de redépôt. Pourtant, les rapports de forme obtenus sont restés inférieurs à 1,5. La figure 4.3 montre en effet que les trous tendent encore à se refermer assez rapidement. À cela vient s'ajouter une très forte rugosité des flancs, qui nous a poussés à écarter cette méthode d'usinage.

### Bilan

Des difficultés technologiques certaines se posent donc pour la réalisation de structures à haut facteur de forme dans un substrat de niobate de lithium. Malgré la multitude de procédés développés, aucun d'entre eux n'a vraiment su s'imposer comme un moyen fiable et satisfaisant à l'échelle micrométrique ou submicrométrique. Les méthodes de gravure différentielles sont certes prédominantes, mais il n'en reste pas moins que la gravure ionique réactive demeure intéressante pour la production à grande échelle de structures usinées, en particulier si une altération du substrat de niobate de lithium n'est pas envisageable, que ce soit pour des motifs d'incompatibilité de coupe cristallographique ou de volonté de non altération des propriétés physiques. C'est pourquoi nous avons adopté ce type de procédé pour la réalisation de nos structures phononiques.

## 4.2 Gravure ionique réactive du niobate de lithium au sein de l'institut FEMTO-ST

La centrale technologique MIMENTO de l'Institut FEMTO-ST dispose de deux bâtis de gravure ionique réactive, l'un doté d'arrivées de gaz chlorés, l'autre d'arrivées de gaz fluorés. Nous avons dans un premier temps défini les objectifs à atteindre, afin d'établir une certaine hiérarchie quant aux paramètres de gravure à optimiser. En effet, nous verrons dans la suite de

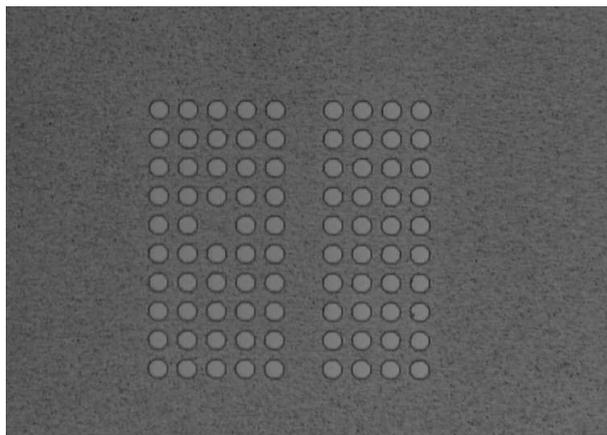


FIG. 4.4 – Agencement des trous du motif du masque Chrome/verre. La structure présentée comporte un guide de type W1 et une cavité.

ce document qu'il se révèle par exemple assez difficile de concilier homogénéité de gravure et hauts rapports de forme (mettant donc en jeu la vitesse de gravure et surtout la sélectivité avec le masque).

Nous nous sommes ainsi concentrés sur l'obtention de trous les plus profonds possibles, tout en assurant une bonne conservation de l'état de surface de la plaquette de niobate de lithium usinée, et ce dans les trous comme en surface du substrat. Dans ce cadre, l'un des paramètres clef du système est la sélectivité du masque.

#### 4.2.1 Choix du masque de gravure

Une campagne de gravure de motifs tests a donc été initiée en prenant comme procédé de base un procédé dit "multi-matériaux" préalablement développé au sein de la centrale de technologie, dont les paramètres sont listés ci-dessous :

- pression de travail : 3  $\mu$ bar
- réactif : Hexafluorure de soufre SF<sub>6</sub>,
- débit : 10 sccm
- puissance : 150 W.

Nous avons utilisé, en premier lieu, ce procédé pour déterminer le masque de gravure le plus approprié, c'est-à-dire présentant la meilleure sélectivité avec le niobate de lithium. En particulier, nous avons exploré les trois pistes suivantes : résines dites résistantes au plasma, masque métallique pulvérisé, masque métallique électroformé. Les étapes du procédés sont détaillées au début de chaque paragraphe les développant.

Dans tous les cas, les motifs à graver consistent en une série de réseaux de trous octogonaux de différents diamètres (1,2 - 1,5 - 3 - 7,5 - 11 et 16  $\mu$ m). La forme octogonale des éléments a été imposée par les limites du masqueur optique utilisé. Un de ces réseaux est représenté sur la figure 4.4. Les substrats de gravure employés sont tous des plaquettes de niobate de lithium en coupe Y, polis simple face et d'épaisseur 500  $\mu$ m.

### Résine SPR-220

Nous avons réalisé nos premiers tests de gravure en utilisant la résine photosensible SPR-220-3.0 résistante au plasma d'épaisseur nominale 3  $\mu\text{m}$  commercialisée par la société Rohm and Haas (anciennement Shipley). Cette résine positive est en principe surtout utilisée en tant que masque pour les procédés du type gravure ionique réactive profonde du silicium (DRIE pour *Deep Reactive Ion Etching*), la sélectivité par rapport à ce matériau étant de l'ordre de 100. L'utilisation d'un tel masque présente l'avantage notable de simplifier d'au moins deux étapes correspondant au procédé de définition des motifs préalable à la gravure. Elle permet aussi de s'assurer que le transfert des motifs du masque de lithographie vers le masque de gravure se fait quasiment sans perte de la définition originale. Le procédé se décompose en cinq étapes :

- A** : Enduction de résine SPR220-3.0.  
Vitesse : 3000  $\text{m.s}^{-1}$ , accélération : 4000  $\text{m.s}^{-1}$ , temps : 30 s, recuit : 90 s à 120°C
- B** : Insolation (300  $\text{mJ.cm}^{-2}$ )
- C** : Développement (autour de 45 s)
- D** : Gravure ionique réactive
- E** : Élimination de la résine par plasma oxygène (100 W, 100  $\mu\text{bar}$ , 20 sccm)

Si la résine SPR220 fournit des résultats plus que satisfaisants dans le cadre de son utilisation classique, les résultats obtenus lors de la gravure du niobate de lithium avec le procédé "multi-matériaux" mentionné plus haut n'ont pas été à la hauteur des attentes.

En effet, à l'issue de 30 minutes de gravure pour une épaisseur initiale comprise entre 3,3  $\mu\text{m}$  (mesurés sur les bords de la plaquette) et 3,6  $\mu\text{m}$  (au centre), l'intégralité de la résine déposée s'est trouvée consommée, causant ainsi une dégradation notable de l'état de surface de la plaquette de niobate de lithium par attaque irrégulière du substrat. La profondeur de gravure mesurée est alors de l'ordre de 1,25  $\mu\text{m}$ . La vitesse de gravure correspondante, autour de 40  $\text{nm.min}^{-1}$ , sera vérifiée par la suite pour ces mêmes paramètres de gravure. On observe par ailleurs une altération de la couche de résine résiduelle. Elle résiste en particulier aux bains classiques de dissolution : l'acétone reste sans effet. Un bain "piranha" (consistant ici en un mélange à proportions égales d'acide sulfurique  $\text{H}_2\text{SO}_4$  et d'eau oxygénée  $\text{H}_2\text{O}_2$ ) se révèle beaucoup moins efficace qu'à l'accoutumée et ne permet qu'une élimination partielle de la résine. L'exposition du substrat à un plasma oxygène réalisé dans le même bâti de RIE permet toutefois de l'éliminer.

Si l'enduction de couches de résines photosensibles plus épaisses ou l'introduction de phases de refroidissement par interruption du plasma pourraient se concevoir comme des possibilités de préserver la résine, les temps de gravure maximaux, dépendant de la tenue du masque, n'en resteraient pas moins réduits. Nous nous sommes de ce fait tournés vers des masques de gravure sèche plus classiques, en l'occurrence des masques métalliques.

### Masque métallique pulvérisé

Nous avons donc procédé à différents essais de gravure en utilisant un masque métallique de chrome ou de nickel déposé par pulvérisation cathodique. Peu de différences ayant été constatées

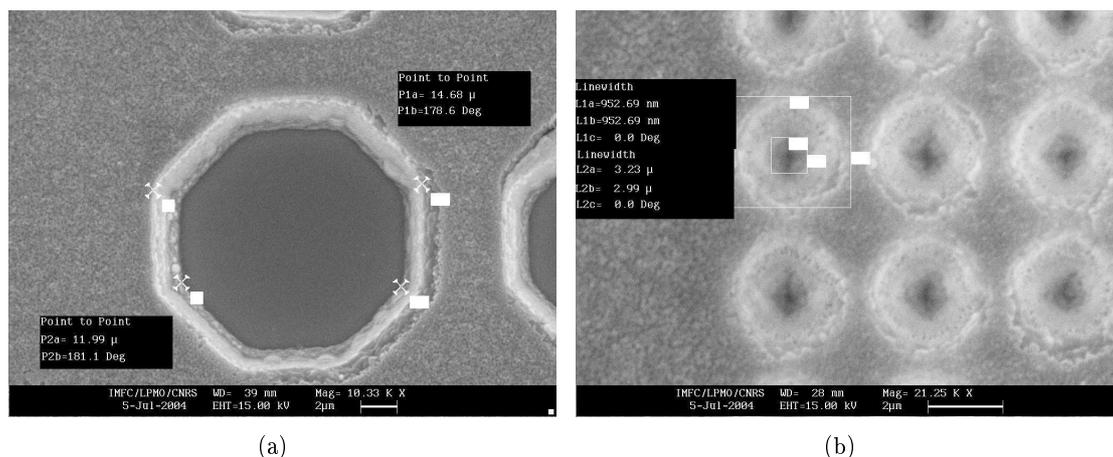


FIG. 4.5 – Images au microscope électronique à balayage de trous gravés dans du niobate de lithium avec un masque de nickel pulvérisé d'épaisseur 800 nm. Les diamètres des motifs sont respectivement de 14  $\mu\text{m}$  (a) et de 1  $\mu\text{m}$ (b).

quant à la tenue de ces deux métaux à la gravure, nous avons finalement opté pour un masque de nickel, dans l'idée de le comparer plus tard à un autre masque du même métal mais déposé par électroformage. Les motifs ont été définis par un procédé de *lift-off* qui permet de déposer des épaisseurs importantes de métal (ici autour de 800 nm) sans pertes de définition des motifs. Le détail du procédé employé est donné ci-dessous :

- A :** Activation plasma oxygène (10 min à 100 W, 100  $\mu\text{bar}$ , 20 sscm),  
ou utilisation d'un promoteur d'adhérence (TI Prime en l'occurrence),  
ou étuvage de 10 min à 120°C.
- B :** Enduction de résine TI09XR –  
Vitesse : 1000  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ , accélération : 4000  $\text{m}\cdot\text{s}^{-1}$ , temps : 30 s, recuit : 50 s à 100°C)
- C :** Insolation et développement :  
- première insolation à 90  $\text{mJ}\cdot\text{cm}^{-2}$ , post-recuit : 60 s à 130°C,  
- seconde insolation à 300  $\text{mJ}\cdot\text{cm}^{-2}$ , 1min30 de développement)
- D :** Dépôt de nickel par pulvérisation cathodique – 800 nm d'épaisseur
- E :** Élimination de la résine (bain d'acétone + ultrasons)
- F :** Gravure ionique réactive
- G :** Élimination du nickel par gravure humide

Le dépôt d'une épaisseur relativement forte de métal (par rapport à la dimension de certains motifs) a rendu le procédé de *lift-off* plus délicat à mettre en œuvre : de façon générale, sur les différents essais réalisés, seuls les trous de diamètre supérieurs à 5  $\mu\text{m}$  ont pu être définis correctement et de manière reproductible, sans grande distorsion du contour initial. Les résultats liés à la gravure elle-même sont consistants avec ceux obtenus lors des essais précédents : la vitesse de gravure est de l'ordre de 40  $\text{nm}\cdot\text{min}^{-1}$ . La sélectivité mesurée entre le nickel pulvérisé

et le niobate de lithium est de l'ordre de 10 : 1, ce qui nous a permis de graver environ 6  $\mu\text{m}$  de niobate de lithium sur une durée de trois heures environ.

Plusieurs problèmes se posent toutefois :

- la pente de gravure est inférieure à  $70^\circ$  (là où une gravure parfaitement verticale présente des pentes de  $90^\circ$ ),
- on observe un phénomène de redépôt conséquent autour des trous de diamètre inférieur à 6  $\mu\text{m}$ , comme l'illustre la figure 4.5
- Si l'épaisseur de nickel est trop faible, on assiste à une attaque ionique non uniforme de la surface supérieure du substrat de  $\text{LiNbO}_3$ . Il est donc nécessaire de conserver une épaisseur importante de masque (de l'ordre de 200 nm) si l'on veut éviter une altération de l'état de surface du niobate de lithium.

Nous nous sommes par conséquent orientés vers un masque en nickel électrolytique.

### Masque métallique électroformé

Le dépôt de nickel par électrodéposition a été effectué dans un bain de sulfamate de nickel, chauffé à  $55^\circ\text{C}$ . L'idée ici est d'utiliser le nickel électrolytique comme masque de gravure, en comptant notamment sur sa plus faible dureté et sur sa morphologie de croissance différente de celle du nickel pulvérisé pour assurer une meilleure tenue du masque lors du procédé très énergétique employé pour la gravure ionique réactive. Les vitesses de dépôt considérables, de l'ordre de 17 à 20  $\mu\text{m}\cdot\text{h}^{-1}$ , permettent de plus de d'obtenir des épaisseurs de métal élevées, de l'ordre de plusieurs micromètres au moins. Les différentes étapes d'élaboration du masque et de réalisation de la gravure sont les suivantes :

- A** : Dépôt d'un plan de masse – 10 nm de chrome, 40 nm de nickel
- B** : Enduction de résine TI09XR –  
Vitesse :  $1000 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , accélération :  $4000 \text{ m}\cdot\text{s}^{-1}$ , temps : 30 s, recuit : 50 s à  $100^\circ\text{C}$ )
- C** : Insolation et développement :
  - première insolation à  $60 \text{ mJ}\cdot\text{cm}^{-2}$ , post-recuit : 60 s à  $130^\circ\text{C}$ ,
  - seconde insolation à  $300 \text{ mJ}\cdot\text{cm}^{-2}$ , 45 s de développement.
- D** : Croissance du nickel électrolytique – épaisseur de 1  $\mu\text{m}$
- E** : Élimination de la résine (bain d'acétone + éthanol)
- F** : Gravure ionique réactive
- G** : Élimination du métal par bains successifs :
  - perchlorure de fer ( $\text{FeCl}_3$ , attaque du nickel électrolytique),
  - solution de gravure du nickel (attaque du nickel pulvérisé),
  - solution de gravure du chrome (attaque du plan de masse de chrome)
- H** : Élimination des résidus par bain RCA (acide chlorhydrique + eau oxygénée – 1 : 1<sup>1</sup>)

La croissance d'une couche de métal par électroformage nécessite le dépôt d'un plan de masse sur le substrat de niobate de lithium qui est isolant. Cuivre et nickel peuvent tous deux être utilisés à cette fin. Ce plan de masse métallique est donc à graver préliminairement pour permettre l'attaque du substrat de niobate de lithium. Nous avons écarté la gravure humide comme

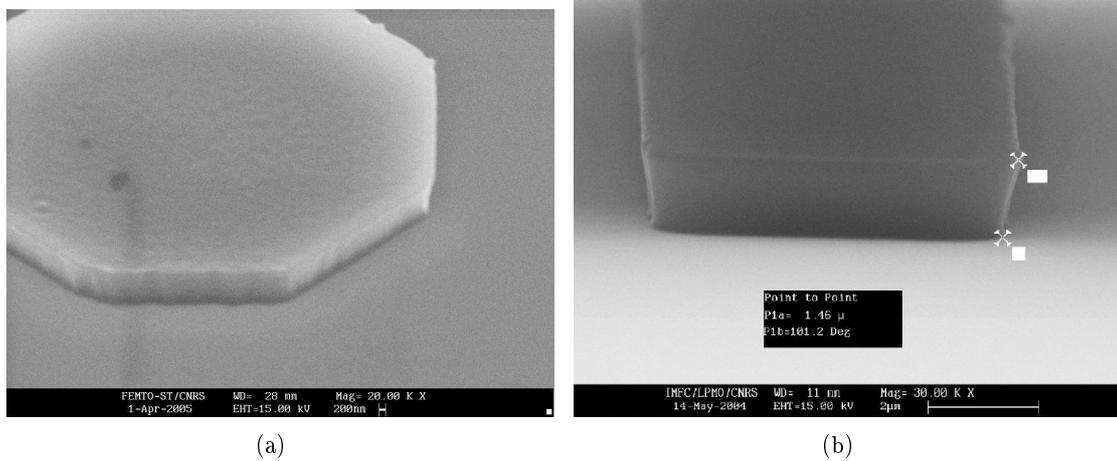


FIG. 4.6 – Images au microscope électronique à balayage de plots de résine inversible TI09XR insolée à (a)  $60 \text{ mJ.cm}^{-1}$  et (b) à  $90 \text{ mJ.cm}^{-1}$ .

moyen d'attaque, de crainte de sous-graver et donc d'affecter les motifs définis par le masque lithographique, ou encore d'altérer les propriétés de surface de la couche de nickel électrolytique. Le moyen le plus simple est alors de graver le plan de masse par gravure ionique réactive lors des premières minutes de gravure du substrat de niobate de lithium. Pour cette raison, nous avons préféré le nickel au cuivre, ce dernier se gravant moins efficacement en RIE fluorée. Nous avons également usé de deux couches d'accroche différentes, en l'occurrence du chrome et du titane. Dans ce dernier cas, nous avons constaté un noircissement de la surface du niobate de lithium à l'issue de la gravure, noircissement que nous avons imputé à une diffusion du titane. Le plan de masse a donc été fixé pour l'intégralité des essais présentés dans la suite de ce manuscrit à une couche de nickel déposée par pulvérisation cathodique d'épaisseur de l'ordre de 40 nm sur une couche d'accroche de chrome d'environ 10 nm.

Nous avons opté pour une résine inversible haute résolution (la TI09-XR, commercialisée par Shipley) pour définir les motifs à graver. Cette résine est usuellement préconisée pour la réalisation de procédé en *lift-off* ; néanmoins, une adaptation de l'énergie d'insolation de la résine permet d'obtenir des motifs à flancs droits au lieu du profil en casquette habituellement visé. La figure 4.6a illustre cette verticalité des flancs de résine, obtenue pour une énergie d'insolation faible autour de  $60 \text{ mJ.cm}^{-1}$ , contrairement à ce qui est attendu pour une énergie d'insolation plus forte (autour de  $90 \text{ mJ.cm}^{-2}$ , voir figure 4.6b).

Une couche de nickel électrolytique d'épaisseur  $1 \mu\text{m}$  a été déposée à une densité de courant de  $1,5 \text{ A.dm}^{-2}$ . La vitesse de dépôt dans ces conditions est de l'ordre de  $20 \mu\text{m.h}^{-1}$ . Le substrat est alors soumis à une gravure ionique réactive sous les mêmes conditions que celles évoquées précédemment pendant 3 heures. A l'issue de cette gravure, une profondeur de  $6,5 \mu\text{m}$  est atteinte sur le niobate de lithium, avec une épaisseur de masque restante de l'ordre de 600 nm. La sélectivité du nickel électrolytique est par conséquent de l'ordre de 20 par rapport au niobate de lithium, soit une sélectivité double de celle obtenue avec le nickel pulvérisé.

La vitesse de gravure n'est ici pas une fonction linéaire du temps de procédé. En effet, les pre-

mières minutes de la gravure ne vont permettre qu'une attaque du plan de masse chrome/nickel. Cet élément pris en compte, on retombe sur la vitesse de  $40 \text{ nm}\cdot\text{min}^{-1}$  précédemment évaluée. L'épaisseur de masque restante permet de préserver l'état de surface du substrat de niobate de lithium, même pour des profondeurs gravées supérieures à  $8 \text{ }\mu\text{m}$ , contrairement à ce qui a pu être observé dans les deux cas précédents. Cet aspect est bien entendu fondamental dans le cadre des applications aux ondes de surface. A l'issue de la gravure, la couche de nickel électrolytique ainsi que la couche d'accroche de nickel pulvérisé s'éliminent aisément dans une solution de perchlore de fer. La couche de chrome résiduelle peut être gravée par voie humide dans une solution de gravure humide de chrome commerciale. Enfin, des diamètres de trous de l'ordre du micron peuvent être obtenus sans difficultés particulières, ce qui est là encore un avantage certain par rapport au procédé *lift-off* décrit dans le paragraphe précédent.

C'est ainsi à ce type de masque que nous limiterons l'étude de l'influence des paramètres de gravure sur les caractéristiques des réseaux de trous. Les essais de gravure mentionnés dans la suite de ce document l'ont été sur des substrats préparés de la façon suivante :

- dépôt d'une couche d'accroche de chrome d'épaisseur 10 nm en pulvérisation cathodique,
- dépôt d'un plan de masse de nickel d'épaisseur 40 nm en pulvérisation cathodique,
- croissance d'une couche de nickel électrolytique d'épaisseur autour de  $1,0 \text{ }\mu\text{m}$ , dont la croissance s'est faite en employant les paramètres détaillés dans le tableau 4.1.

|                     |                                    |
|---------------------|------------------------------------|
| Plan de masse       | Cr : 10nm + Ni : 40nm              |
| Densité de courant  | $1,5 \text{ A}\cdot\text{dm}^{-2}$ |
| Surface totale      | $0,762 \text{ dm}^2$               |
| Courant imposé      | -0,684 A                           |
| Durée               | 5 min                              |
| Épaisseur du masque | autour de $1 \text{ }\mu\text{m}$  |

TAB. 4.1 – Paramètres de croissance du nickel électrolytique.

#### 4.2.2 Paramètres de gravure

Une fois le choix du masque arrêté, nous avons mené une étude de deux des paramètres de la gravure, en l'occurrence la puissance et la pression de travail. Les objectifs poursuivis restent principalement d'améliorer ou du moins de conserver la sélectivité du masque de nickel par rapport au niobate de lithium, et surtout d'améliorer le profil des flancs de gravure (rugosité et verticalité).

**Puissance** – Nous avons fait varier la puissance de gravure entre 100 et 250 W à la pression quasi-constante de  $2 \text{ }\mu\text{bar}$ . La verticalité des flancs a ensuite été évaluée pour deux des diamètres de trous gravés : 6 et  $14,5 \text{ }\mu\text{m}$ . Les substrats gravés ont ensuite été observés au microscope électronique à balayage (MEB). Les images obtenues sont données sur les figures 4.7 et 4.8. Les flancs semblent gagner en verticalité avec la puissance, comme le confirment les données du tableau 4.2. En revanche, l'application d'une puissance trop élevée, ici de 250 W, endommage

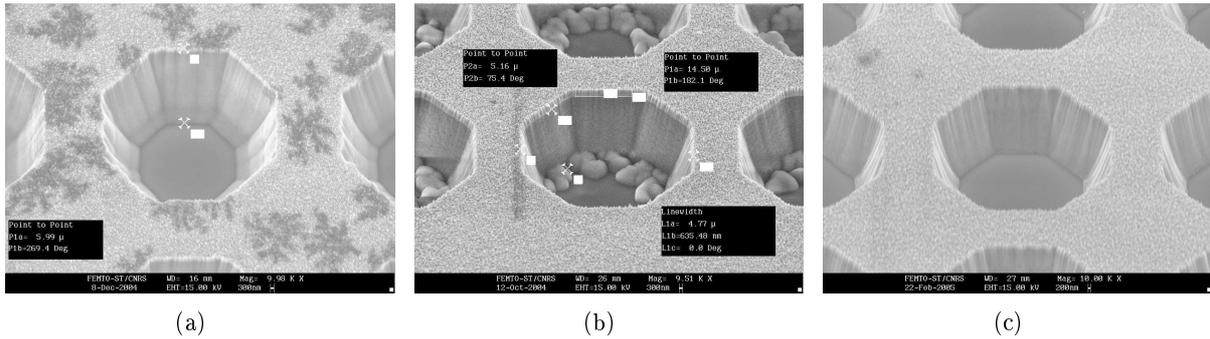


FIG. 4.7 – Images au microscope électronique à balayage de trous de diamètre 14,5 μm gravés dans le niobate de lithium à des puissances de (a) 100 W, (b) 150 W et (c) 200 W respectivement. Les excroissances observées au fond du trou sur la figure (b) sont probablement dues à un phénomène de redépôt.

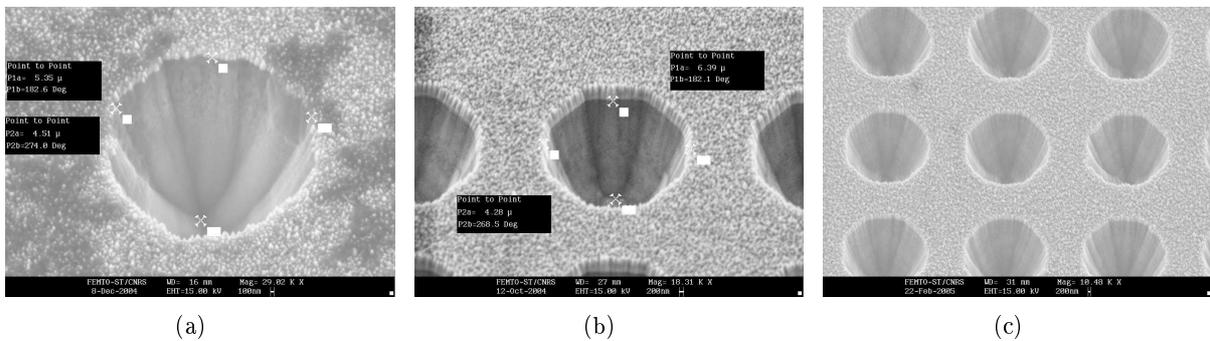


FIG. 4.8 – Images au microscope électronique à balayage de trous de diamètre 6 μm gravés dans le niobate de lithium à des puissances de (a) 100 W, (b) 150 W et (c) 200 W respectivement.

| Puissance (W) | Diamètre ( μm) |      |      |
|---------------|----------------|------|------|
|               | 14.5           | 10   | 6    |
| 100           |                | 67,6 | 67   |
| 150           | 72,9           | 72,1 | 67,3 |
| 200           | 73,4           | 71,5 | 68,2 |
| 250           | 79             | 78,1 | 78,1 |

TAB. 4.2 – Pentas de gravure mesurées, en degrés, pour différents diamètres et puissances de trous.

considérablement la surface du  $\text{LiNbO}_3$  et est par conséquent à proscrire. On se limitera donc à des puissances de travail de 200 W au maximum. Enfin, l'angle induit par la gravure, tel que rapporté sur le tableau 4.2, ne semble pas suivre une loi de variation constante, mais dépend fortement du diamètre du motif à graver.

S'il s'est révélé difficile de quantifier la valeur de la pente pour des motifs de diamètres inférieurs à 5 μm, on peut néanmoins remarquer qualitativement que la pente de gravure diminue clairement (s'éloigne de la verticale) lorsque le diamètre du trou diminue. En particulier, le facteur de forme maximal atteignable est autour de 1,5, où l'on définit le facteur de forme comme le

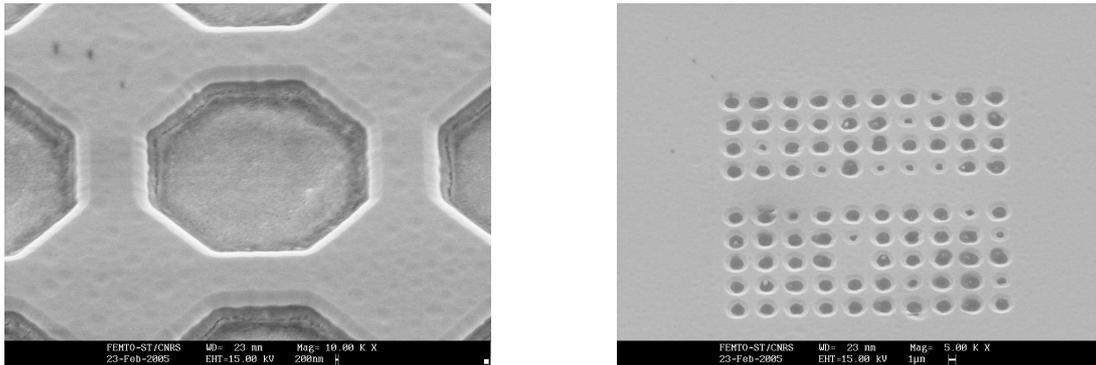


FIG. 4.9 – Structures obtenues dans le niobate de lithium après une gravure de 3 heures à 60  $\mu\text{bar}$ .

rapport entre la profondeur et la plus faible dimension caractéristique du motif (ici le diamètre du trou). Au-delà, la conicité des trous devient telle que les phénomènes de redépôt deviennent rédhibitoires ; on atteint ainsi les limites de ce que peut nous permettre la gravure par RIE, du moins avec le type de procédé choisi.

**Pression de travail** – Le débit de gaz a été maintenu à 10 sccm durant les différents tests réalisés. Nous avons ensuite choisi de fixer la puissance à 200 W et de réaliser des gravures pour deux autres valeurs de pression de l'enceinte (en plus de l'essai effectué à  $P = 2 \mu\text{bar}$ ), en l'occurrence  $P = 9 \mu\text{bar}$  et  $P = 60 \mu\text{bar}$ . L'augmentation de la pression présente deux effets notables :

- Accroissement de la quantité d'espèces chimiques en présence,
- Diminution du libre parcours moyen des espèces ioniques (réduction de la tension d'accélération)

Si une attaque à caractère plus chimique devrait permettre de limiter l'apparition de rugosités sur les surfaces gravées, permettant notamment l'obtention de flancs plus lisses, elle réduit considérablement la sélectivité à 10 comme à 60  $\mu\text{bar}$ . Le masque subit en effet une attaque beaucoup plus franche, se traduisant notamment par une sous-gravure, comme en témoigne la figure 4.9.

## Choix des espèces réactives

Nous avons en parallèle réalisé une campagne de gravure en RIE chlorée dans le cadre du stage de 2<sup>ème</sup> année de Mastère Électronique et Optique de Guillaume Rémy [140]. Le bâti de RIE concerné est usuellement employé pour la gravure de métaux selon un procédé mettant en jeu à la fois du dichlore ( $\text{Cl}_2$ ), du tétrachlorosilane ( $\text{SiCl}_4$ ) et de l'azote ( $\text{N}_2$ ) avec des débits respectifs de 50, 40 et 80 sccm, sous une pression de 100  $\mu\text{bar}$  et une puissance de 200 W. La transposition de ce procédé au niobate de lithium ne s'est guère montrée concluante, avec une profondeur gravée de quelques dixièmes de microns en une heure. La configuration du bâti de gravure ne nous permettant pas d'atteindre des conditions de pression et de puissance (et donc de tension d'accélération) suffisamment proches de celles imposées lors du procédé de gravure fluorée présenté précédemment, cette possibilité a rapidement été écartée. Nous avons néanmoins tenté de comparer les effets du  $\text{SiCl}_4$  et du  $\text{SF}_6$  dans les conditions suivantes :

- Pression dans l'enceinte : 15  $\mu\text{bar}$
- Puissance : 200 W
- Débit de gaz : 10 sccm
- Temps de gravure : 1 h

Notons ici que pour s'affranchir des incertitudes liées à l'attaque du plan de masse métallique, ce dernier a été préalablement gravé par voie humide. La profondeur gravée en  $\text{SF}_6$  est de 2,3  $\mu\text{m}$  contre 0,22  $\mu\text{m}$  en  $\text{SiCl}_4$ . Le procédé de gravure reste par ailleurs plus sélectif vis-à-vis du masque de nickel en  $\text{SF}_6$ .

## Procédé retenu

Nous avons ainsi arrêté les paramètres de gravure suivants :

- Réactif : Hexafluorure de soufre  $\text{SF}_6$
- Pression de travail : autour de 2  $\mu\text{bar}$
- Débit : 10 sscm
- Puissance : 200 W

ce qui résulte en une tension d'accélération des ions de l'ordre de 700 à 800 V. Dans ces conditions, la vitesse de gravure du niobate de lithium s'élève à 50  $\text{nm}\cdot\text{min}^{-1}$ , contre environ 2,5  $\text{nm}\cdot\text{min}^{-1}$  pour le nickel électrolytique. Si une telle sélectivité devrait nous permettre d'atteindre des durées de gravure de quasiment 7 heures avec un masque de 1  $\mu\text{m}$  d'épaisseur seulement, soit des profondeurs au-delà de 20  $\mu\text{m}$ , le manque de verticalité des flancs (pentes de l'ordre de 73°) fait office de facteur limitant dans cette configuration. Par ailleurs, le procédé n'est pas des plus homogènes puisque des variations de profondeur excédant les 25% ont pu être mesurées en fonction de la position du substrat par rapport à la chambre d'introduction des ions. S'il est possible de remédier à ce problème, c'est au prix d'une perte de la sélectivité du masque, et donc de la profondeur des trous creusés. Le procédé que nous avons présenté ici reste donc celui qui répond le mieux aux impératifs de profondeurs importantes des motifs imposés par notre application aux cristaux phononiques.

Nous n'avons pas ici réalisé une étude systématique de l'influence du débit de gaz (et donc du renouvellement des espèces dans l'enceinte). Il pourrait être intéressant d'évaluer l'effet de ce paramètre sur la vitesse de gravure et la sélectivité en particulier.

### 4.3 Conclusion

Les divers essais réalisés au sein de l'Institut FEMTO-ST, ainsi que l'étude bibliographique brièvement présentée confirment les difficultés liées à l'usinage chimique comme mécanique du niobate de lithium massif. Des travaux sont en ce moment même menés au sein de l'Institut FEMTO-ST sur la gravure du niobate de lithium en coupe X principalement par échange protonique suivi d'une attaque (physico-)chimique (gravure humide à l'acide fluorhydrique ou sèche en RIE fluorée). Dans ce cas, on s'attend à ce que l'introduction d'ions hydrogène dans la structure du niobate de lithium fragilise la maille cristalline du matériau, favorisant ainsi son ablation à l'image de ce qui a été rapporté dans la littérature et mentionné en 4.1. Les premiers essais, s'ils sont prometteurs, n'ont pas encore atteints une maturité suffisante à l'heure de la rédaction de ce manuscrit pour pouvoir être appliqués à la fabrication de cristaux phononiques aux dimensions géométriques visées. Un procédé d'usinage par gravure ionique réactive a pour l'instant été retenu et mis en œuvre pour réaliser un cristal phononique sur un substrat de niobate de lithium en coupe Y. Le réseau consiste en un arrangement de  $10 \times 25$  trous de profondeur autour de  $10 \mu\text{m}$  pour un diamètre de  $9 \mu\text{m}$  et un paramètre de maille de  $10 \mu\text{m}$ . Les simulations obtenues par méthode PWE prévoient dans cette configuration une bande interdite complète entre 190 et 280 MHz pour les ondes de volume comme pour les ondes de surface. En éléments finis et pour les ondes de volume, une bande interdite complète est obtenue entre 190 et 245 MHz environ.