

# Sommaire

Introduction.....	1
1. Contexte.....	4
1.1. Contrôle du magnétisme par le champ électrique.....	4
1.1.1. Multiferroïques naturels .....	4
1.1.2. Composites massifs ou macroscopiques.....	7
1.1.3. Heterostructures en couches minces.....	10
1.2. Applications .....	11
1.2.1. Capteurs .....	12
1.2.2. Transducteurs et gyrateurs .....	14
1.2.3. Composants RF.....	15
1.2.4. Mémoires .....	18
1.2.5. Récupération d'énergie.....	20
1.3 Conclusion .....	21
2. Modélisation analytique .....	22
2.1 Energies magnétiques .....	23
2.2 Cas isotrope .....	25
2.3 Cas uniaxial .....	25
2.4 Cas unidirectionnel.....	27
2.5 Conclusion .....	29
3. Composites macroscopiques magnétoélectriques.....	30
3.1 Choix des matériaux .....	30
3.1.1 Le matériau magnétostrictif (F) .....	30
3.1.2 Le matériau piézoélectrique (PE).....	31
3.2 Composite à anisotropie uniaxiale (F/PE) .....	32
3.3 Composite à Anisotropie unidirectionnelle (AF/F/PE) .....	39
3.4 Conclusion .....	42
4. Simulations FEM.....	44
4.1 Objectifs.....	45

4.2 Choix du logiciel .....	45
4.3 Validation du modèle .....	46
4.4 Etude de la géométrie .....	48
4.5 Influence des paramètres mécaniques .....	53
4.6 Système complet avec couche magnétique et ligne RF .....	53
4.7 Conclusion .....	54
<b>5. Caractérisation Microstructurale.....</b>	<b>56</b>
5.1 Nanoindentation.....	56
5.2 AFM.....	61
5.3 XRD.....	62
5.4 Conclusion .....	68
<b>6. Observation directe de l'effet magnétoélectrique : Effet Kerr .....</b>	<b>69</b>
6.1 Structure en domaine magnétiques.....	69
6.2 Techniques d'observation des domaines magnétiques .....	71
6.3 Effets magnéto-optiques .....	75
6.4 Réalisation du microscope Kerr.....	78
6.5 Visualisation des domaines magnétiques dans les composites magnétoélectriques microstructurés .....	83
6.6 Conclusion .....	88
<b>7. Realisation de l'inductance variable MEMS.....</b>	<b>89</b>
7.1 Design du dispositif.....	89
7.1.1 Empilement technologique.....	92
7.1.2 Design des masques.....	94
7.2 Fabrication .....	95
7.2.1 Process flow .....	95
7.2.2 Electrode inferieure .....	97
7.2.3 Dépôt du PZT.....	99
7.2.4 Electrode supérieure.....	101
7.2.5 Dépôt du matériau magnétique .....	102
7.2.6 Métallisation or .....	104
7.2.7 Libération .....	104
7.3 Tests électriques .....	106
7.3.1 Test automatiques .....	106

7.3.2 Caractérisation piézoélectrique du PZT .....	108
7.4 Caractérisation mécaniques des structures .....	113
7.4.1 Déformation des cantilevers et des poutres après la libération .....	114
7.4.2 Calcul des contraintes résiduelles.....	119
7.4.3 Tests sous tension électrique.....	127
7.5 Caractérisation magnétique .....	131
7.5.1 La structure en domaines statiques.....	131
7.5.2 Influence de l'actionnement piézoélectrique.....	136
7.6 Caractérisation RF.....	138
7.7 Conclusion .....	141
Conclusions et perspectives .....	143
References.....	145
Production scientifique .....	157



# Introduction

La miniaturisation et la complexification des circuits radioélectriques conventionnels approchent la limite au-delà de laquelle la diminution de la taille des composants électroniques sera de plus en plus difficile. Afin de maintenir la croissance des performances des dispositifs électroniques sans diminuer d'avantage la taille, il est possible d'utiliser des matériaux multifonctionnels qui peuvent créer de nouvelles fonctionnalités (approche More-than-Moore). Par matériaux multifonctionnels, on comprend les matériaux pouvant changer de propriétés physiques (magnétique, électrique, optique) sous l'action d'un stimulus extérieur (champ magnétique, champ électrique, lumière). Parmi les matériaux multifonctionnels, ceux possédant plusieurs ordres ferroïques attirent de plus en plus l'attention des chercheurs. On les appelle « matériaux multiferroïques ». Jusqu'à récemment, ce phénomène restait dans le domaine de la recherche théorique pour cause de la rareté et de l'effet de couplages très faibles des multiferroïques naturels (monophasique).

Cette situation a changé de façon spectaculaire ces dernières années pour deux raisons. Premièrement, les derniers progrès en matière de fabrication ont permis de réaliser des multiferroïques en couches minces. Deuxièmement, le développement de composites magnétoélectriques à base de matériaux magnétostrictifs et piézoélectriques a connu une évolution importante. Dans ces multiferroïques « artificiels », le couplage entre les ordres ferroïques peut être amélioré de plusieurs ordres de grandeur et permettre ainsi leur intégration dans des dispositifs de nouvelle génération. Le contrôle efficace de l'aimantation par le champ électrique peut ouvrir des possibilités exceptionnelles pour la réalisation de nouveaux composants électroniques tels que des mémoires non volatiles, capteurs, dispositifs RF accordables, récupérateurs d'énergie, etc.

L'objectif de cette thèse est dans un premier temps de développer de nouveaux composites magnétoélectriques à base de couches minces de FeCoB fortement magnétostrictif combinés à un matériau piézoélectrique de type PZT, avec un fort potentiel de contrôle des propriétés magnétiques par le champ électrique. Le développement de ces matériaux en corrélation aux aspects théoriques nous permettra de déterminer les paramètres clé afin d'obtenir le meilleur couplage magnétoélectrique. L'étude de ces composites a une portée à la fois physique et applicative. Du point de vue physique, ils constituent un système idéal pour étudier le couplage magnétoélastique et l'effet des contraintes sur les propriétés magnétiques des matériaux fortement magnétostrictifs. Du point de vue applicatif, ces composites sont les principaux candidats envisagés pour la réalisation des composants RF accordables comme par exemple les inductances variables. Cette perspective applicative sera en quelque sorte le fil rouge de notre discussion. La deuxième partie de cette thèse est consacrée au développement des inductances variables par des simulations et à travers la réalisation de dispositifs. Les simulations par la méthode des éléments finis nous a permis de valider un nouveau concept de moteur de contrainte à

base de PZT et de concevoir les dispositifs d'inductance variable (design des masques, choix des matériaux et les premiers prototypes...). En se basant sur les résultats de tests fonctionnels nous essayerons de définir des étapes critiques de la fabrication et de proposer des améliorations du procédés et du design actuel afin d'obtenir un composant industrialisable.

Ce manuscrit est organisé en sept chapitres.

Le *chapitre I* a pour vocation de donner un aperçu global de l'état de l'art des matériaux multiferroïques. Nous discuterons des limitations des multiferroïques naturels du point de vue applicatif. Les notions concernant le couplage magnétoélectrique seront introduites. Puis, un tour d'horizon des composites magnétoélectriques et de leurs applications sera effectué.

Le *chapitre II* présente les aspects théoriques des interactions mises en jeu dans un matériau magnétique soumis à une contrainte et ouvre le panorama des effets attendus dans les composites magnétoélectriques laminaires.

Le *chapitre III* décrit la réalisation de composites à fort couplage magnétoélectrique à base d'un substrat piézoélectrique et d'une couche mince de FeCoB. L'effet de la composition de la couche magnétique sur les performances magnétoélectriques est étudié. En outre, le cas spécifique d'une couche magnétique couplée antiferromagnétiquement est présenté pour montrer les différents modes de contrôle de l'aimantation dans les composites magnétoélectriques développés.

Le *chapitre IV* concerne les simulations numériques FEM d'un nouveau moteur de contraintes intégré qui va servir de base pour la réalisation du dispositif d'inductance variable. Nous effectuerons une étude mécanique complète qui permettra de valider le concept d'actionneur « push-pull » intégré et d'estimer les valeurs de contraintes générées sous tension électrique.

Le *chapitre V* est dédié aux caractérisations microstructurales des différentes couches minces utilisées lors de la fabrication du dispositif final. Dans la première partie, nous nous intéresserons aux propriétés mécaniques des matériaux pour pouvoir ajuster ces paramètres dans les simulations postérieures. La deuxième partie sera consacrée à la qualité de cristallisation du PZT.

Le début du *chapitre VI* est consacré à la description du microscope à effet Kerr d'observation haute résolution réalisé lors de cette thèse. L'accent est mis sur les composants optiques et les réglages adaptés à la visualisation par effet Kerr longitudinal d'objets relativement petits (quelques dizaines de microns). La deuxième partie est dédiée à l'observation directe de la rotation de l'axe facile d'aimantation des composites microstructurés développés lors de cette thèse et décrits plus tôt dans le *chapitre III*.

Le *chapitre VII* détaille la conception, la fabrication et la caractérisation de l'inductance variable MEMS intégrant les développements réalisés dans les chapitres précédents. Toute la chaîne de réalisation, à partir du design des masques et jusqu'aux tests fonctionnels, sera détaillée. Le concept de l'actionnement piézoélectrique proposé dans le *chapitre IV* sera validé grâce aux tests électriques et mécaniques. Dans ce chapitre, nous discuterons également de l'effet néfaste des contraintes résiduelles sur les performances de notre dispositif. Les étapes critiques de la fabrication seront identifiées.

Les conclusions des travaux effectués ainsi que les perspectives sur les développements futurs viendront clore ce mémoire de thèse.

Rapport GRATUIT!



# 1. Contexte

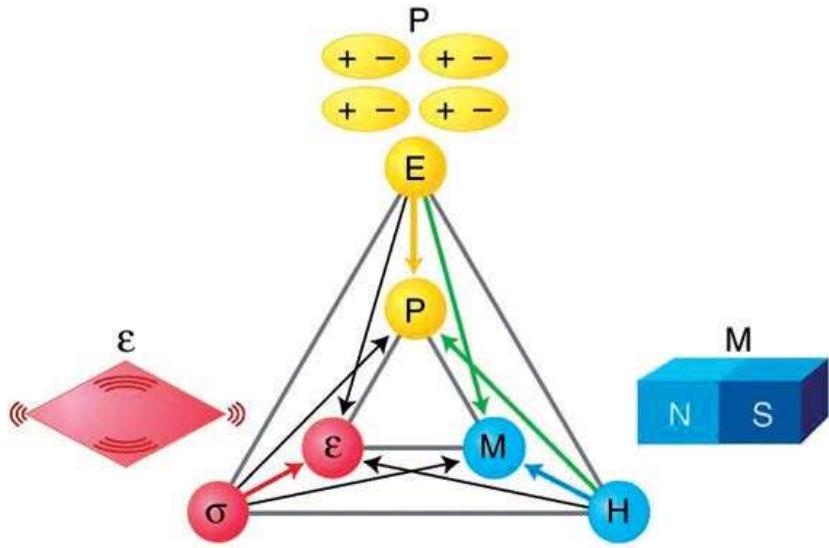
## 1.1. Contrôle du magnétisme par le champ électrique

Dans ce chapitre, nous essaierons dans un premier temps de donner une vue d'ensemble des matériaux qui présentent un effet magnétoélectrique, en commençant par les matériaux multiferroïques naturels. Ensuite, nous regarderons les différents composites utilisant le couplage mécanique de matériaux piézoélectriques et magnétostrictifs. Enfin, le contrôle du magnétisme par le champ électrique dans les couches ultra-minces sera présenté. Ce chapitre permettra de situer nos travaux et de définir les spécifications et les contraintes sur le développement des matériaux dans le but d'utiliser l'effet magnétoélectrique dans des dispositifs tels que les inductances variables, mémoires magnétiques, capteurs, récupérateurs d'énergie, etc.

### 1.1.1. Multiferroïques naturels

Les matériaux dit multiferroïques naturels (ou monophasique), c'est-à-dire qui possèdent des paramètres d'ordre multiple (soit ferroélectrique, (anti-)ferromagnétique, ou ferro-élastique etc.) (Figure 1) ont suscité l'intérêt de nombreux chercheurs jusqu'à présent. La coexistence de la ferroélectricité et du ferromagnétisme dans un même matériau, qui se traduit par l'apparition de l'effet magnétoélectrique, est une des propriétés les plus recherchées actuellement. L'utilisation extensive des matériaux magnétiques et ferroélectriques dans des applications diverses et variées suppose logiquement de combiner ferromagnétisme et ferroélectricité dans un même matériau, ce qui n'est pas trivial.

En 1888, Röntgen observa pour la première fois un état d'aimantation dans un oxyde sensible au champ électrique [Rontgen 1888]. Plus tard, l'effet inverse, c'est-à-dire le changement d'état de la polarisation diélectrique avec le champ magnétique fut mis en évidence par Wilson [Wilson 1905]. En 1894, Curie prédit de la magnétoélectricité intrinsèque dans certains cristaux en se basant sur la théorie des symétries (la notion de « l'effet magnétoélectrique » fut introduite par Debye) [Curie 1894]. Cet effet a été observé pour la premier fois dans l'oxyde de chrome  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  [Astrov 1960]. Un coefficient de couplage magnétoélectrique  $\alpha$  de 4.13 ps/m ( $\alpha = dM/dE$ ) a été alors obtenu dans ce matériau [Rado 1961]. Depuis, plus de cents matériaux magnétoélectriques ont été découverts ou synthétisés [Tokura 2006, Wang 2008, Spaldin 2005, Khomskii 2006, Eerenstein 2006, Cheong 2007, Ramesh 2007, Fiebig 2005].



*Figure 1. Diagramme d'interaction entre la ferroélectricité (la polarisation  $P$  et le champ électrique  $E$ ), le ferromagnétisme (l'aimantation  $M$  et le champ magnétique  $H$ ) et la ferroélasticité (la déformation  $\varepsilon$  et la contrainte  $\sigma$ ). Le couplage et le contrôle réciproque entre ces propriétés définissent le multiferroïsme.*

Les multiferroïques naturels les plus étudiés sont répertoriés dans le Tableau 1. Comme nous pouvons le voir, dans la plupart des matériaux, la coexistence des ordres ferroélectrique et ferromagnétique n'apparaît qu'à basse température, ce qui rend difficile leur utilisation. Le seul matériau possédant un couplage magnétoélectrique à température ambiante est le BiFeO<sub>3</sub> (BFO) [Teague 1970]. Ce ferrite de bismuth appartient à la famille des pérovskites et présente une polarisation électrique très importante (d'autant plus importante lorsqu'elle est en couche mince [Wang J. 2003]). Malheureusement, le BFO massif est un ferromagnétique faible (son moment magnétique n'est que de  $\sim 0.01 \mu_B/\text{m.u.}\{\text{maille unitaire}\}$ ). Néanmoins, une augmentation du moment magnétique a pu être observée pour le BFO en couche mince épitaxiée et contrainte ( $1\mu_B/\text{m.u.}$  [Wang J. 2003]). Aujourd'hui, le BFO est considéré comme un multiferroïque naturel envisagé pour les dispositifs spintroniques (mémoires). Gardons cependant à l'esprit que l'effet magnétoélectrique reste faible pour cette famille de multiferroïques.

La raison principale pour laquelle les multiferroïques naturels sont rares et possèdent un couplage assez faible est l'incompatibilité intrinsèque entre la ferroélectricité et le ferromagnétisme. En effet, du point de vue de la symétrie, la ferroélectricité exige une brisure de symétrie d'inversion spatiale figée tout en ayant une symétrie d'inversion temporelle variable.

L'apparition d'une polarisation électrique spontanée est impossible jusqu'à ce que les distorsions de la phase hautement symétrique para-électrique soient suffisantes pour briser cette symétrie. La direction de la polarisation doit être différente des directions cristallographiques.

Tableau 1. Matériaux multiferroïques naturels.

Matériau	Structure cristalline	Ions magnétiques	Mécanisme de multiferroïsme	Polarisation, $\mu\text{C}/\text{cm}^2$	Transition ferroélectrique, K	Transition magnétique, K	Ref.
$RFe_3(BO_3)_4$ ( $R=Gd, Tb, \text{etc.}$ )	R32	$R^{3+}, Fe^{3+}$	groupe ferroélectrique BO <sub>3</sub>	9 (à 40kOe)	38	37	[Haiding 2008]
$Pb(B_{1/2}B'_{1/2})O_3$ ( $B=Fe, Mn, Ni, Co;$ $B'=Nb, W, Ta$ )	Pm3m	B'	B ions - ferroélectriques, B' ions - magnétiques	65	385	143	[Venevtsev 1994]
$BiFeO_3$	R3c	Fe <sup>3+</sup>	paires isolées des sites A	P[001] 75	1103	643	[Wang J. 2004, Lebeugle 2007]
$BiMnO_3$	C2	Mn <sup>3+</sup>	paires isolées des sites A	20	800	100	[Son 2008]
$Bi(Fe_{0.5}Cr_{0.5})O_3$	-	Cr <sup>3+</sup>	paires isolées des sites A	60	-	-	[Dae 2007]
$(Y, Yb)MnO_3$	Hexagonal P6 <sub>3</sub> cm	Mn <sup>3+</sup>	ferroélectricité géométrique	6	950	77	[Van Aken 2004]
$HoMnO_3$	Hexagonal P6 <sub>3</sub> cm	Mn <sup>3+</sup>	ferroélectricité géométrique	5.6	875	5	[Lorenz 2005]
$InMnO_3$	Hexagonal P6 <sub>3</sub> cm	Mn <sup>3+</sup>	ferroélectricité géométrique	2	500	50	[Belik 2009]
$YCrO_3$	Monoclinic P21	Cr <sup>3+</sup>	ferroélectricité géométrique (?)	2	475	140	[Ramesha 2007]
$Y(Ho)MnO_3$	Orthorhombic	Mn <sup>3+</sup>	antiferromagnétisme de type E	100	28	28	[Lorenz 2004]
$Pr_{1-x}Ca_xMnO_3$	Pnma	Mn <sup>3+, 4+</sup>	ordre de charge	4.4	230	230	[Efremov 2004]
$Pr(Sr_{0.1}Ca_{0.9})_2Mn_2O_7$	Am2m	Mn <sup>3+, 4+</sup>	ordre de charge/orbital	-	-	320	[Tokunaga 2006]
$LuFe_2O_4$	R3̄m	Fe <sup>2+, 3+</sup>	frustration de charge	26	330	330	[Ikeda 2005]
$Ca_3Co_{2-x}Mn_xO_7$	R3c	Co <sup>2+, 4+</sup>	état de charge ordonné et magnétostriction	90	16.5	16	[Choi 2008]
$RMn_2O_5$ ( $R=Y, Tb, Dy, \text{etc.}$ )	Pbam	Mn <sup>3+, 4+</sup>	état de charge ordonné et magnétostriction	40	38	4	[Hur 2004]
$(Fe, Mn)TiO_3$	R3c (high-pressure phase)	Fe <sup>3+, 4+</sup>	ferromagnétisme faible induit par la polarisation	-	-	-	[Goodenough 1967]
$DyFeO_3$	Pbnm	Fe <sup>3+, 4+</sup> , Dy <sup>3+</sup>	magnétostriction entre ions antiferromagnétiques Dy et Fe	0.4 (à 90 kOe)	3.5	4	[Tokunaga 2008]

A l'opposé, la brisure de la symétrie temporelle est essentielle pour l'établissement du magnétisme (ferro ou antiferro) et de l'ordre de spin. De plus, pour les matériaux magnétiques conventionnels, l'invariance de symétrie d'inversion spatiale est usuelle.

Parmi les 233 groupes magnétiques de Shubnikov, seuls 13 groupes (1, 2, 2', m, m', 3, 3m', 4, 4m'm', m'm2', m'm'2', 6 and 6m'm') permettent l'apparition simultanée d'une polarisation électrique et d'une aimantation. Ces restrictions cristallographiques sont des arguments supplémentaires qui peuvent justifier la rareté des multiferroïques naturels.

Malheureusement, l'effet magnétoélectrique intrinsèque dans les matériaux monophasiques est très faible et n'apparaît généralement qu'à basse température, ce qui rend difficile l'utilisation de ces matériaux. La réalisation des composites magnétoélectriques, basés sur le couplage extrinsèques des phases ferroélectriques et magnétostrictives, a permis d'obtenir un effet magnétoélectrique «géant», qui est plus intéressant du point de vue applicatif.

### 1.1.2. Composites massifs ou macroscopiques

Dans les composites magnétoélectriques, ce ne sont pas les propriétés de la phase intrinsèque du matériau qui régissent l'effet magnétoélectrique, mais l'interaction et le couplage entre deux phases extrinsèques, respectivement ferroélectrique et ferromagnétique. En 1972, van Suchtelen décrivit la magnétoélectricité comme une propriété résultante de la multiplication des effets relatifs à chaque phase [Suchtelen 1972]. Par exemple, l'effet magnétoélectrique peut être le résultat d'une combinaison additive de l'effet magnétostrictif (effet magnétique/mécanique) de la phase magnétique et de l'effet piézoélectrique (effet mécanique/électrique) de la phase ferroélectrique :

$$\text{Effet magnétoélectrique direct} = \frac{\text{magnétique}}{\text{mécanique}} \times \frac{\text{mécanique}}{\text{électrique}},$$

$$\text{Effet magnétoélectrique inverse} = \frac{\text{électrique}}{\text{mécanique}} \times \frac{\text{mécanique}}{\text{magnétique}}.$$

Le couplage s'effectue à travers des interactions élastiques. Une multitude de composites magnétoélectriques fut développé depuis, présentant un effet magnétoélectrique de plusieurs ordres de grandeur supérieurs à ceux des multiferroïques naturels [Fiebig 2005].

Depuis la formulation de van Suchtelen, de nombreux composites ont été proposés, réalisés et optimisés [Nan 2008]. Parmi eux, les composites céramiques à base de ferroélectriques de type  $\text{BaTiO}_3$  (BTO) ou  $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$  (PZT) ont attiré l'attention depuis les années 2000 en combinaison avec l'alliage à magnétostriction géante  $\text{Tb}_{1-x}\text{Dy}_x\text{Fe}_2$  (Terfenol-D) [Jiles 1994]. L'effet géant magnétoélectrique géant (supérieure à 1 V/cm·Oe) fut d'abord prédit théoriquement [Nan 2001] dans ces composites puis fut obtenu expérimentalement [Ryu 2001]. Récemment, plusieurs types de composites présentant différents types de connectivité (par exemple des particules dans une matrice 0-3, des composites laminaires 2-2 ou encore des fibres dans une matrice 1-3) ont été présentés [Srinivasan 2010]. Le Tableau 2 regroupe les données concernant les composites les plus performants pour différents types de connectivité.

Dans la littérature, on trouve également beaucoup d'essais de combinaison de céramiques d'oxydes ferroélectriques et d'oxydes magnétiques dans le but d'obtenir un grand coefficient magnétoélectrique [Ma 2011]. En général, ces composites sont obtenues en utilisant des techniques de cofrittage. Malheureusement, l'effet magnétoélectrique dans ce type de composites est un ordre de grandeur inférieur aux prédictions (le coefficient magnétoélectrique ne dépasse pas 1 V/Oe·cm). Ces faibles valeurs sont dues principalement à des problèmes de synthèse tels que la diffusion atomique interfaciale, les réactions chimiques entre les phases, la discordance des coefficients de dilatation thermique pendant la synthèse à haute température (frittage), etc. D'autre part, la présence de la phase ferromagnétique (qui est en générale conductrice) dans les composites de type 0-3 peut entraîner la dégradation de l'isolation du composite et des problèmes de fuites électriques. Ces problèmes de fuites peuvent être éliminés dans la configuration 2-2 (composite laminaire). Dans ce cas, la phase ferrite peut même jouer le rôle d'électrodes. Toutefois, la réalisation de composites céramiques laminaires reste difficile avec des points critiques similaires aux composites de type 0-3 (interdiffusion, réaction entre les phases, couplage d'interface faible).

Parmi les composites massifs, ceux qui utilisent des alliages magnétostrictifs (Terfenol-D, Metglas, etc.) montrent un effet magnétoélectrique plus fort. La plupart de ces composites présentés dans la littérature sont basés sur le Terfenol-D et différents types de matériaux piézoélectriques. Le coefficient magnétoélectrique dans le régime non-résonant peut atteindre plusieurs V/Oe·cm. Grâce à l'effet d'auto-amplifications pour les composites exploitants la fréquence de la résonance électromécanique, il est possible d'obtenir des coefficients magnétoélectriques de plusieurs  $100^{\text{aines}}$  de V/Oe·cm. Cependant, les composites à base de Terfenol-D ne sont pas utilisables pour les applications à faible champ magnétique et à haute fréquence du fait d'un champ coercitif trop élevé et d'une perméabilité très faible. En raison de cela, des matériaux magnétiques doux mais moins magnétostrictifs (comme Metglas, FeCo, Ni[Mn-Ga], etc.) peuvent être utilisés. Par exemple, les alliages de type FeBSiC

(Metglas) ont une perméabilité relative qui peut atteindre 40000 et une constante de magnétostricion de 20-30 ppm sous un champ de saturation de 10 Oe. Il en résulte un coefficient piézomagnétique plus élevé que pour le Terfenol-D (autrement dit une sensibilité au champ magnétique plus grand) [Glasmachers 2004, Dong X. 2009]. Ces propriétés ont permis d'obtenir des coefficients magnétoélectriques plus importants dans les composites laminaires, notamment pour les rubans amorphes de Metglas couplés avec des composites piézoélectriques à base de fibres monocrystallines de PZT dans une matrice polymère. En régime quasi-statique (1 Hz), ce composite a montré une réponse magnétoélectrique de 22 V/Oe·cm et jusqu'à plusieurs 100<sup>aïnes</sup> de V/Oe·cm à la fréquence de la résonance [Dong 2006].

*Tableau 2. Composites magnétoélectriques massifs et leurs coefficients magnétoélectriques.*

ME Composite <sup>[a]</sup>	Connectivité	ME Coefficient mV/Oe·cm	Fréquence <sup>[b]</sup>	Ref.
<b>Composites céramiques</b>				
<b>CFO/BTO</b>	0-3	50	$f_r$	[Van Run 1974]
<b>NZFO/PZT</b>	0-3	155	1 kHz	[Islam 2008]
<b>NCZF/PZT/NCZF</b>	2-2	782	1 kHz	[Islam R. 2008]
<b>Composites céramique/alliage</b>				
<b>Terfenol-D/PMT-PT</b>	2-2	$33 \cdot 10^3$	95 kHz	[Wang Y. 2008]
<b>Terfenol-D/PVDF</b>	2-2	$1.43 \cdot 10^3$	1 kHz	[Mori 2002]
<b>NiMnGa/PVDF</b>	2-2	580	1 kHz	[Chen 2008]
<b>FeBSiC/PZT-fiber</b>	2-1	$22 \cdot 10^3 / 750 \cdot 10^3$	$1 \text{ Hz} / f_r$	[Dong 2006]
<b>FeBSiC/PVDF</b>	2-2	$22 \cdot 10^3$	20 Hz	[Fang 2009]
<b>FeCoSiB/AlN</b>	2-2	$3 \cdot 10^3 / 737 \cdot 10^3$	$1 \text{ Hz} / f_r$	[Greve 2010]
<b>Composites basés sur des polymères</b>				
<b>Terfenol-D-PVDF/PZT-PVDF</b>	2-2	$80 / 3 \cdot 10^3$	$1 \text{ kHz} / f_r$	[Cai 2004]
<b>Terfenol-D-epoxy/PZT</b>	1-3	$500 / 18 \cdot 10^3$	$100 \text{ Hz} / f_r$	[Ma 2007]
<b>CFO/P(VDF-TrFE)</b>	0-3	40	5 kHz	[Zhang 2009]
<b>Metglas/Cross-Linked P(VDF-TrFE)</b>	2-2	$17.7 / 383 \cdot 10^3$	$20\text{Hz} / 65\text{kHz}$ ( $f_r$ )	[Jin 2011]

<sup>[a]</sup> CFO:  $\text{CoFe}_2\text{O}_4$ , NZFO:  $\text{Ni}_{0.8}\text{Zn}_{0.2}\text{Fe}_2\text{O}_4$ , NCZF:  $\text{Ni}_{0.6}\text{Cu}_{0.2}\text{Zn}_{0.2}\text{Fe}_2\text{O}_4$ , PMN-PT:  $\text{Pb}(\text{Mg},\text{Nb})\text{O}_3-\text{PbTiO}_3$ ,

PVDF: polyvinylidene-fluoride, P(VDF-TrFE): poly(vinylidenefluoride-trifluoroethylene).

<sup>[b]</sup>  $f_r$  – la fréquence de la résonance électromécanique.

Grâce à ses propriétés ultra douces et compatibles avec les hautes fréquences, le Metglas est également un bon matériau pouvant être incorporé comme troisième phase dans les composites Terfenol-D/matériaux piézoélectrique. Il permet

d'augmenter la perméabilité effective du composite, qui se traduit par l'augmentation du coefficient pièzomagnétique et en conséquence une meilleure réponse magnétoélectrique à faible champ magnétique [Park 2010].

Aujourd'hui on trouve de plus en plus de travaux sur les composites magnétoélectrique à base de polymères. L'utilisation de matrices fortement élastiques permet d'améliorer les propriétés mécaniques des composites, tout en gardant un niveau de magnétoélectricité intéressant.

Les composites de type 0-3 avec des particules magnétiques (CFO, NiFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>Ni, Terfenol-D, etc.) implantées (dispersées) dans une matrice polymère (PVDF, Polyuréthane, etc.) provoquent l'intérêt des chercheurs du fait de traitement facilité. Cependant, les effets obtenus ne dépassent pas ceux des composites céramiques similaires. Par exemple, un composite constitué d'une matrice de copolymère P(VDF-TrFe) incorporant des particules de CFO possède un coefficient magnétoélectrique autour de 40 mV/Oe·cm [Zhang 2009].

Récemment, un composite fait à partir d'une matrice de Terfenol-D/époxy (TDE) incorporant un cylindre de PZT céramique a été réalisé [Ma 2008]. Les résultats expérimentaux ont démontré que dans cette configuration le couplage magnétoélectrique est plus important que dans les autres composites basés sur les polymères (Tableau 2). L'importance du rapport d'aspect pour les cylindres a été discutée. Les auteurs supposent qu'un rapport d'aspect critique de 10 existe dans ce type de composite et que cela ouvre la possibilité d'utiliser des fibres monocrystallines de PZT pour réaliser des micro-composites à fort effet magnétoélectrique. Par ailleurs, les mesures de fatigue effectuées montrent une pérennité remarquable de la réponse magnétoélectrique dans ce type de composite.

### 1.1.3. Heterostructures en couches minces

Dans le paragraphe précédent, nous avons listé les composites massifs laminaires nécessitant un couplage mécanique souvent réalisé à travers des colles. La présence de ces couches de collage affecte fortement la réponse magnétoélectrique. La fatigue possible de ces adhésifs et les inhomogénéités d'épaisseur peuvent dégrader le couplage mécanique et abaisser considérablement les performances de ces composites. Comme alternative, il est plus intéressant de déposer directement le matériau magnétique sur le substrat piézoélectrique ou même de réaliser toute la structure avec des procédés de dépôt pour s'affranchir de l'utilisation de couches adhésives [Tiercelin 2009]. Le dépôt direct de Ni (par électrolyse) sur le PZT céramique a ainsi permis d'améliorer les performances du composite Ni/PZT/Ni avec un coefficient magnétoélectrique de 33 V/Oe·cm à la résonance [Pan 2008].

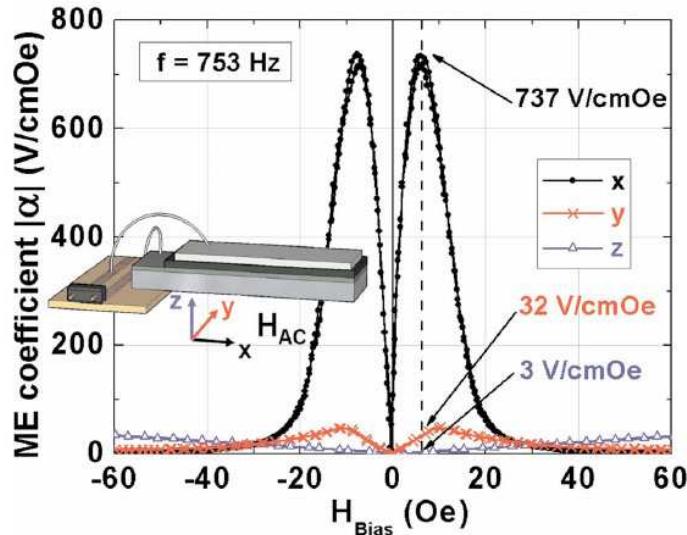


Figure 2. Les valeurs du coefficient magnétoélectrique d'un cantilever constitué de 1.75  $\mu\text{m}$  de CoFeBSi et 1.8  $\mu\text{m}$  de AlN à la résonance électromécanique ( $f_r = 753 \text{ Hz}$ ). La réponse magnétoélectrique est obtenue pour un champ magnétique appliqué suivant trois directions. On observe une anisotropie importante de cette réponse. La valeur maximale de 737 V/cm·Oe correspond à la configuration parallèle.

Les structures de type cantilever sont également très attractives de nos jours car elles sont relativement facile à réaliser en technologie MEMS et offrent une flexibilité au niveau du design (adaptation de la résonance). Récemment, le groupe de Quandt a réalisé un composite laminaire en couches minces avec AlN (1.8  $\mu\text{m}$ ) et FeCoSiB (1.75  $\mu\text{m}$ ) sur un substrat de Si par pulvérisation cathodique [Greve 2010]. Le cantilever obtenu mesurant 20x2 mm<sup>2</sup> et ayant une épaisseur totale de 140  $\mu\text{m}$  (silicium inclus), manifeste un coefficient magnétoélectrique record de 737 V/Oe·cm à la résonance et 3.1 V/Oe·cm à 100 Hz (Figure 2). Ces valeurs sont parmi les plus élevées à l'heure actuelle.

## 1.2. Applications

Actuellement, ce ne sont que des composites massifs qui possèdent un effet magnétoélectrique exploitable à température ambiante. Cet effet est supérieur de plusieurs ordres de grandeur à celui des multiferroïques naturels ou monophasiques.

Les performances des composites magnétoélectriques ouvrent une multitude de possibilités pour des applications technologiques. Parmi lesquelles, il faut lister : les capteurs de champs magnétiques (magnétomètres, capteurs de courant ...), les composants RF agiles (filtres, antennes, oscillateurs ...), les transducteurs (moteurs sans courant, récupération d'énergie ...), etc. Les composites magnétoélectriques peuvent être utilisés en tant que détecteur du champ magnétique statique ou

alternatif. Ils peuvent convertir un signal magnétique en signal électrique et vice versa. A la fréquence de résonance, on peut convertir un signal magnétique RF en signal électrique RF. Grâce au décalage de la fréquence de résonance ferromagnétique sous l'effet du champ statique électrique (et non plus magnétique), il est possible de réaliser des composants RF fortement agiles (tels que des inductances variables) et pilotables en tension électrique, c'est-à-dire ne consommant aucune puissance. La nature hystéritique de l'effet magnétoélectrique permet aussi de réaliser des mémoires magnétiques (MRAM) contrôlables en tension (écriture électrique/lecture magnétique), sans avoir besoin d'appliquer un champ magnétique. Dans cette partie nous allons citer quelques exemples de réalisations pour différents types d'applications.

### 1.2.1. Capteurs

Le principe de la détection magnétique par un composite magnétoélectrique est simple. Le champ magnétique extérieur provoque des contraintes dans la phase magnétostrictive du composite. Ces contraintes sont transférées vers la phase piézoélectrique par le couplage mécanique, ce qui résulte en la génération des charges électriques et donc en une tension électrique aux bornes du composite. Plus le coefficient magnétoélectrique est grand pour le composite, meilleure est la sensibilité du capteur.

#### ***Champ magnétique statique***

Les champs magnétiques statiques faibles, comme le champ magnétique terrestre ( $\sim 0.5$  Oe), peuvent être détectés grâce à l'effet magnétoélectrique inverse [Dong S. 2006]. Dans cet exemple, le composite laminaire Terfenol-D/PZT/Terfenol-D est sensible aux variations faibles d'un champ magnétique statique ( $H_{dc}$ ) sous excitation alternative ( $H_{ac}$ ). La sensibilité d'un tel composite peut atteindre quelques 100 nT à basse fréquence et même 10 nT dans le mode résonant.

La Figure 3 montre la limite de sensibilité de ce composite. On voit qu'il est possible de détecter des variations de l'ordre de 1 nT ou 0.1 mOe avec une réponse électrique mesurable de l'ordre du  $\mu$ V.

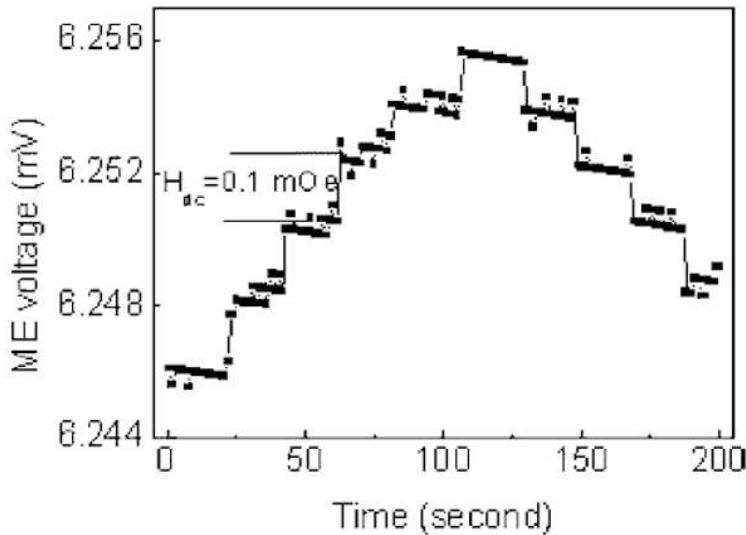


Figure 3. Réponse magnétoélectrique au champ magnétique statique de faible amplitude avec un composite Terfenol-D/PZT/Terfeno-D en mode résonant ( $f_0 = 84 \text{ kHz}$ ,  $H_{ac} = 71 \text{ mOe}$ ).

### **Champ magnétique alternatif**

Il est également possible de réaliser des capteurs de champ magnétique alternatif très sensible en utilisant des composite à grand coefficient magnétoélectrique. En 2006, un groupe de chercheur de Virginia Tech a présenté la détection d'un champ magnétique de l'ordre du pico-Tesla ( $10^{-12} \text{ T}$ ) faite grâce à un composite trimorphe Terfenol-D/PZT/Terfeno-D dans une configuration push-pull [Zhai 2006]. Le spectre de bruit de ce composite est présenté dans la Figure 4. Une sensibilité autour de  $2 \cdot 10^{-11} \text{ T/Hz}^{1/2}$  à 1 Hz est meilleure par rapport aux capteurs GMR (magnétorésistance géante) mais n'atteint pas la sensibilité des SQUID (Superconducting Quantum Interference Device). Dans tous les cas, ce genre de capteur offre l'avantage unique d'être entièrement passif, c'est-à-dire autonome en énergie, (pas besoin d'alimentation en courant).

En utilisant la forte anisotropie de la réponse des composites magnétoélectriques laminaires (grande dans le plan et petite hors du plan), il est possible de réduire le planché de bruit thermique. Pour cela, il suffit de connecter en série deux composites laminaires travaillant dans des modes opposés (transverse/perpendiculaire). Cette méthode a été utilisée par Israel et al. pour soustraire l'effet des fluctuations thermiques sur la réponse magnétoélectrique de leur capteur [Israel 2010]. Le dispositif final était capable de détecter les champs magnétiques inférieurs à 200 pT.

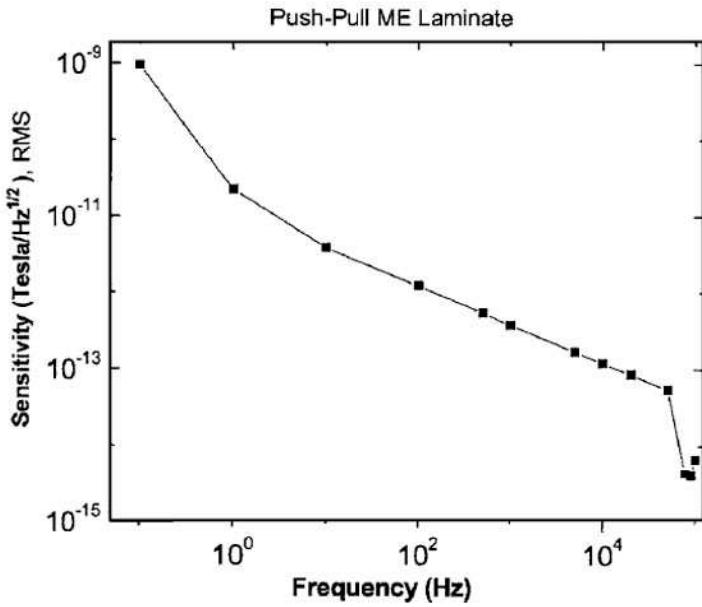


Figure 4. Sensibilité mesurée à température ambiante [en Tesla/Hz<sup>1/2</sup>] pour le composite trimorphe Terfenol-D/PZT/Terfeno-D de type push-pull. La limite de sensibilité à 1 Hz a été estimée autour de  $2 \cdot 10^{-11}$  Tesla/Hz<sup>1/2</sup> et  $2 \cdot 10^{-15}$  Tesla/Hz<sup>1/2</sup> à 78 kHz.

### Détection du courant

En sus, les composites magnétoélectriques sont de bons candidats pour la détection du courant électrique. Le courant électrique *ac* ou *dc* qui passe dans un fil crée un champ magnétique vortex autour de ce fil. A cet égard, la forme annulaire est une configuration du composite magnétoélectrique idéale pour la détection du champ vortex et donc du courant électrique. Un composite annulaire fabriqué par Dong et al. utilise des matériaux polarisés de façon circulaire. La réponse magnétoélectrique atteint 5.5 V/cm·Oe à 1 kHz pour des courants aussi petits que 0.1 µA (ce qui correspond à un champ magnétique vortex de 6 pT).

### 1.2.2. Transducteurs et gyrateurs

Les transducteurs et gyrateurs magnétoélectriques ont des applications importantes dans la conversion de puissance. Un gain de tension élevé a été obtenu dans un composite laminaire à base de Terfenol-D et PZT [Dong 2004]. En appliquant une tension alternative  $V_{in}$  aux bornes d'une bobine qui entoure le composite (cela génère un courant  $I_{in}$  et donc un champ magnétique  $H_{ac}$ ), il a été possible d'augmenter fortement la tension de sortie  $V_{out}$  à proximité de la résonance électromécanique dans

un rapport supérieur à 100. La Figure 5 montre le gain en tension du composite proposé dans [Dong S. 2004] en fonction de la fréquence d'excitation pour deux champs magnétiques de bias appliqués. Un gain maximal de 260 a été trouvé à la fréquence de résonance 21.3 kHz. Le Terfenol-D ne manifestant un coefficient magnétoélectrique élevé que pour des champs magnétiques relativement forts, on observe une forte dépendance de ce gain avec le champ de polarisation statique (bias).

De manière analogique, les composites magnétoélectriques agissent comme des gyrateurs  $I-V$  avec un coefficient de gyration  $G$  élevé [Dong S. 2006]. En 2006 Dong et al. ont présenté un gyrateur magnétoélectrique qui possède un coefficient  $G$  autour de 2500 V/A. Un gyrateur inversé ( $V-I$ ) est également envisageable : la sollicitation électrique du piézoélectrique crée une tension en sortie sur la bobine grâce aux variations d'aimantation induites dans le matériau magnétique.

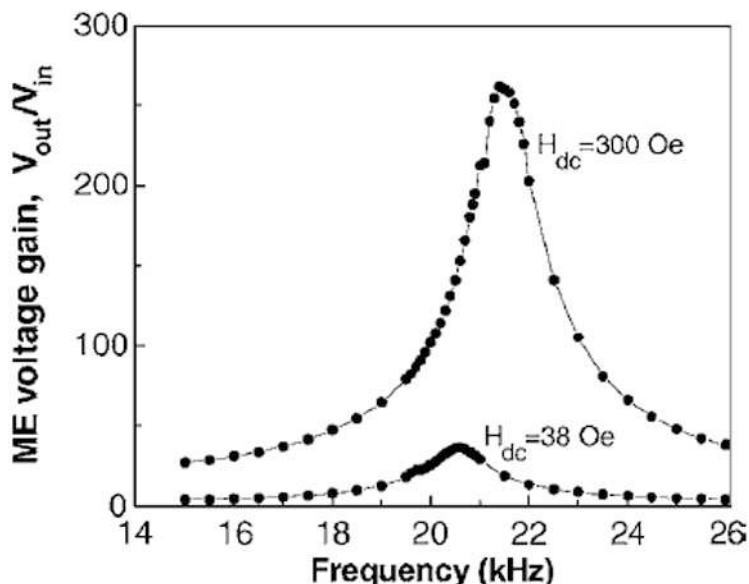


Figure 5. Gain de tension du composite laminaire magnétoélectrique Terfenol-D/PZT/Terfenol-D en fonction de la fréquence d'excitation et du champ magnétique de polarisation statique (bias).

### 1.2.3. Composants RF

Le couplage magnétoélectrique dans les structures laminaires ferromagnétique/ferroélectrique a également un intérêt à haute fréquence pour la réalisation de fonctions RF [Srinivasan 2010]. Toutefois, son utilisation se réduit ici principalement au cas des ferrites magnétiques, ce qui conduit à des couplages faibles du fait d'une magnétostriction fortement modérée devant celle du Terfenol-D (ce dernier étant métallique, il ne peut être utilisé à haute fréquence du fait de l'effet de peau). Les effets observés ouvrent la possibilité pour la réalisation de composants RF

accordables par le champ électrique. C'est un avantage important devant la consommation ou la taille des dispositifs car on peut s'affranchir de la consommation en courant ou de l'utilisation d'aimants permanents nécessaires à la création du champ magnétique de polarisation dans le cas de l'accordabilité conventionnelle par le champ magnétique. Le champ électrique appliqué sur le composite génère des contraintes dans la phase piézoélectrique modifiant ici l'anisotropie de la phase magnétique), ce qui se traduit par le décalage de la fréquence de résonance gyromagnétique de la phase magnétique [Bichurin 2002]. L'intensité de l'effet est mesurée en décalage de fréquence ( $\delta f_E$ ) en spectrométrie fréquentielle ou de champ ( $\delta H_E$ ) par la technique dite de « résonance ferromagnétique » (FMR).

La Figure 6 montre un résultat de mesure typique en large bande du coefficient de réflexion ( $S_{11}$ ) d'une ligne microruban (microstrip) chargée avec un composite magnétoélectrique [Fetisov 2006]. Un grenat d'yttrium et de fer (YIG) à faible perte à haute fréquence est utilisé en tant que phase magnétique. Des monocristaux de PMN-PT ou PZT peuvent être utilisés comme phase ferroélectrique. L'échantillon est constitué d'une couche de 15 µm de YIG déposé sur un substrat de grenat de gadolinium et de gallium [GGG] collée sur une plaque de PZT de 0.5 mm. La puissance injectée dans la ligne microruban génère un champ magnétique RF qui est fortement absorbé à la fréquence de résonance gyromagnétique du YIG. Cette dernière peut être ajustée en modifiant la tension aux bornes de l'élément piézoélectrique. On mesure ici un coefficient de couplages  $A = \delta f_E/E$  de l'ordre de  $3 \text{ MHz cm}^{-1} \text{ kV}^{-1}$ .

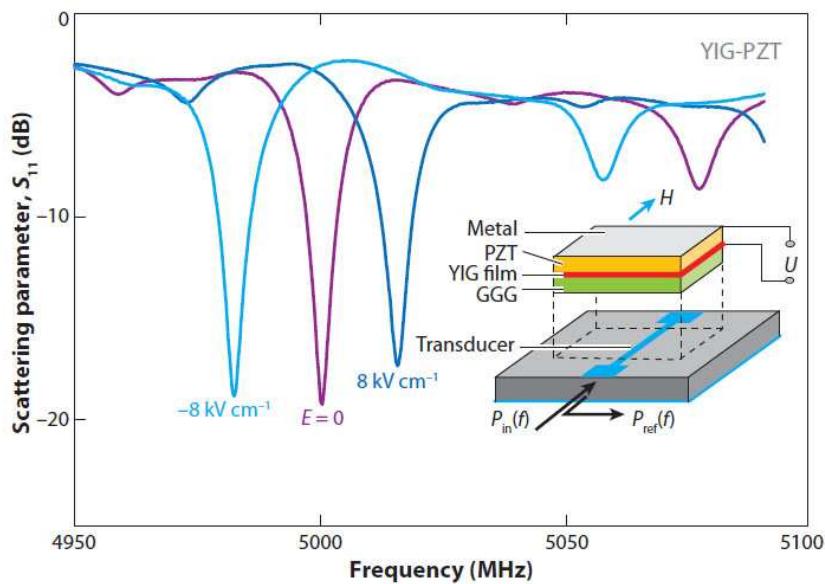


Figure 6. Coefficient de réflexion ( $S_{11}$ ) en fonction de la fréquence d'une ligne microruban chargée par un composite magnétoélectrique de type YIG/PZT. Les pics d'absorption du signal RF correspondent à la résonance gyromagnétique du YIG qui peut être accordée grâce à la tension électrique appliquée sur le PZT par effet magnétostrictif inverse.

Des mesures similaires ont été effectuées avec un spectromètre FMR et une cavité RF de type réflexion [Shastry 2004]. Les résultats obtenus pour des couches de YIG de 1-110 µm d'épaisseur couplées à PMN-PT ont montré des coefficients  $A$  plus élevés jusqu'à 15 MHz cm<sup>-1</sup> kV<sup>-1</sup> (ce qui est équivalent à  $A = \delta H_E/E = 1-5$  Oe cm<sup>-1</sup> kV<sup>-1</sup>). Les mêmes tendances ont été observées pour des résonateurs hybrides (exploitant également la résonance diélectrique) YIG/BaSrTiO<sub>3</sub> (BST) [Ustinov 2006]. Depuis 2006, de nombreux composites laminaires réalisés avec des piézoélectriques couplés à des ferrites de structure spinelle [Liu 2009], ferrites hexagonales [Song 2009] ou quelques alliages ferromagnétiques [Pettiford 2008] ont été étudiés. Un coefficient  $A$  de 108 Oe cm<sup>-1</sup> kV<sup>-1</sup> a été obtenu dans une bicouche de Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> et PZN-PT.

Les effets décrits ci-dessus ont permis de réaliser des dispositifs RF « macroscopiques » accordables grâce à la tension électrique tels que des résonateurs, des filtres, des déphasateurs, des lignes à retard, des atténuateurs et des antennes peu consommant en énergie. Un exemple de dispositif RF magnétoélectrique est présenté dans la Figure 7. Ce filtre passe-bande est constitué d'un plan de masse, de lignes microrubans d'entrée/sortie et d'un composite YIG/PZT [Tatarenko 2006].

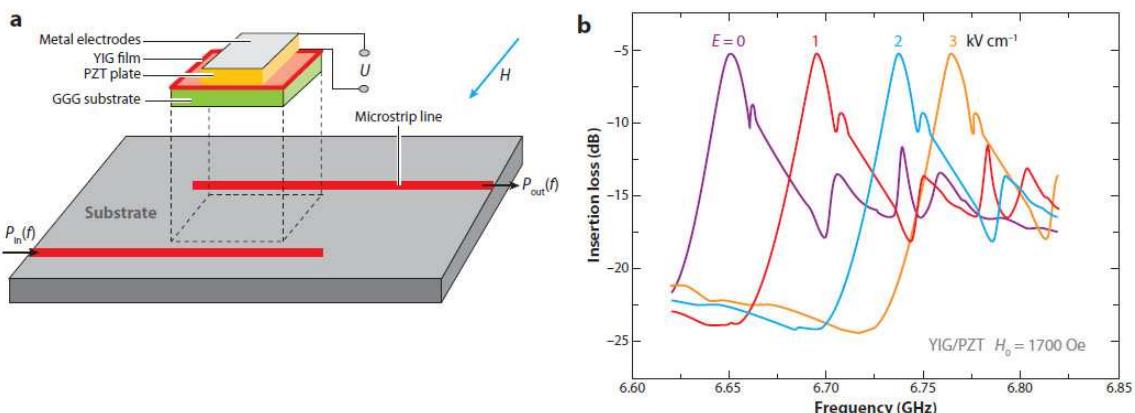


Figure 7. (a) Un filtre passe-bande magnétoélectrique. Une bicouche de YIG (de 110 µm d'épaisseur sur un substrat de GGG) et une plaque de PZT. (b) Les profils de pertes d'insertion pour les différents champs électriques appliqués.

La puissance est couplée entre l'entrée et la sortie à travers le composite magnétoélectrique avec un maximum à la résonance gyromagnétique du YIG. La dépendance en fréquence des pertes d'insertion en fonction du champ électrique appliqué montre l'accordabilité du filtre (Figure 7b). Le décalage de 120 MHz pour le  $E = 3$  kV cm<sup>-1</sup> correspond à 2% de la fréquence centrale du filtre et est 40 fois plus que la largeur à mi-hauteur (ou LMH) du YIG pur.

Au-delà de la génération des composants historiques hyperfréquence à grenat ou à ferrites, il n'existe quasiment pas de réalisations en version « intégrée » parce que la transition vers les couches minces ne s'est pas faite pour les matériaux magnétiques (contrairement aux diélectriques). Cette tendance tend à s'inverser depuis une petite dizaine d'années avec l'émergence des « MMIC » ou Microwave Monolithic Integrated

Devices qui poussent le développement de nouvelles couches minces ferromagnétiques fortement résistives. On compte aujourd’hui parmi ces dernières des versions magnétostrictives ultra douces très prometteuses. Ce sera un des axes de travail de cette thèse que nous détaillerons plus tard.

### 1.2.4. Mémoires

Très récemment, des concepts de mémoires magnétiques exploitant l’effet magnétoélectrique ont été proposés [Novosad 2000, Scott 2007, Bibes 2008, D’Souza 2011]. Les mémoires magnétiques actuelles sont basées sur des jonctions tunnel magnétiques (JTM) dont on exploite la magnétorésistance géante (GMR) : deux couches ferromagnétiques séparées par une barrière diélectrique. La résistance de la structure dépend fortement de l’orientation relative de l’aimantation des couches ferromagnétiques ce qui détermine les états «0» et «1» de la mémoire. Cependant, l’écriture de ces états, c’est-à-dire le renversement de l’aimantation, nécessite de consommer beaucoup de puissance afin de faire passer un courant électrique dans les lignes d’adressage pour générer le champ magnétique d’écriture [Tehrani 1999]. Une solution pour diminuer cette consommation est d’utiliser l’effet de « spin-torque » pour faire basculer l’aimantation de la couche libre par injection d’un courant direct dans la jonction, ce qui permet de s’affranchir du champ magnétique d’écriture. Des mémoires utilisant cet effet sont actuellement en développement [Huai 2008] et pour le moment, la densité de courant critique reste encore très élevée dans les prototypes réalisés [Kanine 2008].

Une alternative prometteuse qui pourrait diminuer considérablement la consommation des mémoires magnétiques est la manipulation de la direction de l’aimantation par le champ électrique. Ce concept de mémoire magnétoélectrique à accès aléatoire (MERAM) repose sur les propriétés exceptionnelles à température ambiante des couches minces de  $\text{BiFeO}_3$  (BFO) qui est un multiferroïque monophasique simultanément ferroélectrique et antiferromagnétique. Il a été démontré qu’il peut générer un couplage d’échange à l’interface avec une couche ferromagnétique. Ce dispositif permettrait d’effectuer un basculement direct (switching) de l’aimantation en appliquant un champ électrique à travers le BFO [Binek 2004]. Une autre étude montre qu’il est possible de faire tourner l’aimantation de  $90^\circ$  dans une couche de  $\text{Co}_{0.9}\text{Fe}_{0.1}$  couplée antiferromagnétiquement avec la tension appliquée sur une sous-couche de BFO [Hu 2010]. Des travaux théoriques décrivent des points mémoire de MERAM combinant différentes couches magnétiques (alliages Fe–Co, CFO, Ni, et  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ) à des substrats piézoélectriques (BTO, PZT, PMN-PT et PZN-PT) [Zhang 2010, Tiercelin 2011, Wu 2011]. Un exemple typique de structure étudiée est présenté sur la Figure 8 [Hu 2010]. L’aimantation de la couche supérieure de la

jonction est magnétiquement fixée (couche piégée) tandis que l'aimantation de la couche inférieure (par abus de langage on parle de couche libre) est commandable par effet magnétoélectrique direct.

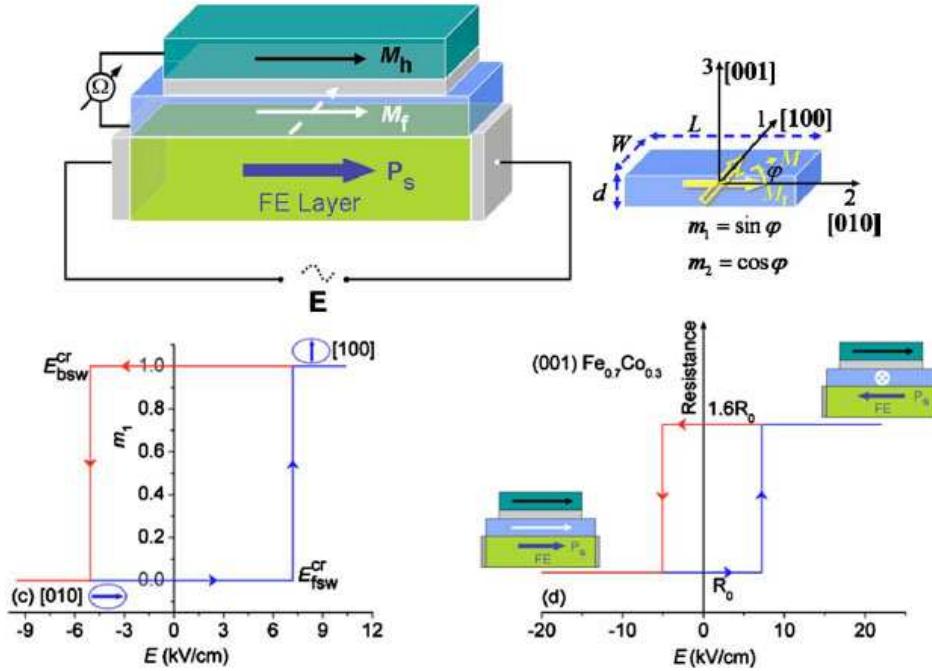


Figure 8. (en haut) La vue schématique d'un élément de MERAM.  $M_h$  et  $M_f$  correspondent aux aimantations initiales dans la couche supérieure (piégée) et dans la couche inférieure (libre). Un champ électrique transverse est appliqué dans le matériau ferroélectrique (FE). (en bas) Cycle théorique d'écriture magnétoélectrique correspondant au cosinus directeur  $m_1$  du vecteur d'aimantation et dépendance de la résistance en fonction du champ électrique appliquéd.

On peut voir que le vecteur d'aimantation de la couche magnétique adjacente peut tourner de façon abrupte et rester stable après l'interruption du champ électrique. De plus, il est théoriquement possible de retourner dans l'état initial en appliquant un champ électrique négatif critique plus petit.

Les mémoires MERAM directement contrôlables en tension électrique permettront de consommer très peu d'énergie lors de l'écriture par rapport aux solutions actuelles et de gagner en densité ( $> 1 \text{ Tbits/inch}^2$ ). Il reste tout de même à prouver ces concepts expérimentalement. De plus, le développement technologique se heurte au caractère monocristallin des matériaux multiferroïques monophasiques dont le BFO qui impose des techniques d'épitaxie complexes et non compatibles avec la microélectronique (ablation laser, substrats monocristallins en STO ou MgO de petite taille, électrodes magnétiques en semi-métaux...)

### 1.2.5. Récupération d'énergie

Les composites magnétoélectriques peuvent également être utilisés dans le but de récupérer de l'énergie (energy harvesting) de nature magnétique dissipée dans l'environnement. Traditionnellement les matériaux piézoélectriques sont utilisés pour convertir l'énergie de mouvements en énergie électrique [Roundy 2005]. Récemment, les composites laminaires magnétoélectriques ont été évalués en tant que récupérateur d'énergie bimodaux car ils peuvent convertir l'énergie provenant de sources à la fois magnétique et mécanique. Les mouvements (vibrations, déformations mécaniques ...) sont convertis en charges électriques grâce à l'effet piézoélectrique et les variations du champ magnétique ambiant sont converties également en charges électriques à travers le couplage magnétoélastique.

En utilisant un composite laminaire magnétoélectrique attaché à un cantilever avec une masse sismique Dai et al. ont testé un récupérateur d'énergie multimodale [Dai 2009]. Dans un champ magnétique alternatif de 2 Oe d'amplitude et avec des vibrations de 50 mg d'accélération (les deux à la fréquence de 20 Hz), ce système a été capable de générer 8 V en circuit ouvert.

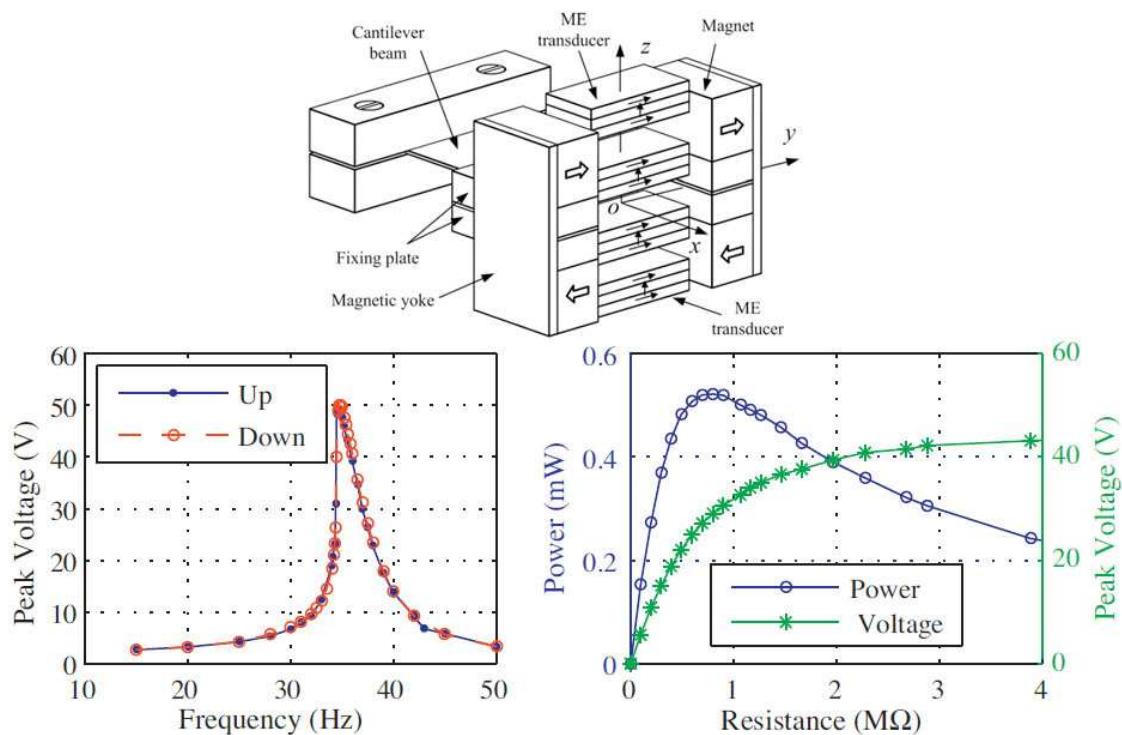


Figure 9. (en haut) La vue schématique d'un récupérateur d'énergies magnétiques et vibrationnelle à base d'un composite magnétoélectrique Terfenol-D/PZT/ Terfenol-D. (en bas) La dépendance en fréquence de la réponse électrique de récupérateur et la puissance transmise à la charge en fonction de son impédance.

Le même groupe de chercheur a présenté un récupérateur de l'énergie vibrationnelle avec un transducteur magnétoélectrique de type Terfenol-D/PZT/ Terfenol-D qui a généré 0.55 mW de puissance à travers une résistance optimale de 803 kΩ dans des conditions expérimentales similaires Figure 9) [Dai 2011].

Les récupérateurs d'énergie magnétoélectriques sont également intéressants pour des applications in-vivo. La puissance électrique peut être transmise sans fil à partir d'une petite bobine extérieure vers un récepteur magnétoélectrique à la distance de quelques centimètres (à l'intérieur d'un objet biologique) pour alimenter un composant médical.

### 1.3 Conclusion

Lors de ce chapitre, nous avons vu qu'à ce jour les matériaux multiferroïques naturels ne sont pas suffisamment performants pour être utilisés dans des dispositifs intégrés. En revanche, certains composites montrent des effets magnétoélectriques particulièrement attractifs pour des applications à faible consommation électrique tels que les mémoires magnétiques nonvolatiles, capteurs, composants RF accordables, etc.

Le choix des composites laminaires réalisés à partir de couches minces de matériaux magnétostrictifs couplés à un matériau piézoélectrique se fait naturellement pour les applications dans des dispositifs intégrés. C'est pour cette raison que nous allons décrire dans le chapitre suivant les différentes interactions magnétiques au sein d'un matériau ferromagnétique doux en couche mince afin de mieux comprendre l'influence des contraintes mécaniques sur les propriétés magnétiques à travers l'énergie magnétoélastique. Trois cas de figures seront étudiés : le cas d'un matériau ferromagnétique isotrope, celui d'un matériau ferromagnétique anisotrope et celui d'un matériau ferromagnétique couplé antiferromagnétiquement. Les résultats obtenus nous permettront d'avoir une vue d'ensemble sur les effets attendus dans les composites magnétoélectriques laminaires.

## 2. Modélisation analytique

Dans cette partie, nous allons utiliser l'approche phénoménologique pour décrire l'état d'aimantation d'un matériau ferromagnétique doux. La contribution de l'énergie magnétoélastique dans l'énergie totale magnétique joue un rôle important sur l'anisotropie effective d'un ferromagnétique fortement magnétostrictif. Trois cas différents seront présentés : le cas isotrope, correspondant à des matériaux ferromagnétiques isotropes (l'exemple typique est FeCoSiB [Metglas]), le cas uniaxial représentatif des couches minces ferromagnétiques avec une anisotropie uniaxiale (le plus souvent induite pendant le dépôt) et enfin le cas unidirectionnel qui est propre aux systèmes ferromagnétiques couplés à un antiferromagnétique.

Les matériaux ferromagnétiques manifestent un couplage fort entre les spins, ce qui traduit par une aimantation non nulle spontanée. Ici, nous allons décrire le comportement d'aimantation du matériau comme identique à celui d'un spin unitaire (l'approximation macrospin).

Pour introduire les différentes énergies présentes au sein d'un matériau magnétique, nous nous réfèrerons au système de coordonnées présenté sur la Figure 10.

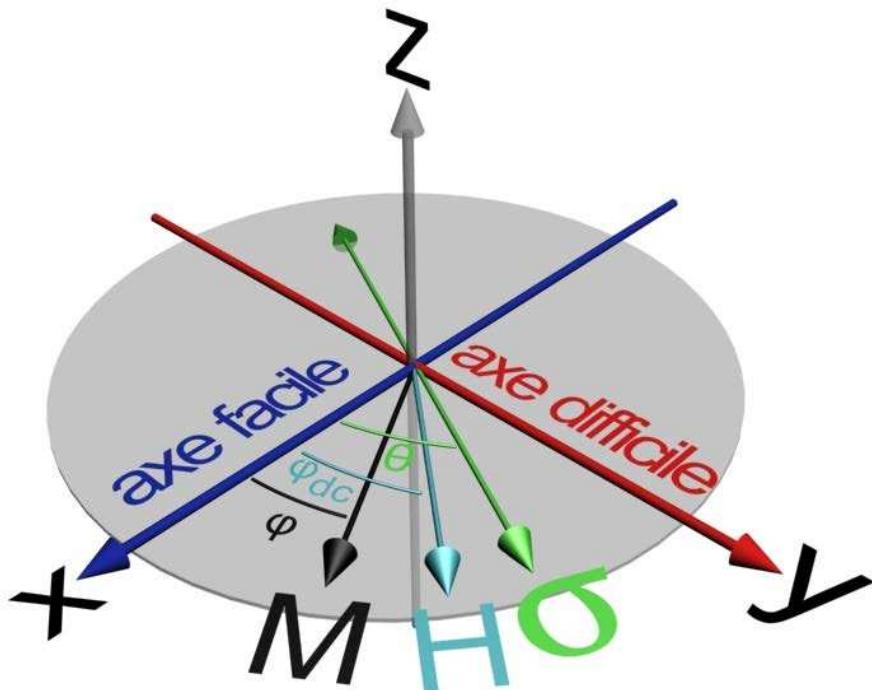


Figure 10. Système de coordonnées pour un matériau magnétique possédant une anisotropie planaire.

Nous nous limiterons au cas d'un matériau magnétique possédant une anisotropie planaire. Ainsi, l'application du champ magnétique extérieur et des contraintes se fera dans le plan. De plus, nous ne considérerons que le cas d'une contrainte uniaxiale.

## 2.1 Energies magnétiques

Nous décrivons ici les termes d'énergies magnétiques qui contribuent à l'énergie totale libre ( $E_{tot}$ ) du système et qui permettent de déterminer les états stables de l'axe de facile aimantation (par la minimisation de cette énergie).

Il est possible de définir l'énergie  $E_{tot}$  comme une somme de termes généraux correspondants aux différents effets qui se manifestent dans le matériau :

$$E_{tot} = E_H + E_Z + E_{anis} + E_d + E_\sigma + E_{ex} + \dots, \quad (1.1)$$

où  $E_H$ ,  $E_Z$ ,  $E_{anis}$ ,  $E_d$ ,  $E_\sigma$ ,  $E_{ex}$  sont respectivement les énergies de Heisenberg, de Zeeman, d'anisotropie, magnétostatique (champ démagnétisant), magnétoélastique et d'échange. Etant donné que nous nous plaçons dans l'approximation macrospin, c'est-à-dire que le mouvement des moments magnétiques locaux est considéré comme collectif et uniforme, l'énergie d'échange d'Heisenberg peut être négligée. De même, l'énergie magnétostatique peut être négligée puisque le système considéré est planaire et quasi infini selon les directions x et y (l'épaisseur de la couche magnétique est très faible).

### ***Energie de Zeeman***

L'interaction entre l'aimantation et le champ magnétique statique extérieur  $H_{dc}$  est traduite au travers du terme d'énergie de Zeeman. Elle est minimale lorsque les moments magnétiques sont alignés dans la direction du champ  $H_{dc}$ . La densité volumique de cette énergie est définie par l'équation suivante :

$$E_Z = -\mu_0 H_{dc} M_s \cos(\varphi - \varphi_{dc}) \quad (1.2)$$

### ***Energie d'anisotropie***

Dans les matériaux monocristallins, le processus d'aimantation se fait plus ou moins facilement en fonction de la direction d'application du champ extérieur. Cet effet est dû à la présence de l'anisotropie magnétique d'origine purement cristalline, encore appelée énergie magnétocristalline ( $K_i$ ). Cependant, dans le cas des couches minces polycristallines, la contribution de l'anisotropie magnétocristalline diminue fortement avec la réduction de la

taille des grains (le cas limite étant le cas amorphe); on parle alors d'anisotropie évanescante (vanishing anisotropy d'Herzer [Herzer 1990]). Par contre, il est possible d'obtenir une anisotropie uniaxiale dans le plan de la couche. Cette anisotropie, dite « induite » dépend du procédé de fabrication (dépôt sous champ, traitement thermique, etc.). On définit donc le champ effectif ( $H_k$ ) associé à la constante d'anisotropie uniaxiale ( $K_u$ ) et la densité volumique de l'énergie associée par :

$$H_k = \frac{2K_u}{M_s}, \quad E_{anis} = \frac{1}{2} \mu_0 H_k M_s \sin^2 \varphi. \quad (1.3)$$

### ***Energie magnétoélastique***

L'apparition de cette énergie est liée au couplage qui existe entre le réseau cristallin et le réseau de spin. La manifestation la plus courante de cette interaction est l'effet de magnétostriction. Le signe du coefficient de magnétostriction à la saturation ( $\lambda_s$ ) détermine si le matériau se dilate ou se contracte sous l'effet de champ magnétique statique extérieur (supposé positif). Le phénomène inverse existe également: le changement de l'état d'aimantation sous l'action de contraintes appliquées. La densité d'énergie magnétoélastique dans le cas d'une contrainte uniaxiale peut s'écrire de la façon suivante:

$$E_\sigma = -\frac{3}{2} \lambda_s \sigma \cos^2(\varphi - \theta). \quad (1.4)$$

### ***Energie d'échange antiferromagnétique***

Finalement, nous décrivons un phénomène de couplage à l'origine d'un autre type d'anisotropie, dite unidirectionnelle. Il s'agit du couplage interfacial entre un matériau ferromagnétique et un matériau antiferromagnétique, ce qui est couramment utilisé dans la spintronique (réalisation de couches piégées). La force de ce couplage est caractérisée par un champ d'échange unidirectionnel ( $H_{ex}$ ). L'apport de ce terme dans l'énergie totale est similaire à celui du champ magnétique statique.

$$E_{ex} = -\mu_0 H_{ex} M_s \cos(\varphi - \varphi_{ex}), \quad (1.5)$$

où  $\varphi_{ex}$  est un angle entre la direction de couplage (ou de piégeage) et l'axe facile intrinsèque au ferromagnétiques.

## 2.2 Cas isotrope

Dans le cas le plus simple, nous regardons l'impact de l'application d'une contrainte uniaxiale sur l'état d'aimantation d'une couche magnétique au préalable isotrope. La Figure 11 montre les diagrammes énergétiques correspondants aux différents angles d'application de la contrainte (ici une contrainte uniaxiale en tension d'une amplitude de 20 MPa est appliquée suivant  $0^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $90^\circ$ ). Nous pouvons constater que pour chaque angle, l'axe facile (qui est déterminé par minimisation de l'énergie totale selon l'angle  $\varphi$ ) s'oriente dans la direction d'application de la contrainte. Le champ d'anisotropie induit par l'effet magnétoélastique est défini comme  $H_k^{eff} = 3\lambda_s \sigma / M_s$  (et vaut environ 40 Oe dans ce cas).

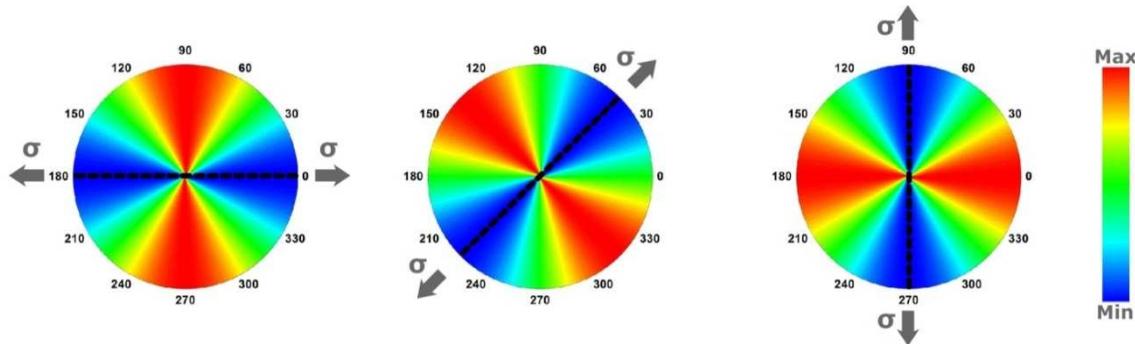


Figure 11. Diagrammes énergétiques pour un matériau magnétique isotrope soumis à l'application d'une contrainte uniaxiale appliquée à différents angles ( $0^\circ$ ,  $45^\circ$ ,  $90^\circ$ ). L'axe facile correspond à la direction selon laquelle on a un minimum d'énergie (en bleu) et est indiqué par la ligne en pointillé.

## 2.3 Cas uniaxial

Ici, nous rajoutons le terme d'anisotropie induite existant au préalable dans le matériau qui va définir la position initiale de l'axe facile (dans ce cas, parallèle à l'axe  $x$  sur la Figure 10). La densité d'énergie totale s'exprime sous la forme :

$$E_{eff} = \frac{1}{2} \mu_0 H_k^0 M_s \sin^2 \varphi - \frac{3}{2} \lambda_s \sigma \cos^2 (\varphi - \theta). \quad (1.6)$$

La minimisation de l'énergie selon  $\varphi$  conduit ici à une solution analytique qui donne l'angle  $\varphi_{stab}$  définissant la position de l'axe facile :

$$\varphi_{stab} = \frac{1}{2} \arctan \left( \frac{3\lambda_s \sigma \sin 2\theta}{3\lambda_s \sigma \cos 2\theta + \mu_0 H_k M_s} \right) \quad (1.7)$$

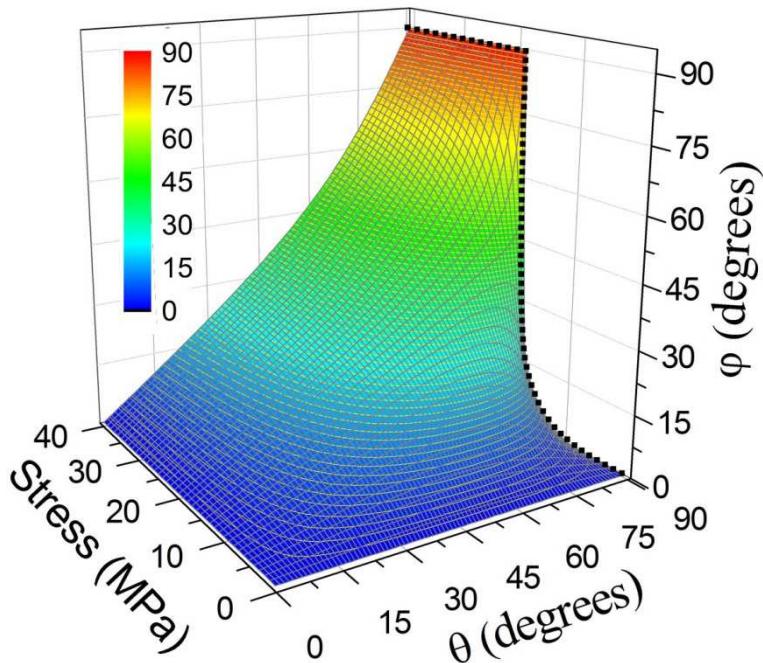


Figure 12. Position stable de l'axe facile (dépendance angulaire) en fonction de l'angle et de l'amplitude de la contrainte uniaxiale appliquée.  $\theta = 0$  correspond à la contrainte appliquée dans la direction de l'axe facile initial.

Pour illustrer le comportement de ce système, nous avons pris les paramètres réalistes suivant :  $\lambda_s = 100$  ppm,  $\sigma = 0-40$  MPa,  $\varphi_\sigma = 0-90^\circ$ ,  $H_k = 25$  Oe,  $\mu_0 = 4\pi \cdot 10^{-7}$  et  $M_s = 1.8$  T. Le résultat des calculs est présenté sur la Figure 12. On peut voir que pour une contrainte uniaxiale appliquée à  $90^\circ$  de l'axe facile initial, il existe une valeur critique pour laquelle un basculement instantané de  $90^\circ$  (switching) de l'axe facile est observé :

$$\sigma_{cr} = \frac{\mu_0 M_s H_k}{3\lambda_s} \quad . \quad (1.8)$$

Alors que, si la direction de la contrainte n'est pas perpendiculaire à l'axe facile initial, nous observons juste une rotation progressive de cet axe en direction de celui selon lequel la contrainte est appliquée.

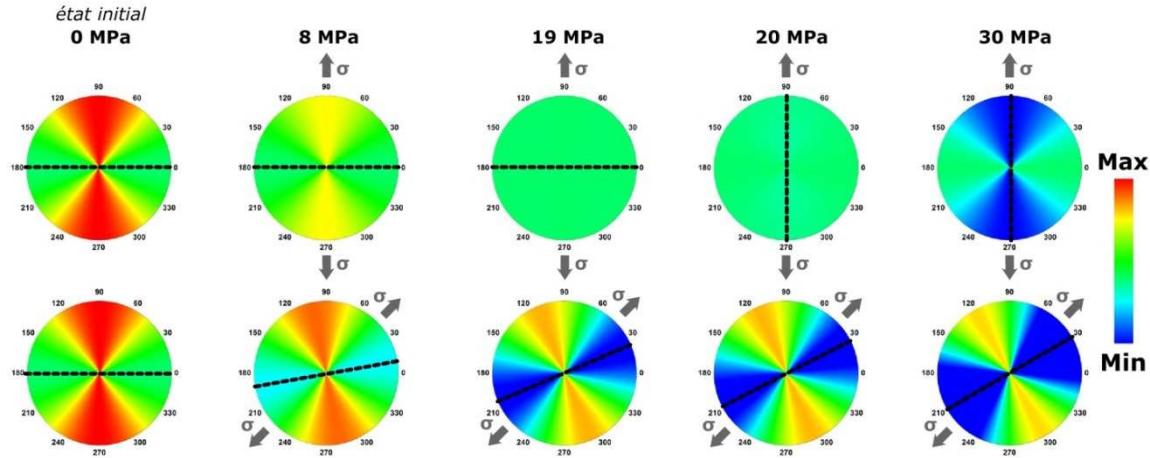


Figure 13. Diagrammes énergétiques pour un matériau à anisotropie uniaxiale soumis à une contrainte uniaxiale appliquée à  $90^\circ$  et à  $45^\circ$ . L'axe facile est indiqué par la ligne en pointillé.

Les diagrammes énergétiques correspondants aux angles d'application de la contrainte  $\varphi_\sigma = 90^\circ$  et  $45^\circ$  sont montrés sur la Figure 13. Comme attendu, pour le cas  $\varphi_\sigma = 90^\circ$  le « switching » est observé pour une contrainte autour de 20 MPa. Par opposition, on qualifiera de rotation graduelle le changement observé sur l'axe facile lorsque la contrainte est appliquée à  $45^\circ$ .

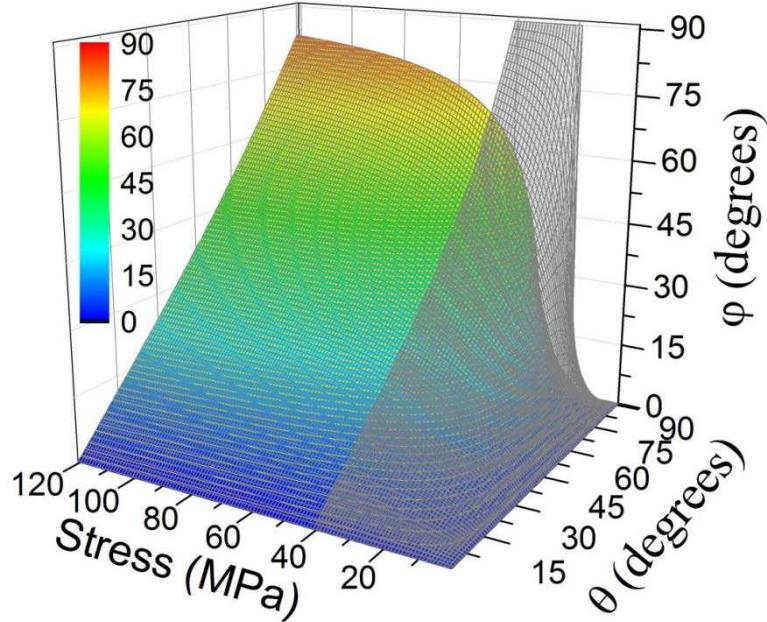
## 2.4 Cas unidirectionnel

Enfin, nous étudions l'influence du couplage antiferromagnétique sur la réponse magnéto-élastique de l'anisotropie du matériau ferromagnétique. En rajoutant le terme unidirectionnel dans l'expression de l'énergie totale on obtient :

$$E_{eff} = \frac{1}{2} \mu_0 H_k^0 M_s \sin^2 \varphi - \frac{3}{2} \lambda_s \sigma \cos^2(\varphi - \theta) - \mu_0 H_{ex} M_s \cos \varphi. \quad (1.9)$$

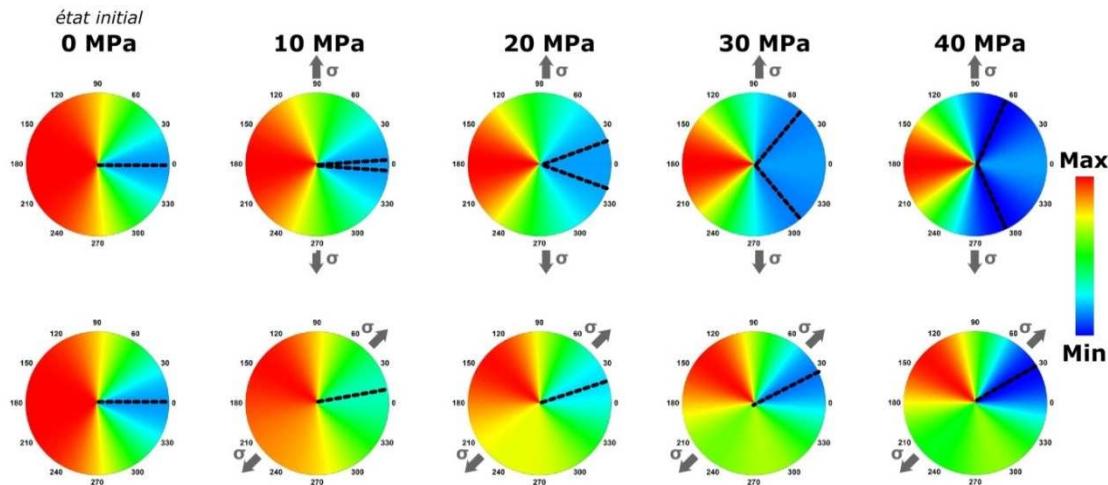
Il n'y a pas de solution analytique pour la dérivée selon cette équation. En revanche, il est possible d'effectuer la minimisation de cette énergie numériquement (Figure 14). Nous constatons qu'il n'y a pas de switching ( $90^\circ$ ) instantané de la direction de l'aimantation pour  $\varphi_\sigma = 90^\circ$ . C'est la différence principale avec le cas uniaxial. Ici, dans tous les cas, la rotation de la direction d'aimantation est progressive et l'on note que l'intensité des contraintes nécessaires pour réaliser une rotation

complète de  $90^\circ$  est significativement plus élevée (à énergie égale) que dans le cas uniaxial.



*Figure 14. Position stable de l'axe facile (dépendance angulaire) en fonction de l'angle et de l'amplitude de la contrainte uniaxiale appliquée pour le cas de l'anisotropie unidirectionnelle. Pour comparaison, la solution pour le cas uniaxial est rappelée en superposition (en gris).*

De plus, si nous regardons les diagrammes énergétiques pour les directions de contraintes  $\varphi_\sigma = 90^\circ$  et  $45^\circ$ , un effet spécifique apparaît. En augmentant l'intensité des contraintes appliquées perpendiculairement à la direction de piégeage ( $\varphi = 0^\circ$ ), nous observons un dédoublement de la direction de facile aimantation (Figure 15). Pour des valeurs de contraintes élevées, le système couplé s'approche du comportement d'un ferromagnétique seul avec un axe facile unique à  $\varphi = 90^\circ$ . Pour les contraintes appliquées à  $45^\circ$ , ce dédoublement n'apparaît pas et on observe seulement la rotation progressive de l'axe de facile aimantation.



*Figure 15. Diagrammes énergétiques pour un matériau à anisotropie unidirectionnelle soumis à une contrainte uniaxiale appliquée à  $90^\circ$  ou à  $45^\circ$ . La direction facile est indiquée par la ligne en pointillé.*

## 2.5 Conclusion

Nous avons pu voir qu'il est possible d'un point de vue théorique de contrôler la direction de l'axe facile d'aimantation d'un matériau ferromagnétique magnétostrictif doux grâce à l'application de contraintes mécaniques uniaxiales modérées. Différents types de comportement ont été observés selon que l'on considère un système isotrope, anisotrope uniaxial ou anisotrope unidirectionnel. Ces modes de variation de l'anisotropie magnétique, portant sur un contrôle possible de l'intensité et/ou de la direction angulaire de l'axe de facile aimantation, ont un grand intérêt applicatif pour tout dispositif magnétique dont on cherche à « commander » ou « accorder » la réponse (capteurs magnétiques mémoires, composant RF agiles, etc.). La transcription pratique des principes que l'on vient de voir, qui relève de la magnétoélasticité, passe par la conception de « moteur de contraintes » adéquats qui doivent, notamment, respecter la condition d'uniaxialité de la contrainte.

Dans le chapitre suivant nous allons analyser le comportement magnétoélectrique de composites macroscopiques dans le but d'observer expérimentalement les effets que nous avons vus dans cette partie.

# 3. Composites macroscopiques magnétoélectriques

Dans cette partie nous allons étudier l'effet magnétoélectrique inverse (converse magnetoelectric effect, CME) dans un composite laminaire constitué d'une couche magnétostrictive douce déposée directement sur un substrat piézoélectrique. Dans un premier temps, la question du choix des matériaux sera évoquée. Ensuite, le cas du composite à anisotropie magnétique uniaxiale sera présenté. Nous étudierons plus en détails l'influence de la composition du matériau magnétostriktif doux. Enfin, nous terminerons cette partie par l'étude du cas du composite à anisotropie magnétique unidirectionnelle utilisant une bi-couche ferromagnétique/antiferromagnétique.

## 3.1 Choix des matériaux

Le choix des phases magnétostrictive et piézoélectrique est une question cruciale pour la réalisation d'un composite magnétoélectrique. Il est nécessaire de choisir des propriétés essentielles de chaque phase pour obtenir un couplage magnétoélectrique élevé. Ici nous allons justifier le choix des matériaux pour la réalisation de notre composite.

### 3.1.1 Le matériau magnétostriktif (F)

La plupart des composites magnétoélectriques laminaires utilisent comme matériau magnétostriktif le Terfenol-D car il possède le coefficient de magnétostriction le plus élevé à l'heure actuelle. Cependant, le champ coercitif de ce matériau est grand, ce qui rend le contrôle de l'anisotropie magnétique par les contraintes mécaniques impossible (il faut des contraintes supérieures à la limite élastique du matériau). En effet, il se trouve que le paramètre clé pour réaliser le contrôle efficace de l'anisotropie est la susceptibilité magnétostriktive ( $d\lambda/dH$ ). Effectivement, il ne suffit pas d'avoir un coefficient de magnétostriction élevé mais il faut aussi avoir un champ de saturation le plus faible possible. Ainsi, plus le rapport  $d\lambda/dH$  sera grand moins importantes seront les contraintes à appliquer pour vaincre l'anisotropie initiale. Dans le Tableau 3, les principales propriétés des matériaux magnétostriktifs les plus répandus sont présentés. Nous constatons donc que le Metglas et les alliages

amorphes à base de FeCo sont les meilleurs candidats en termes de rapport  $d\lambda/dH$  pour réaliser le contrôle de l'anisotropie magnétique par les contraintes mécaniques.

*Tableau 3. Propriétés des principaux matériaux ferromagnétiques magnétostrictifs (sont exclus les matériaux à magnétostriction géante).*

	NiFe <sub>2</sub> O <sub>4</sub>	Terfenol-D	FeGa	Metglas 2605	FeCo(B)
$\lambda_s$ (ppm)	27	800-2000	250	40	30-120
$M_s$ (T)	0.6-0.7	0.9-1	1.4-1.75	1-1.6	1.5-2.4
$\mu$	20	3-10	20	>40000	>10000
$H_c$ (Oe)	40-150	3000-5000	200-500	0.2-1	3-30
$k_{33}$		0.75	0.6	0.37	
$Q_m$				1000	
$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	5.4	7.8	7.7	7.2	7.3
$R$ ( $\Omega \cdot m$ )	1·10 <sup>6</sup>	6·10 <sup>-7</sup>	6·10 <sup>-7</sup>	1.3·10 <sup>-6</sup>	1.5·10 <sup>-6</sup>
$T_c$ (°C)	535	380	400	395	500-700

Au regard de cet état de l'art, nous allons finalement utiliser l'alliage amorphe de CoFeB qui présente un des plus hauts rapports  $d\lambda/dH$ . De plus, ce matériau est facilement déposable en couche minces par pulvérisation cathodique et ces propriétés magnétiques sont intéressantes pour des applications RF (forte perméabilité microonde). De plus, les couches minces de CoFeB bénéficient d'une certaine maturité car elles sont déjà largement utilisées dans les dispositifs spintroniques.

### 3.1.2 Le matériau piézoélectrique (PE)

De façon analogue, nous comparons ici les matériaux piézoélectriques les plus courants pour trouver une solution optimale afin de réaliser notre composite. Sachant que nous cherchons à obtenir des contraintes uniaxiales planaires, il est naturel de rechercher un matériau piézoélectrique avec un coefficient  $d_{31}$  le plus élevé possible. De ce point de vue, les matériaux de type PZN-PT et PMN-PT sont très attractifs. Cependant, ce sont des matériaux nouveaux qui se développent principalement dans des laboratoires. De plus, ils ne sont exploités que sous forme de monocristaux ce qui les rend coûteux et difficilement intégrables.

A la lecture du tableau 4, on se rend compte que les coefficients  $d_{33}$  sont dominants devant  $d_{31}$ . Or, habituellement l'utilisation de ce mode de déformation est limitée aux structures mécaniques se déformant verticalement (cantilevers). En revanche, il existe aujourd'hui de nouveaux composites piézoélectriques permettant

d'exploiter le coefficient  $d_{33}$  dans le plan, ce qui devient dès lors grandement favorable pour générer des contraintes planaires.

Par exemple, le Macro Fiber Composite (MFC) de la société américaine Smart Materials sous licence de la NASA [Samrt Materials 2010], est composé de fibres de PZT monocristallines enrobées dans une matrice polymère (Kapton). Ce type de MFC atteint des taux records de déformation jusqu'à 1 ppm/V en mode planaire. Cela est possible grâce aux électrodes interdigitées qui génèrent un fort champ électrique planaire le long des fibres et donc permettent de profiter pleinement du coefficient  $d_{33}$ . L'utilisation d'une matrice polymère spécifique améliore également les propriétés mécaniques du composite. Pour finir, ce concept d'électrodes interdigitées pour la réalisation du mode  $d_{33}$  dans le plan peut être appliqué aux couches minces piézoélectriques mais les conditions de croissances, notamment du PZT, dans ces conditions restent peu maîtrisées [Zhang 2003].

*Tableau 4. Propriétés des principaux des matériaux piézoélectriques*

	PZT-5	AIN	PZN-PT	PMN-PT	PVDF	MFC
$d_{31}$ (pc/N)	-175	-2.1	-1400	≈-700	16.5	-190
$d_{33}$ (pc/N)	400	5	2400	2000	-33	400
$\epsilon$	1750	15	4000- 7500	2000- 5000	10	400-800
$T_c$ (°C)	360	180	163	100	129	130
$\rho$ (g/cm <sup>3</sup> )	7.7	3.3	8.2	7.8	1.78	5.44
$Q_m$	80				4	
$k_{33}$	0.72	0.44	0.94	0.9-0.94	0.19	

Nous avons donc retenu la solution des MFC pour réaliser notre composite macroscopique. En détail, nous allons utiliser le type P1 qui permet de générer jusqu'à 0.1 % de déformation plane.

### 3.2 Composite à anisotropie uniaxiale (F/PE)

La vue schématique du composite magnétoélectrique à anisotropie magnétique uniaxiale est présentée sur la Figure 16(a). Une photographie d'un dispositif réel est montrée sur la Figure 16(b). Ces maquettes sont réalisées en déposant directement sur la face supérieure de Kapton du MFC un film de CoFeB par pulvérisation magnétron à la température ambiante. L'anisotropie uniaxiale du CoFeB est générée par l'application d'un champ magnétique DC pendant la phase de dépôt. La rugosité du Kapton étant non négligeable, une étude préliminaire nous a conduit à insérer une couche intermédiaire « de lissage » réalisée in-situ par le dépôt de 10 nm de

ruthénium (Ru). Au final, le meilleurs compromis en termes de rapport champ coercitif ( $H_c$ ) sur épaisseur, nous a conduit à choisir une épaisseur de CoFeB de 75 nm. Au-delà, nous observons une l'apparition d'une composante perpendiculaire de l'aimantation qui conduit à la formation de domaines en bandes (stripe domains) qui signifie la fin du comportement ultra-doux recherché [Viala 2008].

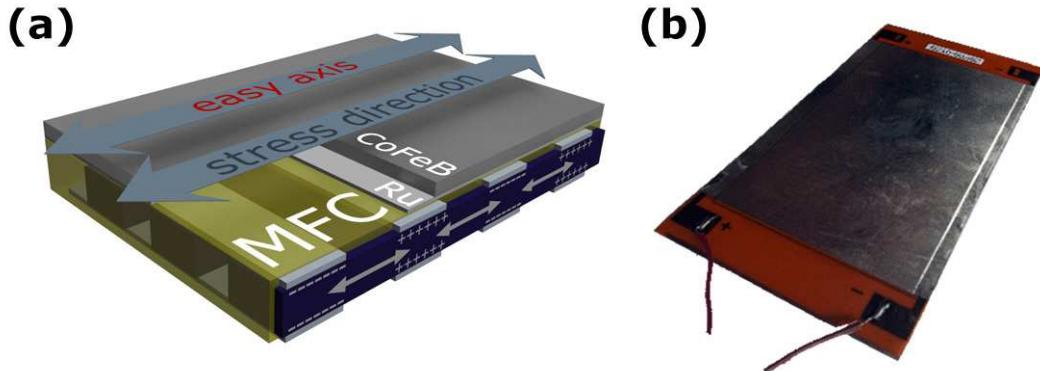


Figure 16. Vue schématique du composite ferromagnétique/piézoélectrique. Une couche de 75 nm d'épaisseur est déposée directement sur un MFC commercial de type P1 qui exploite le mode  $d_{33}$  horizontalement (les flèches horizontales). Une couche de Ru de 10 nm d'épaisseur est utilisée dans le but de réduire la rugosité du substrat.

Sous tension électrique le MFC génère une contrainte planaire uniaxiale qui est quasiment intégralement transmise à la couche de CoFeB qui à son tour voit ses propriétés magnétiques se modifier.

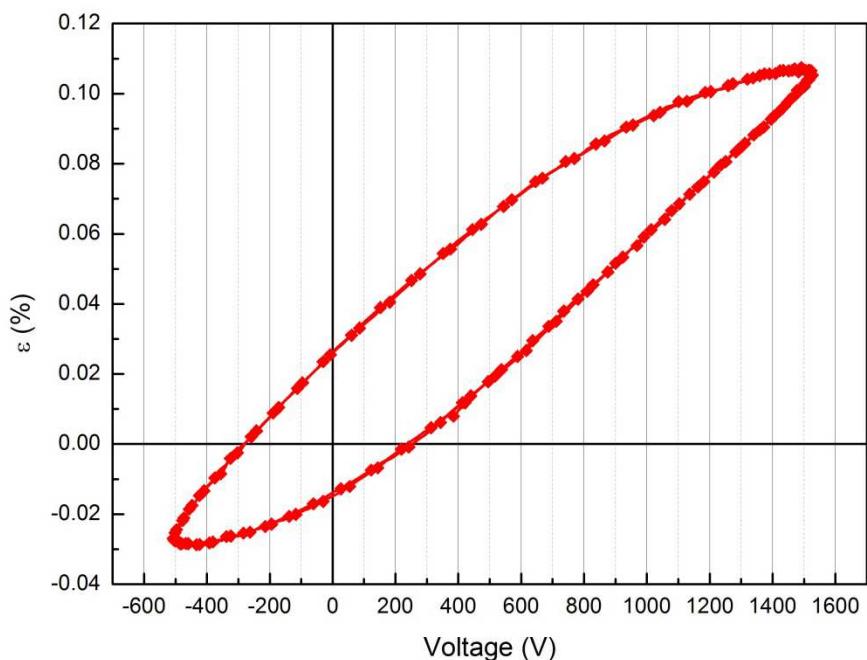


Figure 17. Cycle piézoélectrique du MFC mesuré pour la déformation dans le plan (mode  $d_{31}$ ) le long de fibre.

La Figure 17 montre le cycle piézoélectrique du MFC mesuré par l'interférométrie laser. Le même cycle a été mesuré pour le composite avec la couche magnétique (non présenté ici). Les deux courbes sont parfaitement identiques ce qui permet de supposer que l'influence mécanique de la couche magnétique est négligeable pour les épaisseurs choisies. Les cycles présentent une hystérésis ferroélectrique typiques pour les matériaux de type PZT. On voit que pour la variation de la tension entre -500 et +1500 V la déformation cumulée peut atteindre 0.14% (parmi les meilleures valeurs pour les matériaux piézoélectriques).

En appliquant une tension positive (négative) aux bornes de MFC, nous allons provoquer l'allongement (raccourcissement) des fibres de PZT ce qui va générer une contrainte uniaxiale en tension (compression) le long de l'axe facile initial. Dans nos expériences le champ électrique maximum utilisable avec les MFC varie entre -1 et +1.6 MV/m ce qui correspond à une variation de contrainte de -40 à +60 MPa. Ces valeurs sont calculées d'après les déplacements expérimentaux mesurés sur la Figure 17 et la valeur du module Young du CoFeB (140 GPa). En raison du rapport des épaisseurs entre la couche magnétique (0.1 µm) et le MFC (diamètre des fibres 150 µm), nous estimons que la quasi-intégralité des contraintes se transfère à la couche magnétique.

Il est important de bien définir le lien entre la tension appliquée au MFC et les contraintes générées dans le matériau magnétique. Dans le cadre de nos expériences, nous nous placerons toujours sur la branche inférieure du cycle piézoélectrique afin de connaître précisément le niveau de déformation. Nous partons des tensions négatives (-500 V) vers des tensions positives (jusqu'à +1500 V) en parcourant toute la branche inférieure dans le but d'éviter de nous retrouver dans un cycle mineur. De cette façon nous sommes sur d'avoir toujours les mêmes valeurs de déformations (égales à celles présentées sur la Figure 17) que l'on convertit en contraintes grâce à la loi de Hook.

Un exemple complet de réponse magnétoélectrique du composite F/PE est illustré sur la Figure 18 pour la composition  $\text{Co}_{28}\text{Fe}_{52}\text{B}_{20}$ . On y voit l'intégralité des cycles d'hystérésis magnétiques sous polarisation électrique. Globalement, on observe une évolution de la forme des cycles vers une tendance plus facile pour  $E$  positif ( $\sigma$ tensile) et vers une tendance plus difficile pour  $E$  négatif ( $\sigma$ compressive). Ces tendances expérimentales sont en parfait accord avec la théorie.

La figure 19 montre les réponses magnétoélectriques extrêmes (pour les valeurs de  $E$  maximales) pour les trois composites F/PE. Nous pouvons y voir un basculement remarquable de l'axe facile parallèle à la direction des fibres pour une polarisation positive et perpendiculaire à l'axe de fibres pour une polarisation négative. Ce basculement instantané est conforme aux prédictions théoriques. De plus, Les réponses CME des composites varient significativement en fonction du rapport Co/Fe (3; 1; 0.5).

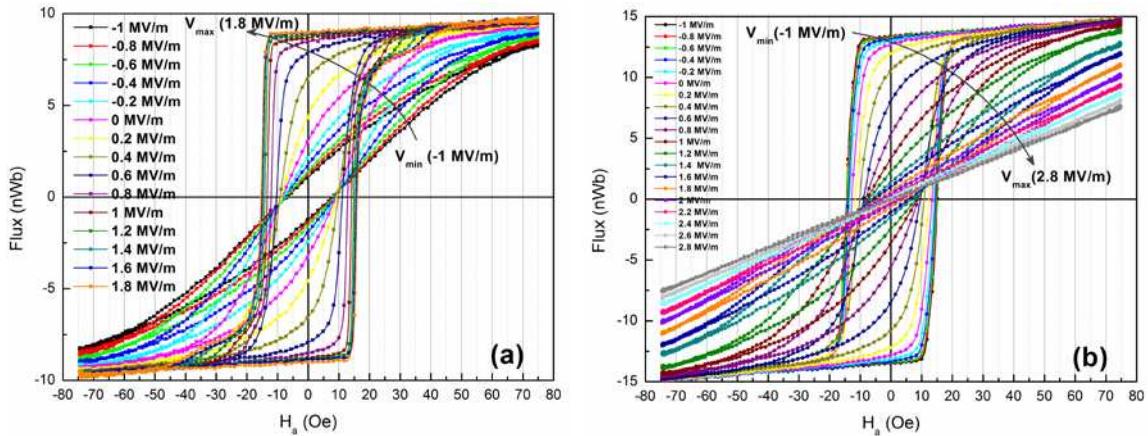


Figure 18. Cycles d'hystérosis magnétiques planaires mesurés pour différentes tensions électriques aux bornes du MFC (de -1 à 2.8 MV/m) pour l'axe facile initiale (a) et l'axe difficile initiale (b).

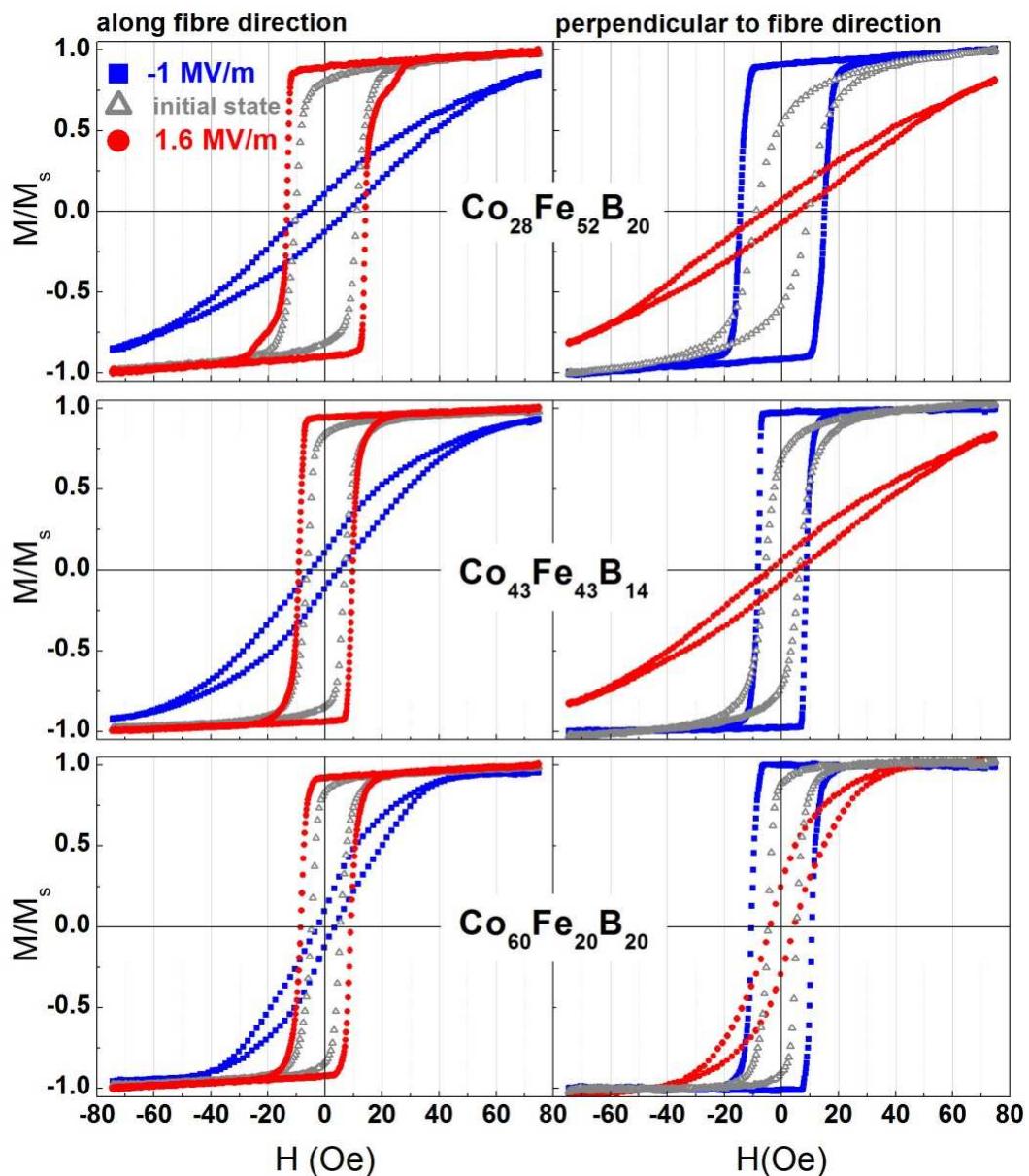


Figure 19. Cycles d'hystérésis magnétiques normalisés pour différents champs électriques appliqués. Les mesures sont faites dans la direction des fibres (axe facile) et perpendiculairement aux fibres (axe difficile).

La réponse CME se traduit d'une part par la modification du rapport  $M_r/M_s$  (squareness) et d'autre part par l'évolution du champ d'anisotropie effectif  $H_k$  (Figure 20,21). Ainsi, nous pouvons observer que le rapport  $M_r/M_s$  est diminué de 60 à 80% pour une variation du champ électrique de -1 à 1.6 MV/m. L'effet le plus marqué correspond à la composition  $\text{Co}_{43}\text{Fe}_{43}\text{B}_{14}$ . La comparaison peut se faire également en termes de champ électrique représentatif. On définit pour la sorte le champ  $E^{50\%}$  pour lequel le rapport  $M_r/M_s$  vaut 50 %. On trouve alors 0.54 MV/m, 0.66 MV/m et 1.17 MV/m respectivement pour les compositions  $\text{Co}_{43}\text{Fe}_{43}\text{B}_{14}$ ,  $\text{Co}_{28}\text{Fe}_{52}\text{B}_{20}$  et  $\text{Co}_{60}\text{Fe}_{20}\text{B}_{20}$ . Ceci confirme l'intérêt pour la composition 43-43-14 qui présente le champ  $E^{50\%}$  le plus faible.

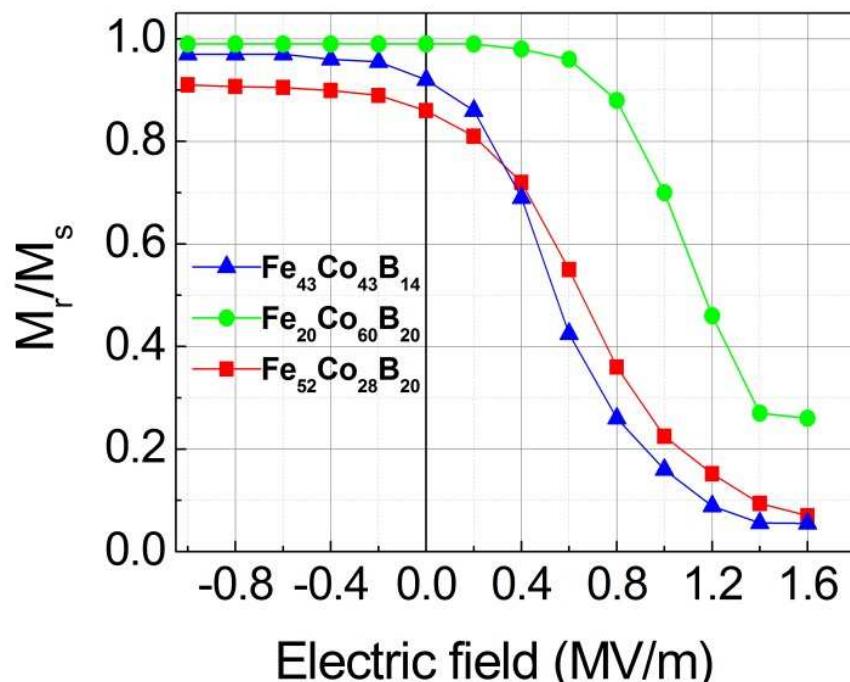


Figure 20. Rapport  $M_r/M_s$  (ou squareness) en fonction du champ électrique pour les compositions  $\text{Co}_{60}\text{Fe}_{20}\text{B}_{20}$ ,  $\text{Co}_{43}\text{Fe}_{43}\text{B}_{14}$ ,  $\text{Co}_{28}\text{Fe}_{52}\text{B}_{20}$ .

Comme nous pouvons le constater sur la Figure 21, les résultats expérimentaux sont en très bon accord avec la théorie. En effet, lorsqu'une contrainte uniaxiale est appliquée, la dépendance de  $H_k$  en fonction de la contrainte  $\sigma$  doit être linéaire :

$$H_k^{\text{eff}} = \frac{2K_1 - 3\lambda_s \sigma}{\mu_0 M_s} \quad (2.1)$$

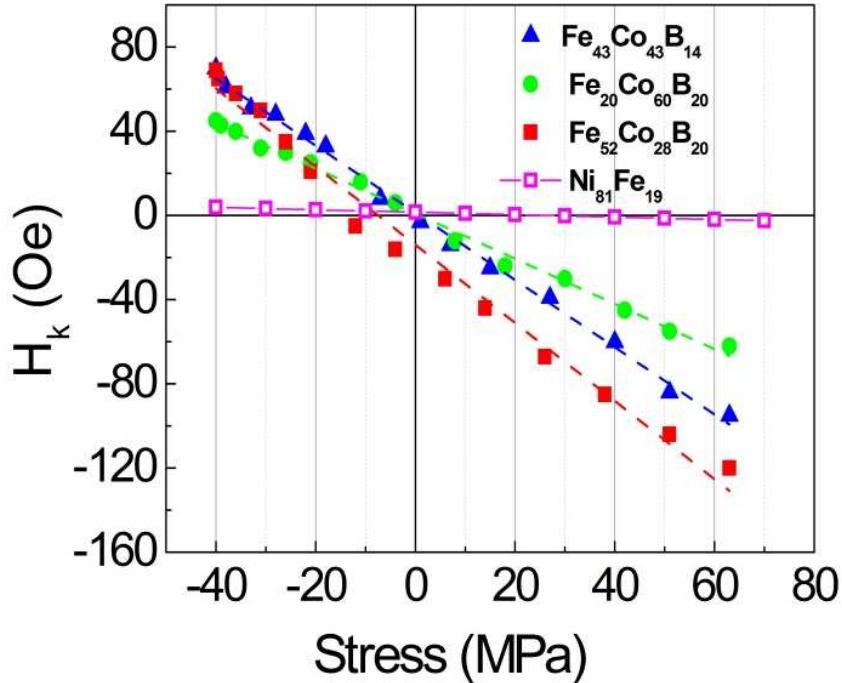


Figure 21 Champ d'anisotropie effectif  $H_k$  en fonction des contraintes pour les compositions  $Co_{60}Fe_{20}B_{20}$ ,  $Co_{43}Fe_{43}B_{14}$ ,  $Co_{28}Fe_{52}B_{20}$ . L'évolution du champ d'anisotropie effectif  $H_k$  pour un composite similaire utilisant une couche de Permalloy (NiFe) est donné à titre de comparaison.

A partir de cette dépendance, nous pouvons calculer le coefficient de magnétostiction  $\lambda_s$  pour chaque composition (inclus NiFe) :

	$Ni_{80}Fe_{20}$	$Co_{60}Fe_{20}B_{20}$	$Co_{43}Fe_{43}B_{14}$	$Co_{28}Fe_{52}B_{20}$
$\lambda_s$ (ppm)	2	50	120	110

Les valeurs ainsi extraites sont en bon accord avec la littérature [Cooke 2000] au regard des rapports Co/Fe (3 ; 1 ; 0.5) utilisés.

Il est intéressant ici de faire le lien avec les calculs magnétoélastiques de départ qui donnent l'expression de la contrainte critique pour laquelle le basculement à 90° de l'axe facile est effectif :

$$\sigma_c = \frac{\mu_0 \cdot M_s \cdot H_k}{3\lambda_s} \quad (2.2)$$

Il est possible de calculer le champ électrique critique correspondant en reliant la contrainte au champ électrique par l'intermédiaire du coefficient  $d_{33}$  du MFC :

$$\sigma = \eta \frac{Y}{1-\nu} d_{33} E, \quad (2.3)$$

où  $\eta$  est le coefficient de couplage mécanique entre le matériau ferromagnétique et le MFC (entre 0 et 1) et  $Y/(1-v)$  est le module élastique de ferromagnétique. Etant donné que la couche ferromagnétique est beaucoup plus fine que le MFC nous supposons un transfert total des contraintes. Ainsi, le champ électrique critique peut s'écrire de la façon suivante:

$$E_c^F = \frac{\mu_0 M_s H_k (1-v)}{3\lambda_s \eta Y d_{33}}. \quad (2.4)$$

Pour illustrer ceci, nous faisons le calcul pour les trois compositions  $\text{Co}_{60}\text{Fe}_{20}\text{B}_{20}$ ,  $\text{Co}_{43}\text{Fe}_{43}\text{B}_{14}$  et  $\text{Co}_{28}\text{Fe}_{52}\text{B}_{20}$  en comparant avec le NiFe (qui possède la plus faible magnétostriction). Nous partons d'une valeur initiale de  $H_k$  égale à 25 Oe identique (valeur typique pour ce genre de matériaux). Les paramètres  $Y/(1-v) = 200$  N/m<sup>2</sup> et  $d_{33} = 400$  pC/N sont tirés de la fiche technique du MFC. Les valeurs obtenues sont présentées dans le Tableau 5. Les résultats montrent en premier lieu que les valeurs d' $E_c$  (0.1 à 0.2 MV/m) sont plus petites d'un ordre de grandeur pour les alliages de FeCo(B) que pour le NiFe. Cet écart n'est simplement imputable à la faible magnétostriction du NiFe mais plus précisément au rapport  $M_s/\lambda_s$  qui détermine l'efficacité du composite en termes de champ électrique critique. Ainsi, la faible aimantation de NiFe amplifie l'écart avec les CoFeB. Parmi ces derniers, c'est la composition 43-43-14 qui possède le rapport  $M_s/\lambda_s$  le plus favorable, ce qui va dans le sens de l'observation d'une réponse CME plus marquée pour cette composition.

*Tableau 5. Propriétés magnétiques et le champ électrique critique pour différents matériaux magnétique.*

	<b>Ni<sub>80</sub>Fe<sub>20</sub></b>	<b>Co<sub>60</sub>Fe<sub>20</sub>B<sub>20</sub></b>	<b>Co<sub>43</sub>Fe<sub>43</sub>B<sub>14</sub></b>	<b>Co<sub>28</sub>Fe<sub>52</sub>B<sub>20</sub></b>
<b>M<sub>s</sub> (T)</b>	<b>0.9</b>	<b>1.5</b>	<b>1.8</b>	<b>2.2</b>
<b>λ<sub>s</sub> (ppm)</b>	<b>2</b>	<b>50</b>	<b>120</b>	<b>110</b>
<b>E<sub>c</sub> * (MV/m)</b>	<b>3</b>	<b>0.2</b>	<b>0.1</b>	<b>0.13</b>
<b>α (μs/m)</b>	<b>0.04</b>	<b>0.45</b>	<b>1.65</b>	<b>1.5</b>
<b>M<sub>EH</sub> (V/Oe·m)</b>	<b>6</b>	<b>65</b>	<b>250</b>	<b>210</b>

Finalement, en se basant sur la théorie linéaire de la magnétoélectricité en régime quasi-statique, nous pouvons calculer le coefficient de couplage linéaire  $\alpha$  [s/m] et le coefficient magnétoélectrique  $M_{EH}$  [V·cm<sup>-1</sup>Oe<sup>-1</sup>] :

$$\alpha = (M_r^0 - M_r^E)/E, \quad (2.5)$$

$$M_{EH} = \alpha / \epsilon_0 \epsilon_r, \quad (2.6)$$

où  $M_r^0$  et  $M_r^E$  (en T) sont respectivement les aimantations rémanentes sans et avec polarisation électrique;  $E$  (en V/m) est le champ électrique appliqué;  $\epsilon_0$  et  $\epsilon_r$  sont les permittivités diélectriques du vide et du MFC [Deraemaeker 2009]. Le calcul donne des valeurs de  $\alpha$  jusqu'à 1.65  $\mu\text{s}/\text{m}$  et  $M_{EH}$  jusqu'à 250  $\text{V}\cdot\text{cm}^{-1}\text{Oe}^{-1}$  qui sont de plusieurs ordre de grandeur plus élevées que celles d'autres composites magnétoélectriques présentés par exemple dans la revue de Fiebig [Fiebig 2005].

### 3.3 Composite à Anisotropie unidirectionnelle (AF/F/PE)

Le composite AF/F/PE à anisotropie unidirectionnelle a été réalisé en deux étapes. Tout d'abord un empilement constitué d'un matériau ferromagnétique couplé à un antiferromagnétique a été déposé sur un substrat de verre pour assurer un bon couplage d'échange (la surface de MFC est trop rugueuse pour un dépôt direct). Puis, l'empilement est collé sur le MFC avec une colle cyanoacrylate (Figure 22).

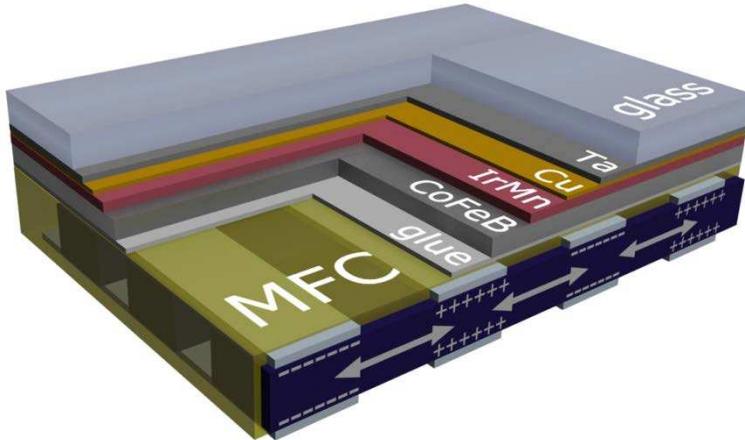


Figure 22. Vue schématique du composite antiferromagnétique (AF)/ ferromagnétique (F) / ferroélectrique (FE). La partie AF/F est constitué de Ta(5nm) / Cu(3nm) / IrMn10(nm) / CoFeB(50nm) déposé sur un substrat de verre de 50  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Cet empilement est collé ensuite sur un composite MFC du côté du CoFeB.

L'empilement magnétique est réalisé dans une même machine de dépôt par pulvérisation magnétron à la température ambiante (vide  $10^{-7}$ - $10^{-8}$  mbar). Nous avons choisi IrMn comme matériau antiferromagnétique car il manifeste une base température de piégeage ( $< 200^\circ\text{C}$ ) ce qui est très important pour ne pas endommager le MFC lors de recuit. Dans notre cas, le recuit a été réalisé à 100  $^\circ\text{C}$  pendant 1h. Le stack final est constitué de Ta(5nm) / Cu(3nm) / IrMn10(nm) / Co<sub>60</sub>Fe<sub>20</sub>B<sub>20</sub>(50nm). L'épaisseur d'IrMn est choisie pour donner le champ d'échange de l'ordre de 15-20 Oe.

La Figure 23 montre les cycles d'hystérésis normalisés en fonction du champ électrique appliqué. Ici, nous nous limiterons à la configuration transverse, c'est à dire que la contrainte uniaxiale est appliquée à 90° par rapport à la direction de piégeage.

Nous observons tout d'abord un changement significatif du rapport  $M_r/M_s$  dans la direction de piégeage ainsi que de l'anisotropie effective dans la direction perpendiculaire. Par contre, le champ d'échange  $H_{ex}$  ne varie presque pas. Cela veut dire que dans la configuration transverse le niveau des contraintes n'est pas suffisant pour que l'aimantation s'écarte significativement de la direction de piégeage pour faire varier le champ d'échange effectif.

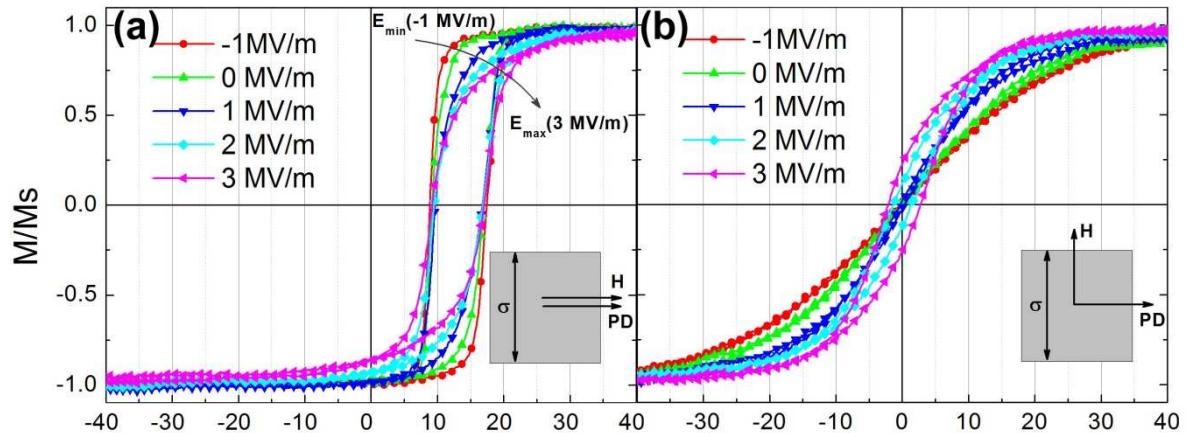


Figure 23. Cycles d'hystérésis normalisés mesurés (a) suivant la direction de piégeage (PD) et (b) perpendiculaire à PD pour le composite AF/F/FE

Pour appréhender plus finement cette effet, nous avons tracé la dépendance angulaire complète de  $H_{ex}$  en fonction du champ magnétique appliqué selon un angle compris entre 0 et 180° et cela pour la configuration transverse (on rappelle que la contrainte uniaxiale s'exerce à 90° de l'axe de piégeage) sur la Figure 24. Pour les valeurs positives du champ  $E$  (ici eq. compression) la direction de piégeage est renforcée ce qui se traduit par le «retardement» de la rotation de la direction de l'aimantation avec le champ magnétique.

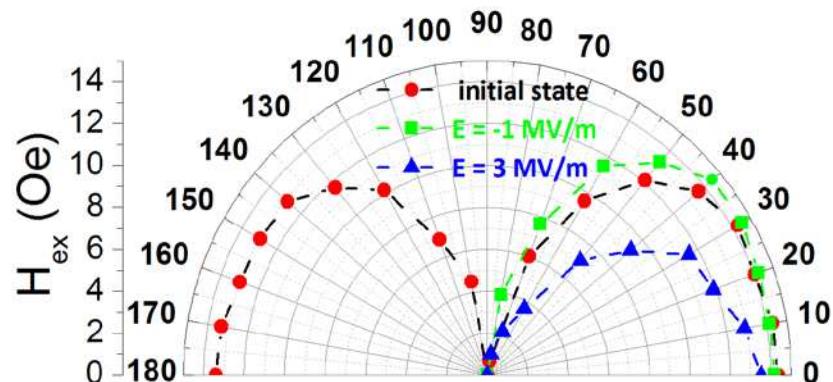


Figure 24. Dépendance angulaire du champ d'échange ( $H_{ex}$ ) pour la configuration transverse (contrainte perpendiculaire à la direction de piégeage) en fonction du champ électrique.

Au contraire, les valeurs positives du champ E (ici eq. tension) «accélère» la rotation. Pour cette configuration, on peut observer une variation maximale de  $H_{ex}$  qui atteint 73% à 45° de la direction de piégeage pour une variation de champ électrique de 4 MV/m.

A la suite de cette observation, nous avons réalisé un second composite AF/F/PE répondant à la configuration 45°, c'est-à-dire avec une contrainte uniaxiale appliquée cette fois à 45° de la direction de piégeage. Nous observons une situation complètement différente (Figure 25). Deux schémas de rotation de l'aimantation pour  $E = -1$  MV/m et  $E = +3$  MV/m sont mis en évidence. On constate ici une forte dissymétrie des profils de rotation en présence de la polarisation électrique. De plus, comme résultat remarquable, au lieu d'avoir un champ d'échange  $H_{ex}$  nul pour la direction de mesure à 90° de la direction de piégeage, nous trouvons une valeur négative de  $H_{ex}$  pour  $E = -1$  MV/m et une valeur positive pour  $E = 3$  MV/m. Ce changement de signe traduit l'inversion de direction de l'aimantation par rapport à la direction initiale de piégeage (anisotropie unidirectionnelle). On parle alors de «switching» de l'aimantation par analogie aux MRAM. Ce phénomène est illustré sur la Figure 26. A Nous constatons une variation sur  $M_r$  de 133% pour une variation du champ électrique de 4 MV/m. Cette variation sur  $M_r$  correspond à une rotation de la direction d'aimantation de F d'environ 120° par rapport à la direction de piégeage initiale (une variation de 200% sur  $M_r$  correspondrait à une rotation complète de 180°)

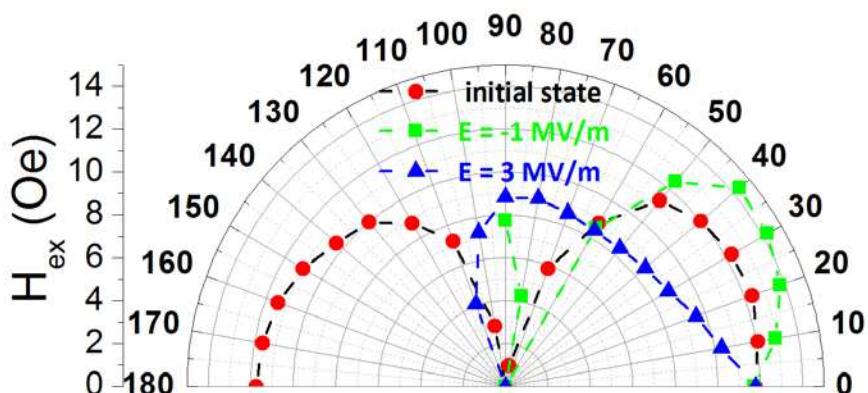


Figure 25. Dépendance angulaire du champ d'échange ( $H_{ex}$ ) pour la configuration angulaire (contrainte à 45° de la direction de piégeage) en fonction du champ électrique.

Il faut noter qu'ici que le système étudié est limité en compression avec un champ électrique maximal de -1 MV/m (contre +3 MV/m en tension) pour des raisons intrinsèques à la polarisation initiale des fibres de PZT. C'est pourquoi nous ne pouvons pas réaliser expérimentalement la rotation complète de 180° de l'aimantation (switching) amis celle-ci reste théoriquement possible.

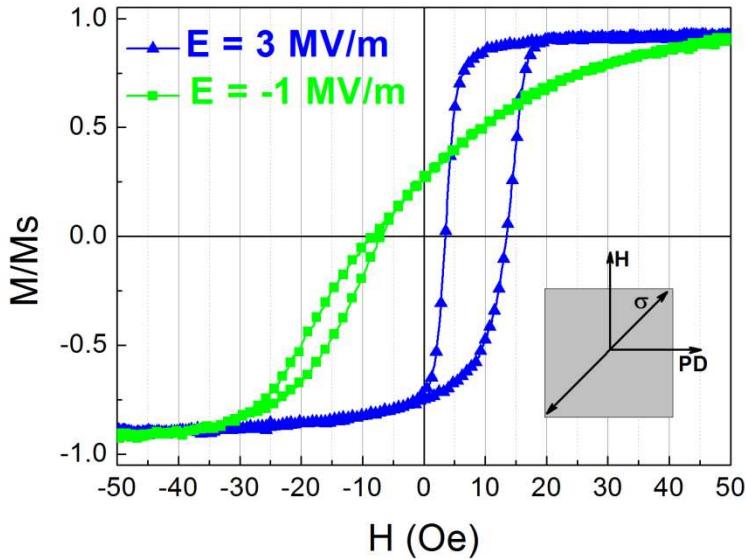


Figure 26. Cycles d'hystérésis magnétiques normalisés du composite AF/F/PE pour les valeurs extrêmes du champ électrique de polarisation avec contrainte uniaxiale appliquée à 45° de la direction de piégeage initiale (PD pour pinned direction).

### 3.4 Conclusion

Pour conclure sur cette partie, nous avons démontré expérimentalement et en accord avec la théorie un fort effet magnétoélectrique inverse (converse magnetoelectric effect, CME) dans des composites laminaires de type F/PE et AF/F/PE combinant couche magnétostrictive ultra douce et substrat piézoélectrique de type  $d_{33}$ . Les valeurs maximales du coefficient de couplage linéaire  $\alpha$  [s/m] et du coefficient magnétoélectrique  $M_{EH}$  [ $\text{V}\cdot\text{cm}^{-1}\text{Oe}^{-1}$ ] ont été établis pour la composition  $\text{Co}_{43}\text{Fe}_{43}\text{B}_{14}$  qui présente le rapport  $\lambda_s/M_s$  le plus élevé conformément à la théorie. Les valeurs remarquables des coefficients  $\alpha$  et  $M_{EH}$  traduisent un couplage magnétoélectrique très élevé avec ce type de composite.

L'étude des composites F/PE et AF/F/PE nous a permis de mettre en évidence deux mécanismes de contrôle de l'anisotropie de la couche F, le premier ayant pour caractéristique un basculement instantanée de l'axe facile initial vers la direction d'application de la contrainte pour une certaine valeur critique et le second se caractérisant par une rotation progressive de la direction de l'aimantation depuis sa position d'origine et pouvant aller jusqu'à 180° (switching). Ces observations expérimentales sont en parfait accord avec les calculs d'énergie avec anisotropie uniaxiale pour le premier et anisotropie unidirectionnelle pour le second.

Finalement, il sera possible d'améliorer encore le couplage magnétoélectrique de ce type de composites en réalisant tout le dispositif en couches minces avec des technologies MEMS. Cela permettra notamment d'abaisser d'un ou plusieurs ordres de

grandeur les valeurs de tension électrique de commande de ces futurs dispositifs pour les rendre tout à fait crédibles du point de vue applicatif pour la téléphonie mobile et les mémoires par exemples.

C'est l'enjeu de la partie qui suit qui vise à décrire la conception d'un actuateur piézoélectrique intégré avec un mode déformation uniaxial planaire reprenant le principe étudié ici avec les MFC.

## 4. Simulations FEM

Dans le chapitre précédent nous avons vu la réalisation d'un composite magnétoélectrique massif en utilisant un substrat piézoélectrique (MFC). L'intégration de ce genre de composseite est une tâche cruciale pour la réalisation des composants RF grandement variables (tels que l'inductance variable, capteurs magnétiques accordable etc.). Nous avons pu constater que pour arriver à obtenir un grand CME dans les électrodes magnétiques il est nécessaire d'appliquer une contrainte uniaxiale dans le plan du film. Nous pouvons imaginer de réaliser un actionneur en PZT qui exploite le mode  $d_{33}$  en utilisant les électrodes interdigitées ce qui sera un analogue direct de MFC. Il existe quelques réalisations des actionneurs de ce type dans la littérature. Par exemple le groupe de Kim S.G. a présenté en 2005 un cantilever PZT/ZrO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub> qui est actionné en mode  $d_{33}$  (Figure 27) grâce à un peigne serpentent en Pt [Jeon 2005]. L'inconvénient principal de cette approche est la nécessité d'utiliser la couche de croissance en oxyde de zirconium (la seul couche de croissance diélectrique compatible avec le PZT). A ce jour LETI ne dispose pas une filière compatible avec ce type d'empilement.

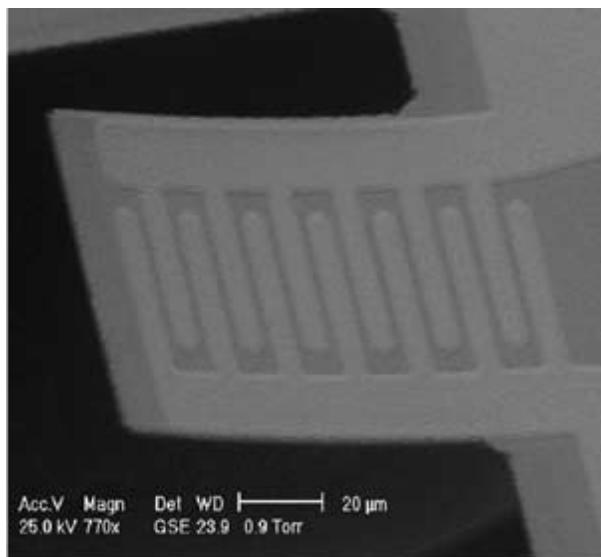
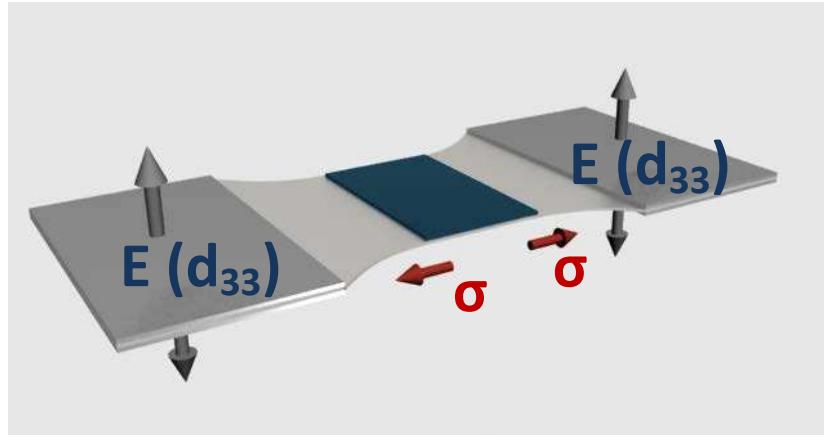


Figure 27. Cantilever piézoélectrique exploitant le mode transverse d'actuation ( $d_{33}$ ) avec les électrodes interdigitées.

Par ailleurs il existe un autre schéma alternatif pour obtenir des contraintes planaires. Ce schéma est basé sur la déformation verticale de capacités MIM (Métal Isolant Métal) standards en PZT dont la déformation mécanique perpendiculaire au plan sert à tendre ou relâcher (selon le signe de la tension) une membrane suspendue solidaire à ces extrémités des capacités (Figure 28). L'électrode magnétique est ensuite

déposée directement sur cette membrane et elle subit un transfert contrainte optimal. L'avantage de ce principe repose sur l'exploitation naturelle du mode dominant de déformation  $d_{33}$  du PZT à partir d'un empilement technologique éprouvé : SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>/Pt/PZT/Ru (qui est maîtrisé au LETI). Son désavantage concerne une conversion de modes de déformation mécanique complexe : « hors plan - dans le plan » dont le rendement mécanique peut être rapidement affecté par le flambage résiduel de la membrane.



*Figure 28. Illustration de principe d'actionnement d'un pont doublement encastré pour obtenir des contraintes planaires.*

Dans cette partie nous analysons le schéma proposé en simulant mécaniquement différentes géométries des ponts doublement encastrés par la méthode des éléments finis.

## 4.1 Objectifs

L'objectif principal de cette étude est, de dimensionner la solution d'actuation alternative proposée, du point de vue mécanique. Cela nous permettra d'évaluer les valeurs moyennes de la contrainte dans la partie active de notre MEMS en fonction de la tension électrique appliquée, et va aussi nous renseigner sur l'homogénéité des contraintes locales ainsi que sur la géométrie optimale pour satisfaire à la condition d'uniaxialité de la contrainte

## 4.2 Choix du logiciel

Il existe plusieurs logiciels commerciaux qui permettent de modéliser les problèmes mécaniques par les méthodes d'éléments finis. Néanmoins, dans notre étude on a besoin d'un logiciel qui puisse effectuer des calculs multiphysiques faisant

appel à des couplages de natures différentes (électrostatique, piézoélectrique, magnétostatique, magnétoélastique ...).

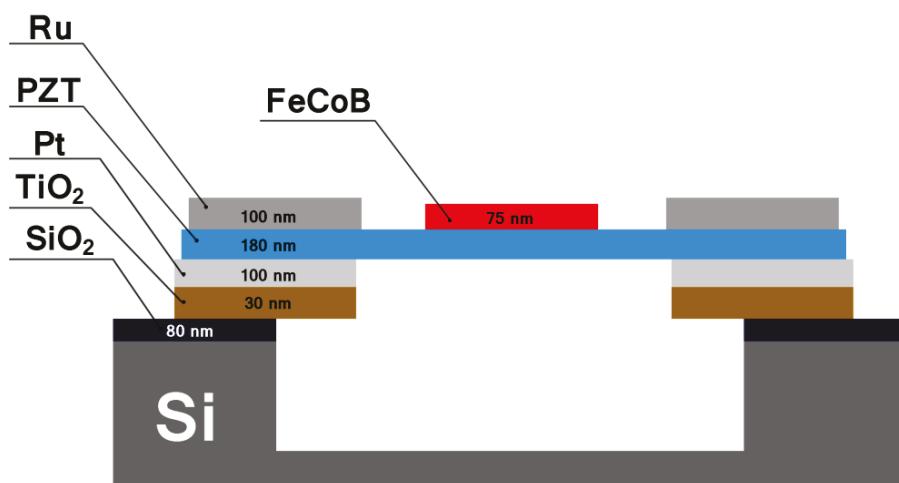
Entre deux principaux concurrents d'aujourd'hui, ANSYS et COMSOL, on a choisi le dernier car il présente plus de souplesse au niveau du couplage de différentes équations aux dérivées partielles et parce qu'il est mieux adapté aux microsystèmes. Ce logiciel possède déjà un module «piézoélectricité» qui est compatible avec les applications MEMS.

Pour pouvoir introduire l'effet magnétoélastique dans nos simulations il fallait développer le module «magnétostriction», ce qui a été fait en couplant le module mécanique « Contraintes/Déformations» au module «AC/DC, Magnétostatique». Nous y reviendrons plus en détails.

### 4.3 Validation du modèle

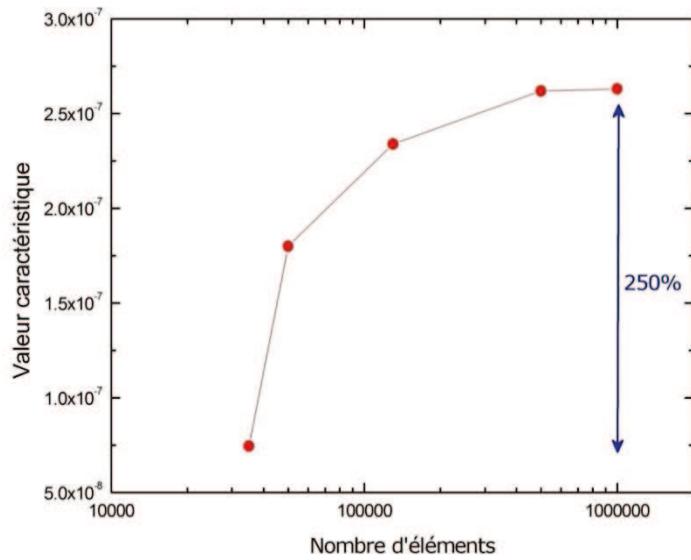
La vue « technologique » simplifiée en coupe du MEMS est présentée sur la Figure 29. La poutre en PZT entre deux électrodes (en Pt et en Ru) est encastrée de deux côtés sur le substrat de Si préalablement oxydé (fine couche de  $\text{SiO}_2$  par-dessus). La cavité sous la poutre fait plusieurs dizaines de microns.

Dans ces simulations on a décidé de modéliser une partie du substrat (Si) dans le but de se rapprocher au maximum de l'objet réel qui va être réalisé en salle blanche. Cette approche est plus lourde mais nous permet de ne pas chercher des conditions de bords équivalentes et qui sont toujours discutables. En tenant compte de la spécificité de l'objet à modéliser (les dimensions en z sont beaucoup plus petites qu'en x et y) il est nécessaire de s'assurer que le maillage soit correct et suffisamment fin pour que la solution converge.

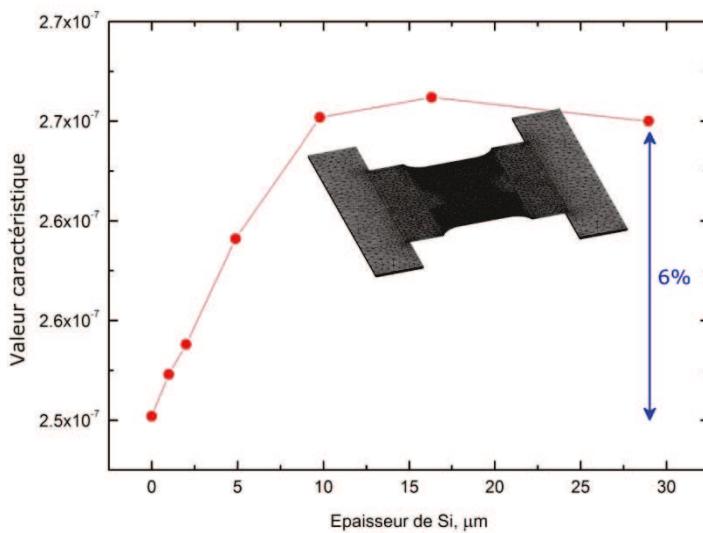


*Figure 29. Vue technologique simplifiée en coupe du MEMS.*

Pour trouver le nombre optimal d'éléments dans le modèle il faut analyser l'évolution de la solution en fonction du maillage. Le maillage final et la convergence de la solution sont présentés sur la Figure 30. Ce maillage comprend les mailles affinées aux différentes interfaces ainsi que la zone active avec la concentration des mailles plus importante. Comme « valeur caractéristique » on a choisi le déplacement d'un plan donné (on moyenne les déplacements de chaque point sur une des extrémités de la zone active). On peut remarquer qu'à partir de 700000 éléments, notre solution se stabilise. Dans la suite des simulations on utilise les maillages avec 650000-800000 éléments.



*Figure 30. Influence du nombre de mailles sur la solution (maillage du modèle).*



*Figure 31. Influence de l'épaisseur de substrat sur la solution.*

Le deuxième point important est de déterminer l'épaisseur optimale de substrat à partir de laquelle la solution ne change plus. Le temps de calcul dépend

fortement de cette épaisseur car le volume du substrat prédomine par rapport au volume de la poutre. D'après les résultats de la Figure 31, on fixe l'épaisseur de Si à 10 µm ce qui permet un gain de temps de 500-1000% par rapport au substrat complet d'épaisseur 500 µm.

## 4.4 Etude de la géométrie

Pour un premier niveau de conception, il est indispensable de définir toutes les propriétés mécaniques des couches qui rentrent dans le modèle. Les principales valeurs nécessaires pour ces simulations sont regroupées dans le Tableau 6 d'après les bases de données du simulateur et la littérature. Nous procèderons plus tard à des caractérisations spécifiques de certaines couches en lien les technologies employées en salle blanche pour affiner le modèle.

*Tableau 6. Propriétés mécaniques des matériaux utilisés*

	Module d'Young (E) GPa	Coefficient de Poisson (v)	Densité ( $\rho$ ) kg/m <sup>3</sup>
Si [COMSOL]	170	0.28	2329
SiO <sub>2</sub> [COMSOL]	70	0.17	2200
TiO <sub>2</sub>	140	0.28	3840
Pt [COMSOL]	168	0.38	21450
Ru [COMSOL]	447	0.25	12100
PZT [LETI]	120	0.35	7500

Il est important de préciser que ce premier niveau de conception ne prend pas en compte d'éventuelles contraintes résiduelles dans les couches. Ces dernières ne sont pas connues au préalable car elles dépendent étroitement du mode de fabrication.

Les paramètres supplémentaires tels que Matrice élastique ( $C_E$ ), Matrice de couplage ( $e$ ) et Permittivité relative ( $\epsilon$ ) qui permettent d'introduire notre matériau piézoélectrique (PZT) sont indiqués ci-dessous :

$$C_E = \begin{pmatrix} 1.926 \cdot 10^{11} & 2.491 \cdot 10^{10} & 2.491 \cdot 10^{10} & 0 & 0 & 0 \\ 2.491 \cdot 10^{10} & 1.926 \cdot 10^{11} & 2.491 \cdot 10^{10} & 0 & 0 & 0 \\ 2.491 \cdot 10^{10} & 2.491 \cdot 10^{10} & 1.926 \cdot 10^{11} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 4.4448 \cdot 10^{10} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 4.4448 \cdot 10^{10} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 4.4448 \cdot 10^{10} \end{pmatrix}, \text{ Pa}$$

$$\mathbf{e} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 10 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 10 & 0 & 0 \\ -5 & -5 & 10 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \text{ C/m}^2$$

$$\boldsymbol{\varepsilon} = \begin{pmatrix} 1200 & 0 & 0 \\ 0 & 1200 & 0 \\ 0 & 0 & 1200 \end{pmatrix}$$

Dans cette étude on se concentre sur deux cas de figures géométriques : la zone active étendue 500x200  $\mu\text{m}$  (largeur d'électrodes 350  $\mu\text{m}$ ) et la zone active étroite 200x500  $\mu\text{m}$  (largeur d'électrodes 650  $\mu\text{m}$ ). De plus, deux types d'encastrement des électrodes sont envisagés : la libération presque complète des électrodes (il reste 15  $\mu\text{m}$  d'encastrement latéral sur le  $\text{SiO}_2$ ) et l'encastrement maximal des électrodes (la partie libérée est de 15  $\mu\text{m}$ ). Les différents cas géométriques sont représentés sur la Figure 32.

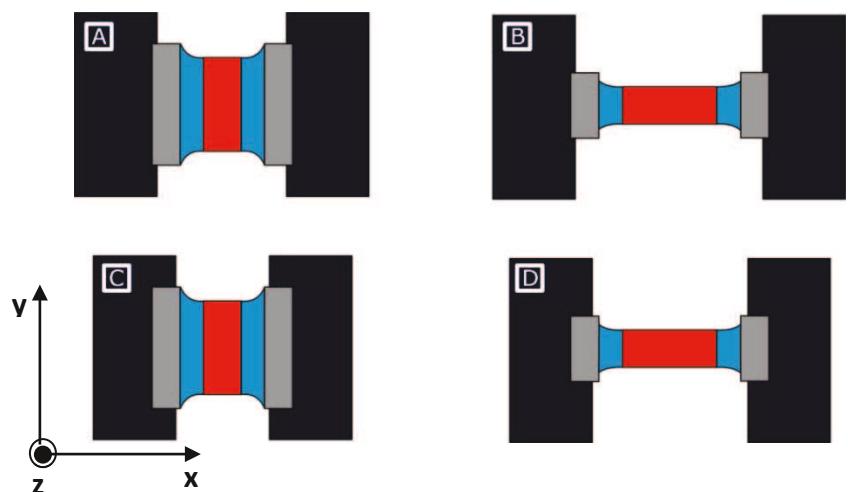


Figure 32. 200x500  $\mu\text{m}$  (B,D) pour l'encastrement minimal (A,B) et maximal (C,D).

Pour des raisons technologiques nous avons conçu deux empilements qui se distinguent par la continuité ou non de l'électrode inférieure sous la poutre. Dans le premier cas l'électrode inférieure est gravée et dans l'autre elle est continue (Figure 33).

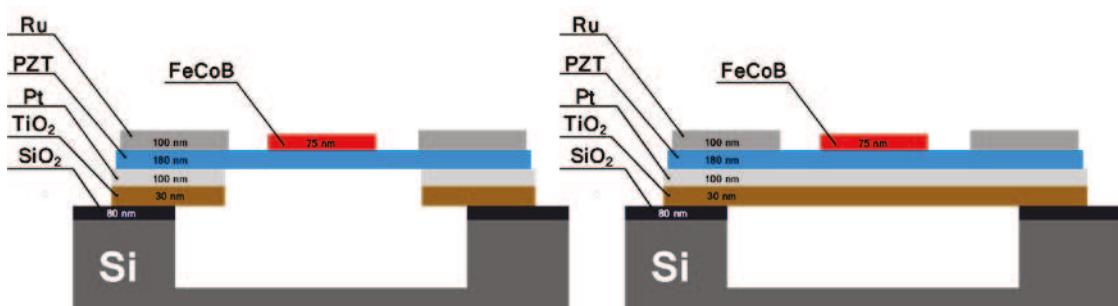


Figure 33. Les empilements étudiés : électrode gravée (à gauche) et électrode continue (à droite).

Dans un premier temps nous allons nous intéresser à l'évolution de la valeur moyenne des contraintes principales  $s_x$  dans la zone active de la poutre en PZT en absence de la couche magnétique. Les résultats de simulation pour différentes configurations géométriques sont présentés sur la Figure 34.

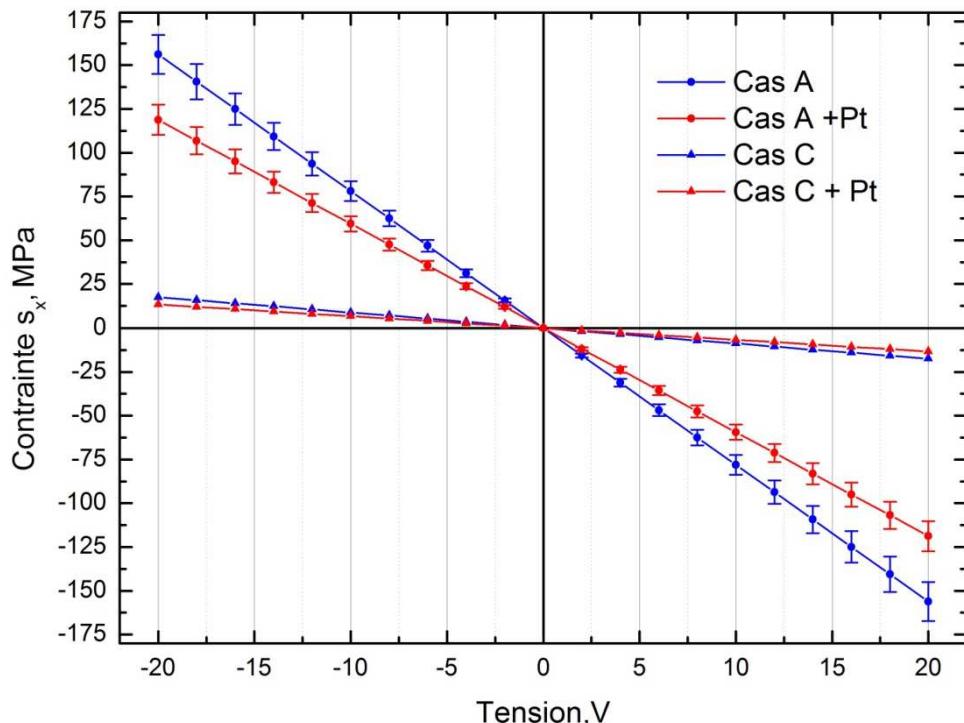


Figure 34. Contraintes principales  $s_x$  en fonction de la tension  $V$  pour différentes configurations géométriques.

Les résultats montrent d'abord qu'il est possible d'atteindre des contraintes d'un niveau important, typiquement 150 MPa pour 20 V, aussi bien tensile que compressive selon le signe de la tension de polarisation. Il est important de préciser que l'on ne se soucie pas ici de problème de dépolariation de la couche piézoélectrique en supposant que son champ coercitif électrique est bien plus élevé que les champs électriques appliquées. Nous verrons que cette hypothèse n'est pas vérifiée dans le cas des dispositifs réels.

Comme attendu, l'encastrement maximal limite de façon très importante la génération de contraintes (1 MPa/V contre 8 MPa/V pour le cas libéré). En revanche, on peut voir que la présence de l'électrode continue de Pt diminue d'environ de 30 % le niveau de contraintes dans la partie active de la poutre, ce qui reste acceptable. En considérant que les électrodes libérées au maximum s'exposent aux risques de fragilisation il faut trouver l'encastrement optimal qui permettra d'avoir le niveau de contraintes satisfaisant et la rigidité indispensable. Les contraintes  $s_x$  doivent dépendre linéairement de la tension appliquée parce qu'on utilise les équations couplées

linéaires et qu'on considère des déformations faibles, ce que l'on retrouve dans ces résultats.

Ensuite, on s'intéresse à la distribution et l'homogénéité des contraintes dans la couche magnétique. Prenons la structure (A) avec la tension appliquée de -10 V comme l'état de base. La Figure 35 montre la distribution des contraintes suivant trois directions, la valeur moyenne des contraintes et la déviation. Il est clair que la géométrie du MEMS permet d'avoir des contraintes assez homogènes et principalement uniaxiales dans l'axe de la poutre (80%, ce qui correspond au rapport entre la contrainte moyenne suivant l'axe  $x$  et celle suivant l'axe  $y$ ). Ainsi les valeurs moyennes des contraintes suivant les directions  $y$  et  $z$  sont d'un ordre de grandeur plus petites que suivant l'axe principal  $x$ .

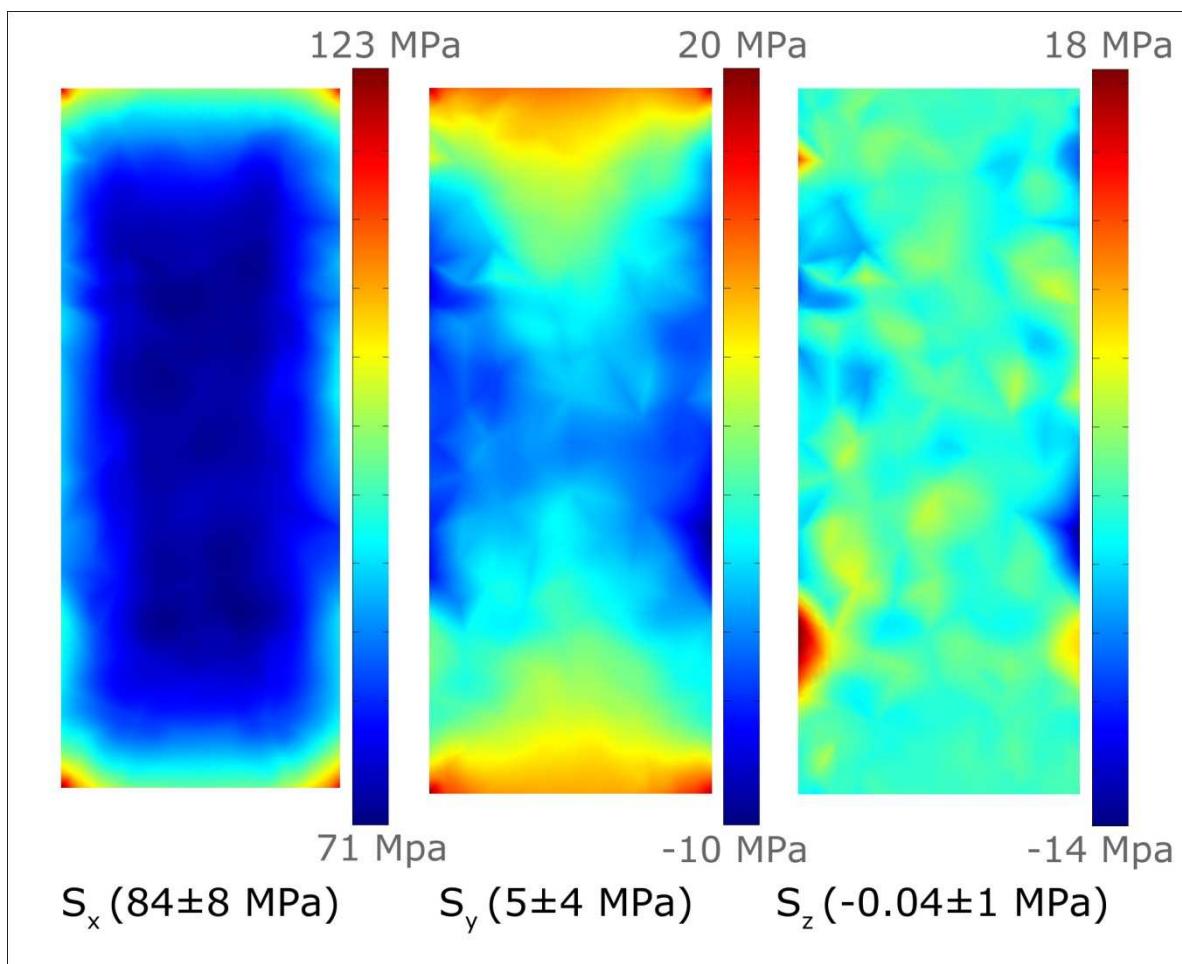


Figure 35. Distribution des contraintes dans la couche magnétique à -10 V (vue de dessus de la zone active de la poutre).

Dans un troisième temps, pour vérifier qu'il n'y a pas de flambage et que les déplacements absolus de la partie active sont raisonnables, on regarde le déplacement selon  $x, y$  et  $z$  au bord de la couche magnétique (Figure 31). Les déplacements maximaux suivant la direction principale  $x$  sont de l'ordre de 40 nm ce qui correspond à 0.05 % de déformation relative à -10 V. En correspondance avec cela on retrouve les

déformations en  $y$  qui sont de même ordre de grandeur en accord avec la matrice d'élasticité de PZT. En revanche le déplacement en  $z$  est relativement faible ( $\sim 13$  nm pour -10 V), surtout par rapport à l'épaisseur totale du multicouche ( $\sim 300$  nm), confirmant que la membrane est bien soumise à des modes de déformation principalement planaires. Toutefois, ces conclusions ne sont que partielles car elles ne tiennent pas compte d'éventuelles contraintes résiduelles qui sont la cause principale du flambage et des déformations des membranes en couches minces.

Enfin, il est nécessaire de comparer les géométries différentes de la zone active pour pouvoir choisir la plus performante. On va donc comparer le **Cas A** et le **Cas B** qui étaient présentés sur la Figure 36. Si l'on s'intéresse uniquement aux valeurs de contraintes suivant l'axe principal on obtient  $S_x=78.1$  MPa ( $\delta=5.6$  MPa) pour le **Cas A** et  $S_x=48.3$  MPa ( $\delta=4.5$  MPa) pour le **Cas B** pour -10V. Cet écart est essentiellement lié à la différence des surfaces des électrodes. La surface des électrodes dans le **Cas A** est plus importante, ce qui permet d'appliquer plus d'énergie mécanique sur la partie active dont la raideur est plus grande pour le **Cas A**.

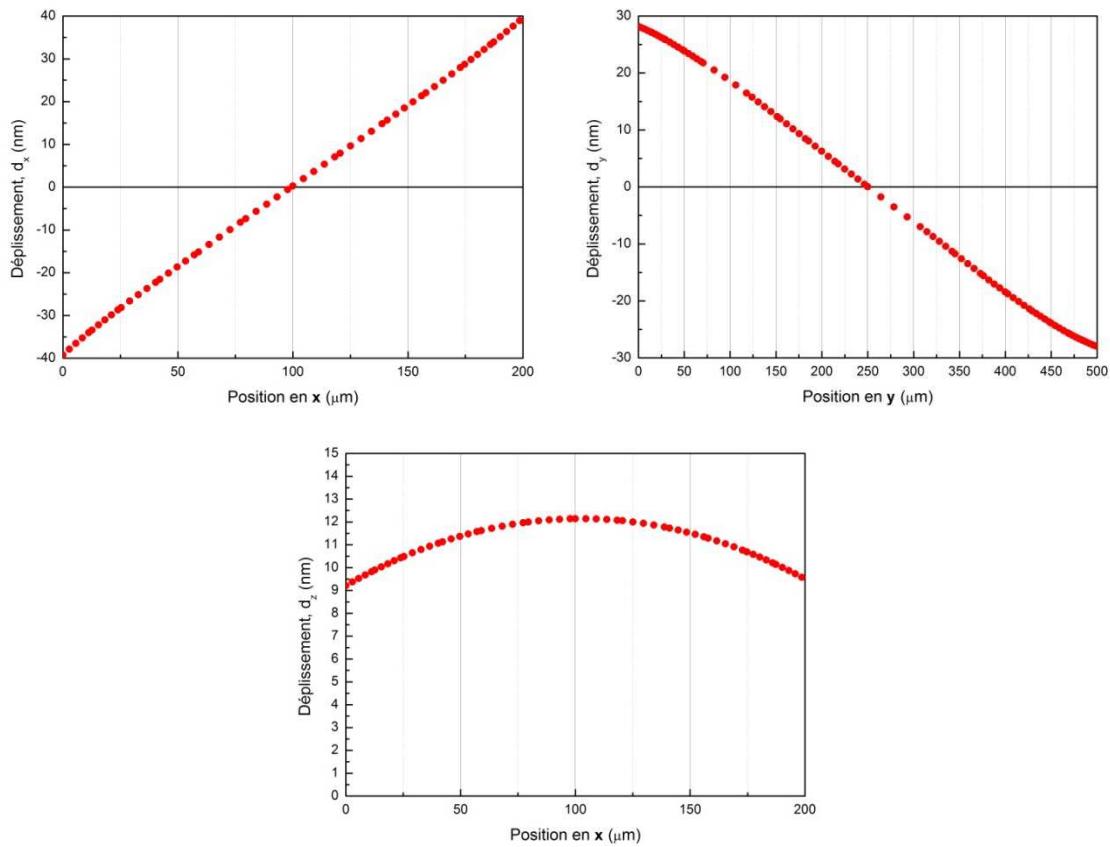


Figure 36. Déplacement du bord de la zone active suivant les directions  $x$ ,  $y$  et  $z$

Tous ces calculs ont été effectués en utilisant les mêmes paramètres mécaniques pour chaque cas de figure. Il est évidant qu'en fonction de la façon de synthétiser le ou les matériaux on va avoir différentes propriétés mécaniques. Donc, il est

indispensable d'évaluer l'effet de variations de ces paramètres mécaniques sur les performances du dispositif.

## 4.5 Influence des paramètres mécaniques

En faisant varier les propriétés mécaniques du PZT dans la partie active on modélise une situation tout à fait réaliste où les propriétés du matériau dépendent fortement des conditions de croissances (nature de la sous-couche, paramètres de dépôt et de recuit). Ainsi, les variations des contraintes principales en fonction des variations possibles du module d'Young du PZT sont présentées dans le tableau ci-dessous.

E (GPa)	S <sub>x</sub> (Mpa)	δ (Mpa)
50	30.0	1.1
120	78.1	5.6
200	90.3	6.6

On observe une augmentation quasi-linéaire des valeurs de la contrainte avec le module d'Young ce qui correspond aux lois de déformations élastiques (lois de Hooke). Par conséquent, il est possible d'optimiser le niveau de contraintes nécessaire en adaptant les propriétés mécaniques des matériaux (principalement le PZT) qui sont présents dans la partie active.

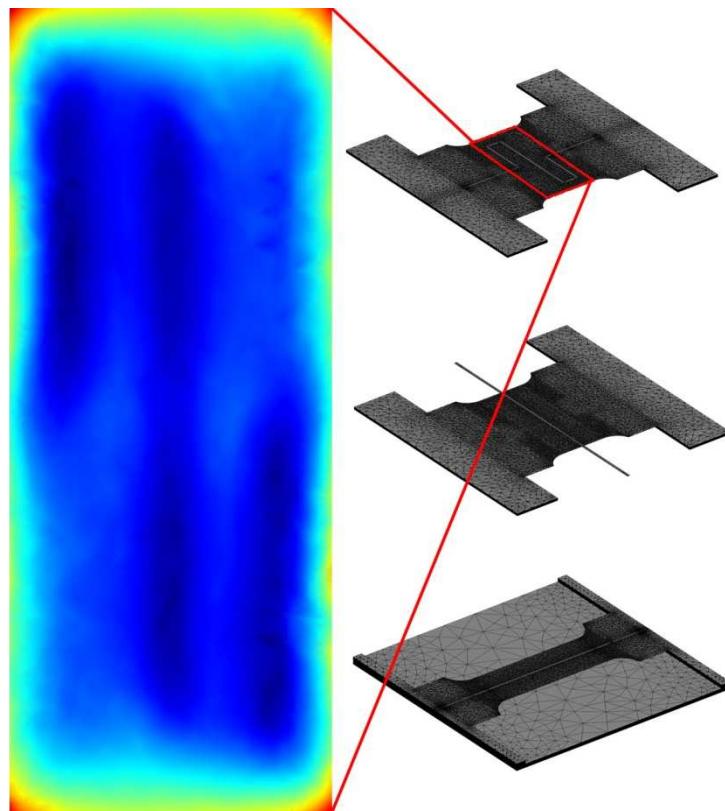
Par ailleurs, le matériau utilisé pour les électrodes peut être modifié. Par exemple au lieu d'utiliser une « bottom » électrode en Pt on l'a remplacé par une électrode en Ru dont le module d'Young est environ trois fois plus élevé que celui du Platine. Les simulations montrent que la différence sur la valeur des contraintes principales se limite à un gain de + 10 à 15 %, ce qui n'est pas très significatif. Ceci est principalement dû à la différence d'épaisseur entre la sous couche (100 nm) et le PZT (200 nm).

## 4.6 Système complet avec couche magnétique et ligne RF

Finalement, on réalise la modélisation mécanique complète en rajoutant le niveau supérieur d'or (ligne RF) dans le but d'estimer les performances mécaniques du système intégral. Trois cas différents ont été examinés. Pour chaque géométrie d'électrodes une ligne RF parallèle à l'axe longitudinal de la partie active a été analysée, ainsi que, pour le **Cas A**, une variante de la ligne RF en méandre a été

évaluée (Figure 37). Les paramètres géométriques de la ligne RF ont été définis conformément aux limitations électriques (largeur – 10 µm, épaisseur – 500 nm). Les propriétés mécaniques de l'or sont:  $E = 70 \text{ GPa}$ ,  $\nu = 0.44$ .

Vu que la surface de la ligne RF est relativement petite par rapport à la surface de la zone active et que l'or est un matériau très mou l'impact de cette couche sur le contrainte principale est assez faible. Dans le cas de méandre on observe une diminution de 7-15% des contraintes principales en comparaison avec la structure sans ligne RF.



*Figure 37. Différentes types de géométries de la ligne RF et un exemple de distribution des contraintes pour le cas de méandre*

## 4.7 Conclusion

Les simulations FEM réalisées nous ont permis de valider le schéma alternative de génération des contraintes planaires grâce à deux capacité MIM et un pont-concentrateur. Nous avons montré que les tensions électriques modérées (de l'ordre d'une dizaine de volts) peuvent générer des contraintes homogènes de plusieurs dizaines de MPa (la valeur maximale est de 150 MPa à 20 V). En fonction de la

géométrie choisie la sensibilité varie de 1 MPa/V jusqu'à 8 MPa/V. L'impact de la nature des électrodes, leurs propriétés mécaniques et les propriétés de PZT est discuté. La qualité du PZT reste le paramètre clé pour obtenir le couplage optimale.

Ces résultats sont encourageants pour la partie mécanique mais il reste des nuances concernant les « vrais » valeurs des propriétés mécaniques de couches utilisées et également l'influence des contraintes résiduelles qui n'étaient pas pris en compte.

Dans le chapitre suivant, nous allons regarder les propriétés microstructurales des différentes couches qui seront utilisées dans la fabrication du dispositif final. Dans un premier temps nous vérifions si les valeurs choisies pour les simulations sont en accord avec les mesures sur les couches minces. Puis, nous verrons l'impact de différentes conditions de synthèse du PZT sur sa qualité.

# 5. Caractérisation Microstructurale

Les matériaux en couches minces sont de plus en plus utilisés dans la microélectronique et notamment dans les MEMS mais leurs procédés de fabrication varient beaucoup. Cela nécessite une compréhension avancée des propriétés mécaniques en fonction de la technique d'élaboration et des traitements thermiques ultérieurs. Ici, on présente les mesures de nanoindentation sur des couches minces de PZT obtenues par la technique sol-gel sur les substrats Si/SiO<sub>2</sub> (les détails sur le procédé de fabrication seront présentés). De plus les propriétés mécaniques de toutes les couches qui sont présentes dans la structure finale ont été étudiées (SiO<sub>2</sub>, Ru, CoFeB). La technique de nanoindentation est un des moyens les plus simples pour évaluer le module élastique biaxial et la dureté des couches minces.

## 5.1 Nanoindentation

Les mesures ont été effectuées en utilisant le Nanoindenteur MTS XP avec le module de contact dynamique (dynamic contact module - DCM) et l'option de mesure continue de rigidité (continuous stiffness measurement - CSM). La pointe utilisée était de type Berkovich avec un rayon de bout autour de 50 nm. Avant chaque mesure le système était entièrement recalibré en comparant la mesure sur de l'oxyde de silicium thermique avec les données de référence. L'expérience commençait par la détection de la surface, puis l'échantillon a été chargé avec le stress maximal (la vitesse de charge 0.05 1/s, fréquence des oscillations du substrat 75 Hz) pour la durée d'exposition de 10 s. Ensuite, l'échantillon a été déchargé jusqu'à 10% de la charge maximal pendant 20 s dans le but de corriger les fluctuations thermiques. Finalement, la décharge de l'échantillon se poursuivait en continu. 25 mesures ont été faites pour chaque empilement en question. Ensuite les résultats ont été triés et moyennés pour la détermination des paramètres mécaniques.

Pour les matériaux isotropes on peut calculer le module de Young et la dureté à partir des courbes charge-déplacement grâce à la méthode analytique développée par Oliver et Pharr [Oliver 1992]. Cependant, pour les matériaux anisotropes, tel que le PZT, les propriétés mécaniques peuvent être exprimées par le module d'indentation et la dureté.

La dureté H (GPa) est généralement estimée à partir de l'équation suivante :

$$H = \frac{P}{A},$$

où P (N) est la charge et A ( $\text{m}^2$ ) est la projection de la surface de contact.

Vlassak et Nix [McElhaney 1998] ont proposé de définir le module d'indentation M (GPa) comme :

$$E_r = \frac{\sqrt{\pi}}{2\beta} \frac{S}{\sqrt{A}},$$

$$M = \left[ \frac{1}{E_r} - \left( \frac{1 - \nu_i^2}{E_i} \right) \right]^{-1},$$

où S (N/m) est la rigidité de contact mesurée par l'instrument; A ( $\text{m}^2$ ) est la projection de la surface de contact;  $E_r$  (GPa) est le module élastique réduit;  $\beta$  est égal à 1.034 pour la pointe Berkovich;  $E_i$  et  $\nu_i$  correspondent aux propriétés mécaniques de la pointe et sont égales à 1171 GPa et 0.07 respectivement.

*Tableau 7. Les échantillons qui ont été sélectionnés pour les mesures de nanoindentation.*

Matériaux	Epaisseur, nm	T recuit, °C	TiO <sub>2</sub>	Epaisseur SiO <sub>2</sub> , nm
SiO <sub>2</sub>	500	-	-	-
Ru	150	-	-	500
CoFeB	150	-	-	500
PZT (T15)	180	650	optimisé+Pt (100 nm)	600
PZT (T15)	180	650	optimisé	600
PZT (T18)	180	650	optimisé	80
PZT (T20)	180	650	optimisé	160
PZT (T16)	180	650	ancien	600
PZT (T17)	180	650	ancien	80
PZT (T19)	180	650	ancien	160
PZT (T15)	180	700	optimisé+Pt (100 nm)	600
PZT (T15)	180	700	optimisé	600
PZT (T18)	180	700	optimisé	80
PZT (T20)	180	700	optimisé	160
PZT (T16)	180	700	ancien	600
PZT (T17)	180	700	ancien	80
PZT (T19)	180	700	ancien	160

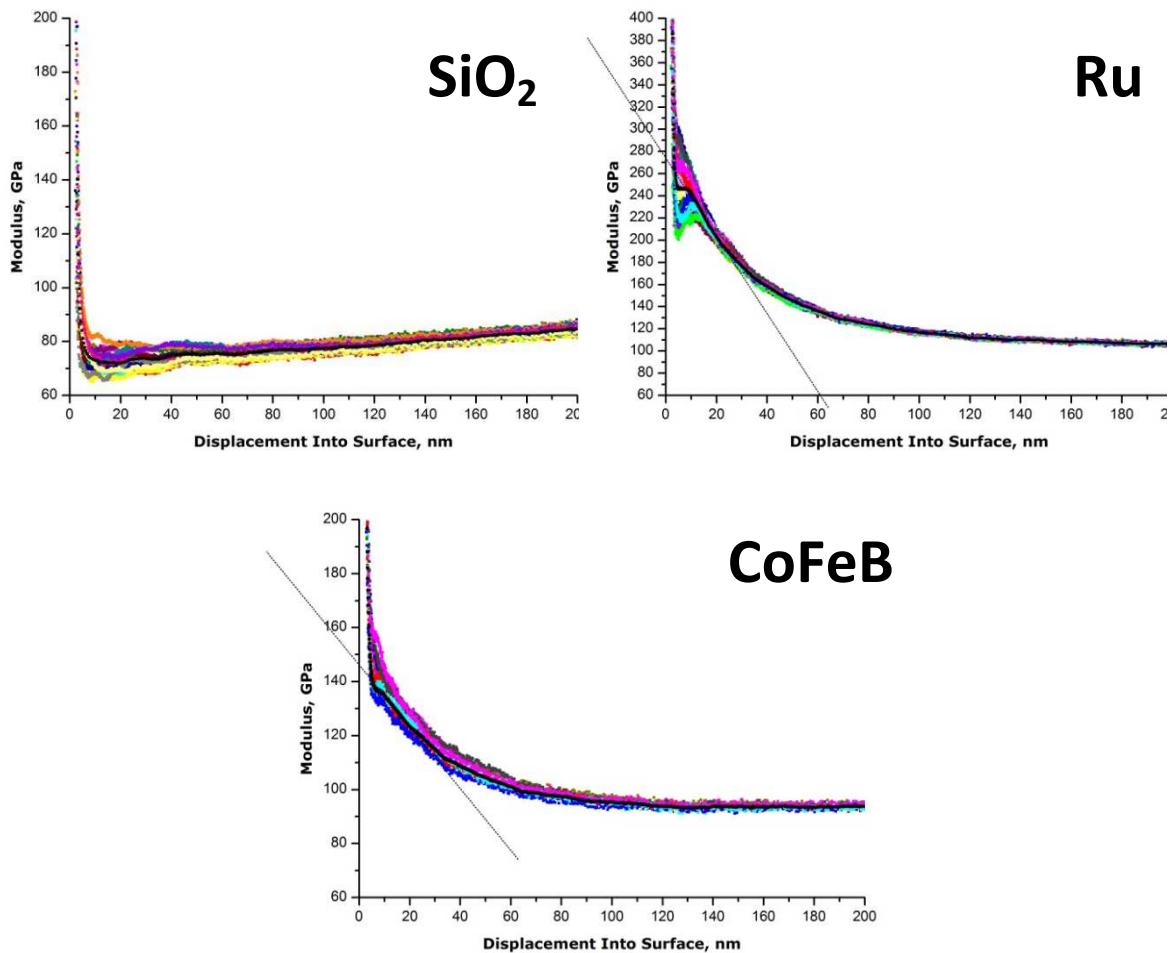
Les échantillons préparés pour la nanoindentation sont présentés dans le Tableau 7. Tout d'abord la couche de référence de  $\text{SiO}_2$  a été étudiée dans la mesure où nous utilisons systématiquement des wafers de silicium oxydés thermiquement (l'épaisseur peut varier). Ensuite, les matériaux des électrodes (magnétique et électrique) ont été testés. Dans le deux cas la couche à examiner a été déposée sur le substrat de  $\text{Si}/\text{SiO}_2$  (500nm). Les mesures se poursuivaient avec l'étude essentielle des propriétés mécaniques du PZT en fonction de la température de recuit et de l'empilement.

Deux températures de recuit ont été analysées (650 et 700°C), ainsi que deux types de sous-couches : le cas classique avec PZT déposé sur  $\text{Pt}/\text{TiO}_2$  et le cas inhabituel où le PZT est directement déposé sur  $\text{TiO}_2$ . Concernant le substrat, différentes épaisseurs de  $\text{SiO}_2$  ont été utilisées correspondant à différentes données technologiques.

#### a. *Couches de $\text{SiO}_2$ , Ru et CoFeB*

La Figure 38 présente les jeux de courbes typiques pour la mesure de module élastique réduit (module d'indentation) sur les couches de  $\text{SiO}_2$ , Ru et CoFeB (non recuites) qui rentreront dans la constitution de l'empilement final. La caractérisation par la méthode de nanoindentation se complique pour les couches d'épaisseur inférieure à 200 nm car l'influence de substrat devient importante. Cela se manifeste clairement sur les graphes présentés. Pour les profondeurs entre 20 et 80 nm on observe la variation assez considérable de module d'indentation qui tend vers la valeur correspondant à la sous-couche (en général  $\text{SiO}_2$ ) pour les fortes profondeurs. Les valeurs de module d'indentation pour les premiers 10 nm ne sont pas représentatives vu que la surface de contact est trop faible et il est difficile de déterminer la projection de l'empreinte. Par ailleurs, la reproductibilité des courbes indique à la fois la qualité des dépôts et la conformité des mesures.

La mesure de module d'indentation pour une couche de 500 nm de  $\text{SiO}_2$  donne la valeur autour de 80 GPa, ce qui correspond aux valeurs précédemment communiquées dans les références. D'autre part, pour estimer le module d'indentation des couches moins épaisses (150-200 nm) on détermine la valeur de la tangente à l'origine pour la gamme de profondeurs caractéristiques à cette couche (20-60 nm). Cette méthode nous permet d'estimer le module d'indentation du Ru et du CoFeB à 275 GPa et 146 GPa, respectivement.



*Figure 38. Module d'indentation en fonction de la profondeur de pénétration de la pointe de Berkovich pour trois couches mesurées ( $\text{SiO}_2$ , Ru, CoFeB).*

### b. Couches de PZT

Dans cette partie, nous nous sommes intéressés à l'impact du recuit de cristallisation sur le PZT en fonction de la nature de la sous-couche. Les propriétés mécaniques de la couche sont aussi regardées à part et peuvent indiquer des particularités liées aux conditions de la cristallisation. Comme exemple, on peut comparer les courbes de nanoindentation pour le PZT cristallisé à 700°C sur électrodes de Pt/TiO<sub>2</sub> (température de cristallisation typique) et sur TiO<sub>2</sub> seul (Figure 39). La différence est marquante. Les courbes correspondantes au PZT sur Pt sont bien groupées, tandis que pour le PZT sur TiO<sub>2</sub> il y a une dispersion flagrante qui est probablement liée aux défauts de densification au cours de la cristallisation.

Les données récapitulatives concernant les propriétés mécaniques des couches étudiées sont présentées dans le Tableau 8. Le module d'indentation moyen obtenu pour les couches minces de PZT est autour de 145 GPa, ce qui correspond aux valeurs trouvées dans les références [Wu 2008].

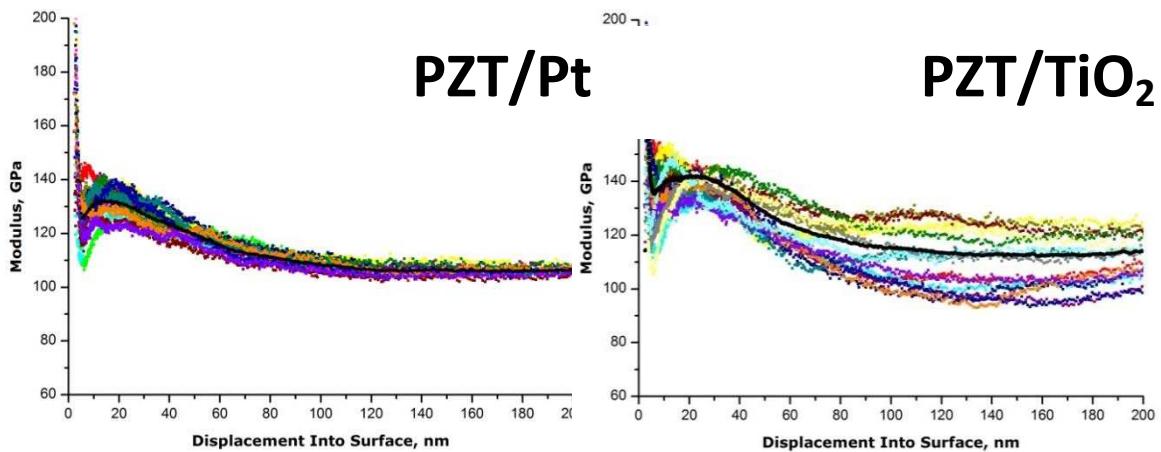


Figure 39. Module d'indentation en fonction de la profondeur pour le PZT déposé sur électrode de Pt/TiO<sub>2</sub> et sur la sous-couche de TiO<sub>2</sub> seule.

On constate que sur électrode de Pt/TiO<sub>2</sub>, l'augmentation de la température de recuit de 650°C à 700°C s'accompagne d'une baisse significative du module et d'une augmentation de la dureté. On observe l'inverse dans le cas du dépôt de PZT sur TiO<sub>2</sub>. Ces grandeurs dépendent au premier ordre de la densité et de la composition chimique résultant après recuit. On peut raisonnablement penser qu'une augmentation de module d'intention est corrélée avec une augmentation de densité (réduction de porosité) et qu'une diminution de la dureté traduit ici une réduction de la teneur en plomb. Ainsi, on note que les valeurs des paramètres mécaniques du PZT déposé sur Pt/TiO<sub>2</sub> à 650°C et du PZT déposé sur TiO<sub>2</sub> à 700°C sont très proches, ce qui indiquerait que densité et composition sont similaires. Ce résultat est donc très encourageant indiquant à terme la possibilité d'utiliser des électrodes de platine non continue (structurées).

Tableau 8. Propriétés mécaniques (module d'indentation et dureté) de couches étudiées déterminées à partir du modèle d'Oliver et Pharr.

Matériaux	Module d'indentation, GPa	Dureté, GPa
SiO <sub>2</sub>	77	9,9
Ru	275	17,2
CoFeB	146	11,1
PZT/Pt_650_SiO <sub>2</sub> 600	154	7,8
PZT/Pt_700_SiO <sub>2</sub> 600	142	10,1
PZT/TiO <sub>2</sub> _650_SiO <sub>2</sub> 600	139	9,5
PZT/TiO <sub>2</sub> _700_SiO <sub>2</sub> 600	158	8,1
PZT/TiO <sub>2</sub> _700_SiO <sub>2</sub> 80	150	10,0
PZT/TiO <sub>2</sub> _700_SiO <sub>2</sub> 160	148	10,1

Il semble donc que la cristallisation optimale du PZT soit sensiblement décalée vers les plus hautes températures en l'absence de Pt sans impact préjudiciable ici. Le

recuit étant fait par chauffage infrarouge (RTA), on peut penser que cet écart est imputable aux différences de transparence et reflectivité aux IR. On peut suspecter aussi que la volatilité du PbO et la diffusion du Pb sont déjà partiellement en cause à 700°C et que des écarts à la stœchiométrie deviennent probables.

Le cas du dépôt direct sur TiO<sub>2</sub> est le plus critique. Il est alors préférable de baisser la température de recuit du PZT (650°C) afin de densifier correctement la couche (dureté autour de 10 GPa) et ne pas trop s'écartez de la composition stœchiométrie. Enfin, on remarque que l'effet de l'épaisseur de la couche de SiO<sub>2</sub> sur le substrat n'est significatif qu'au-delà de 600 nm (maximum de module et minimum de dureté), en deça les épaisseurs ne sont plus effectives en termes de barrière de diffusion comme semblent l'indiquer les valeurs significativement plus faibles pour le module et plus élevées pour la dureté.

## 5.2 AFM

Afin de compléter les mesures de nanoindentation on a obtenu des images AFM pour quelques empreintes laissées par la pointe de Berkovich sur la surface des couches. Vu que la profondeur de l'empreinte est importante (200-400 nm) on a choisi la surface de visualisation assez large (25 µm<sup>2</sup>) et le mode de balayage à basse fréquence (dans le but de ne pas fausser l'image topographique).

Les trois cas des images AFM typiques sont présentés sur la Figure 40. Pour le CoFeB on obtient l'empreinte quasi-idéale sans débordement. On remarque également que la rugosité de surface est faible (1-2 nm) ce qui est corrélé à la nature amorphe de ce matériau. A l'inverse, concernant le PZT la rugosité est nettement plus marquée (20-25 nm) due à la nature polycristalline (colonnaire) du matériau. On observe effectivement une différence prononcée entre les gros grains (d'environ 0.5 µm de diamètre) pour le PZT cristallisé sur Pt et la structure beaucoup plus fine pour le PZT sur TiO<sub>2</sub>. Cela confirme que le PZT est « mieux » cristallisé sur Pt et présente un caractère plus dense (associé à un module plus grand).

On peut également ici tenter de corrélérer la diminution de la dureté observée précédemment à la taille de grain, en invoquant une loi de Hall-Petch inversée (dureté inversement proportionnelle à la taille de grain) [Schiotz 1998]. Dans ces conditions, l'hypothèse d'une perte de Pb significative à 700°C en l'absence de Pt tient moins et l'effet sur la dureté serait d'avantage imputable à une différence de taille de grains avec et sans Pt.

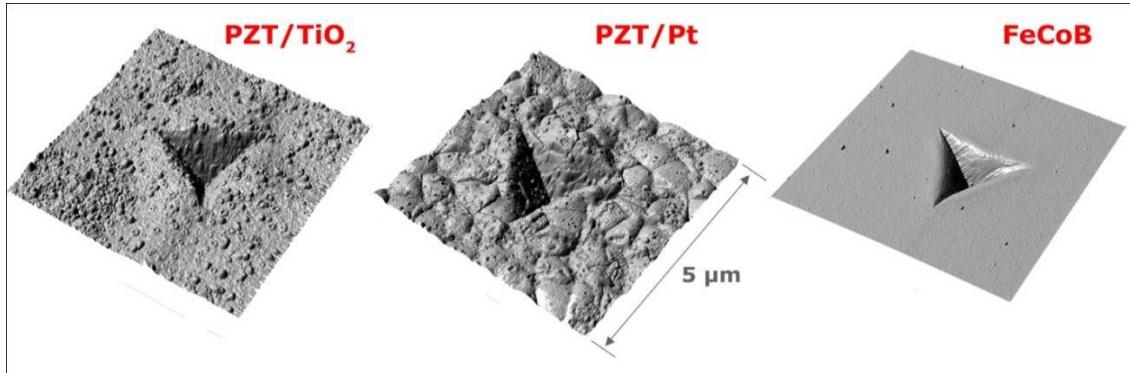


Figure 40. Les images AFM des empreintes après la mesure de nanoindentation pour différentes couches étudiées (dans les deux cas le PZT est recuit à 700°C).

Par ailleurs, on note que le phénomène de peeling-up (débordement de la matière) est peu prononcé dans le cas du film amorphe de CoFeB et plus important dans le cas des films polycristallins de PZT. La Figure 41 qui montre les profils topographiques de l'empreinte pour le PZT déposé sur Pt et sur TiO<sub>2</sub>. Le débordement du PZT est considérable dans les deux cas, mais il se manifeste beaucoup plus pour le dépôt sur Pt. Cela peut être expliqué par le fait que la taille des grains de PZT sur Pt est comparable avec la taille de la pointe ce qui facilite le déplacement des dislocations et augmente la mobilité des plans de glissement. Au final le matériau s'expose plus facilement aux déformations plastiques.

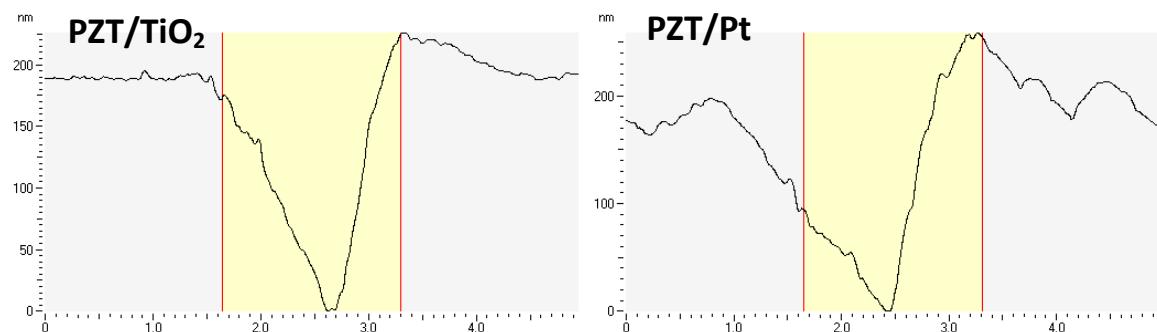


Figure 41. Profil topographique de l'empreinte laissée par la pointe de Berkovich

### 5.3 XRD

Nous allons dans cette partie analyser par diffraction de rayons X (XRD) la qualité de cristallisation du PZT et les contraintes internes dans les couches de TiO<sub>2</sub>/Pt et de PZT en fonction des conditions de dépôt et de recuit. Les scans  $\theta/2\theta$  sont réalisés sur le diffractomètre Panalytical X'Pert PRO équipé avec le tube de Cu, un

monochromateur de faisceau incident en Ge(111) ( $\lambda = 1.5406\text{\AA}$ ) et le détecteur X'Celerator.

### a. *Texture*

Les mesures XRD montrent clairement l'apparition des raies principales de diffraction caractéristiques du PZT cristallisé, correspondants à <100>, <101>, <111> et <200> (Figure 42), dès 650°C. On observe une seule phase pérovskite (forte permittivité) sur tous les échantillons, ce qui n'exclut pas le mélange avec une phase amorphe (faible permittivité) qui n'est pas détectable ici. Globalement on peut remarquer que la présence de Pt favorise la texturation <100> de la couche de PZT, tandis que le PZT déposé directement sur TiO<sub>2</sub> est principalement texturé <110>. D'après [Defaÿ 2007], un excès en PbO favoriserait la texture <100> au détriment des textures <110> et <111>; on peut donc penser que les couches de PZT déposées sur TiO<sub>2</sub>/Pt conservent une teneur en Pb plus élevée, ce qui va dans le sens des résultats précédents. On constate aussi généralement que la croissance directe sur TiO<sub>2</sub> tend à favoriser la texture <111>, ce que nous ne pouvons conclure clairement ici. En effet, on voit qu'en présence de Pt, l'observation de la raie <111> du PZT devient difficile. En effet, on est gêné par la présence du pic Pt <111> à 36° associé à la longueur d'onde CuK<sub>β</sub> de la source et plus encore par un pic parasite Pt <111> à 38° correspondant à la raie L du Tungstène (W). L'origine de cette raie est due à une pollution de la source Cu. Il est difficile par conséquent de voir l'impact de la nature de l'électrode sur la raie <111> du PZT. Néanmoins, cette dernière semble rester minoritaire dans tous les cas.

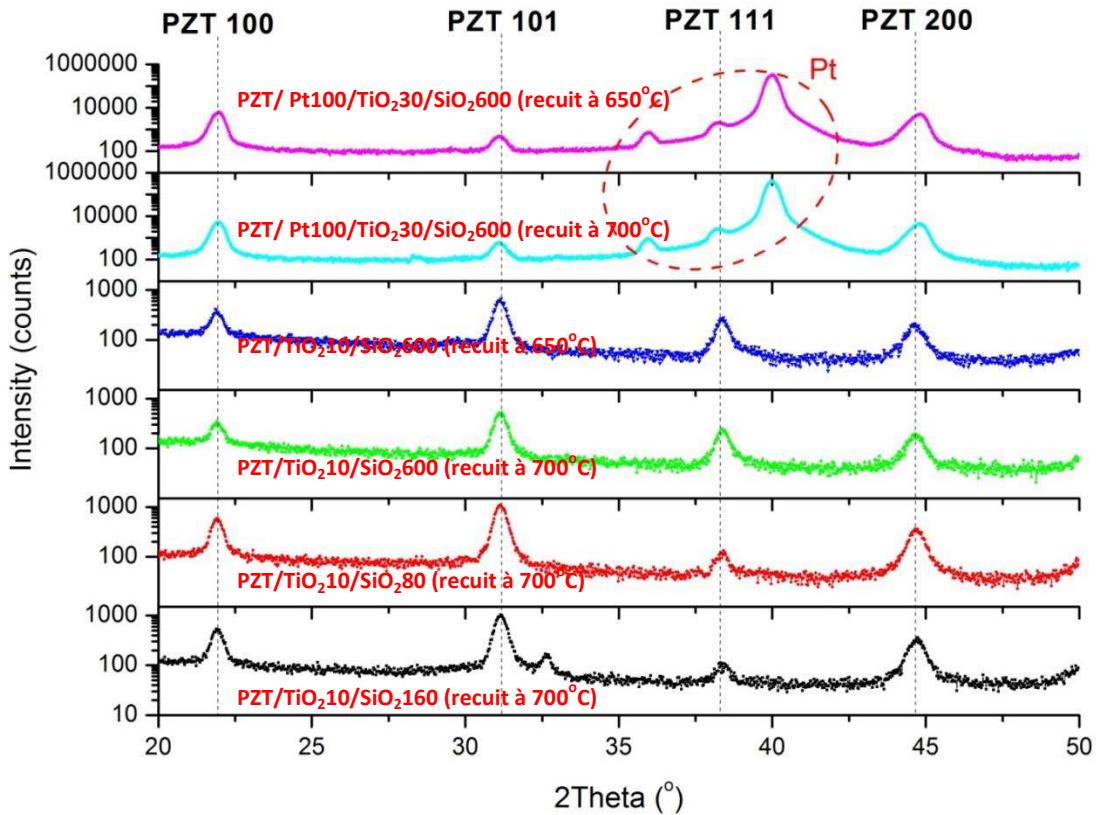


Figure 42. Courbes  $\vartheta$ - $2\vartheta$  de diffraction XRD du PZT déposé sur Pt et sur  $TiO_2$ .

Afin de compléter cette étude réalisée sur des échantillons « pleine tranche », des mesures locales en XRD ont été effectuées sur les objets microstructurés (patterned) en cours de fabrication (Figure 43). Dans l'ensemble, on retrouve les mêmes profils que dans le cas des dépôts plein tranche. Les zones où le PZT est déposé sur l'électrode complète de Pt (structures type « Pyr ») sont texturées majoritairement  $<100>$ , alors que les zones où le PZT est déposé directement sur  $TiO_2$  (structures « Rec ») sont majoritairement texturées  $<110>$ . On observe également l'apparition d'un pic supplémentaire autour de  $28^\circ$  qui correspond à l'intégration d'une couche de Si poly. Pour la réalisation de la cavité sous la membrane et qui n'est pas présente sur les échantillons témoins.

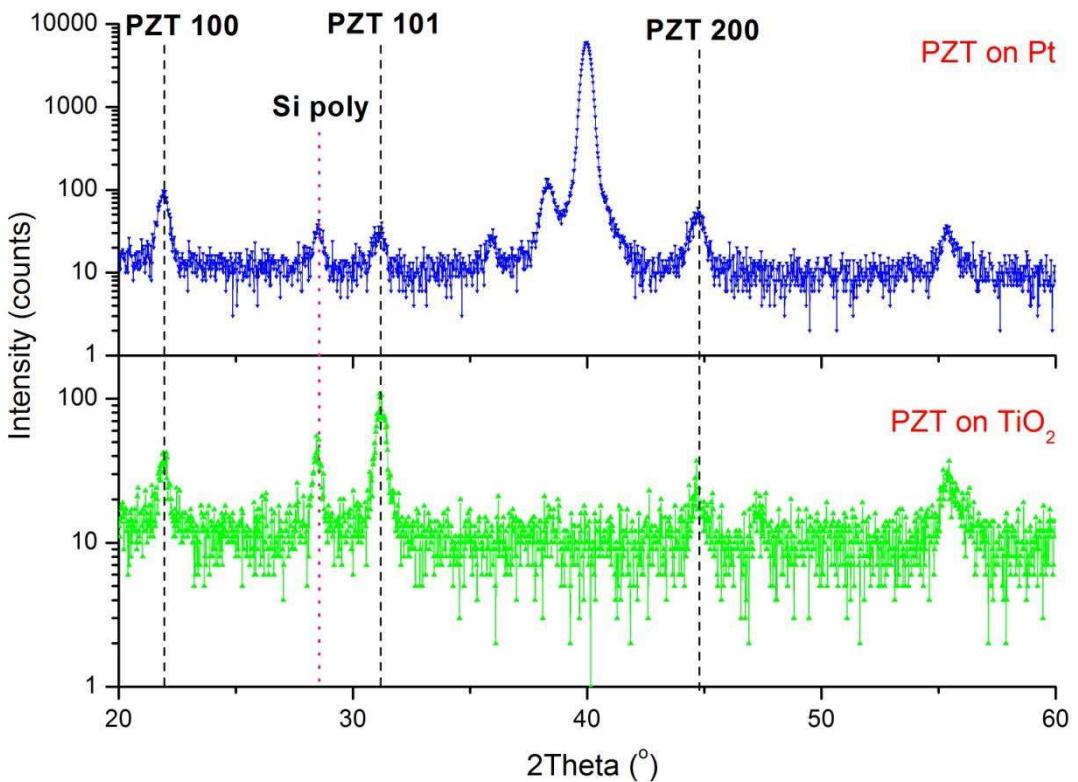


Figure 43. Courbes  $\vartheta$ - $2\vartheta$  de diffraction locale XRD obtenues sur les motifs gravés.

### b. Tailles des grains

La taille des grains (ou plus exactement la hauteur des grains) peut être estimée à partir de la formule de Debye-Scherrer. Ainsi, la moyenne des tailles de grains du PZT recristallisé sur  $\text{TiO}_2/\text{Pt}$  est d'environ 33 nm. En l'absence de Pt, la valeur est légèrement plus faible autour 28 nm. L'épaisseur des couches étant de l'ordre de 180nm, on en déduit que les grains sont plutôt de nature équiaxe que colonnaire. On remarquera que ces valeurs sont du même ordre de grandeur que celle des monocouches déposées par Sol gel qui composent le film (soit 3 couches de 60nm). Dans les deux cas, le passage de 650°C à 700°C se traduit par une tendance à l'augmentation de la taille de grains mais dans une proportion modérée (~10%). D'après l'observation AFM à la surface de l'échantillon cristallisé sur  $\text{TiO}_2/\text{Pt}$ , il semble que les grains grossissent de préférence latéralement (diamètre ~500 nm) et non selon l'épaisseur. Le nombre de séquence de dépôt de monocouches au moment du spinning semblerait donc déterminant quant à la hauteur des grains du PZT.

### c. Contraintes

La problématique des contraintes est cruciale car l'objet que nous étudions est constitué en partie d'une membrane PZT suspendue. Deux variantes de membrane sont réalisées :

1. PZT180nm/Pt100nm/TiO<sub>2</sub>10nm/SiO<sub>2</sub>160nm (procédé standard)
2. PZT180nm/TiO<sub>2</sub>10nm/SiO<sub>2</sub>160nm (procédé hors standard)

La compréhension des contraintes résiduelles de la membrane exige une analyse individuelle de chaque couche la constituant et dans les conditions réelles (simulation du bilan thermique). L'ensemble des échantillons étudiés est listé dans le tableau n°3.

Concernant la mesure des contraintes internes, on présente ici deux méthodes différentes. Dans le cas de PZT nous avons utilisé la méthode classique du « sin<sup>2</sup>ψ » (c'est-à-dire scan d'un même plan *hkl* à plusieurs ψ) où ψ est l'angle entre le vecteur de diffraction et la normale par rapport à la surface de l'échantillon. Cette méthode se base sur deux hypothèses. Premièrement, les contraintes sont biaxiales et macroscopiques. Deuxièmement, les propriétés élastiques sont supposées être isotropes et indépendantes de la famille de plan *hkl*. Comme paramètres de départ on utilise le module d'Young *E* du matériau et son coefficient de Poisson *v*. Cette méthode permet d'extraire la contrainte et le paramètre de maille libre de contrainte ici dans le cas des mailles orthorhombiques (phase pérovskite). La mesure est faite sur la raie <112> du PZT à ~55°. L'équation finale se présente dans la forme suivante :

$$\varepsilon = \frac{1+\nu}{E} \sigma \sin^2 \psi - \frac{2\nu}{E} \sigma ;$$

$$\sin^2 \psi_0^{free-stress} = \frac{2\nu}{1+\nu},$$

où ε est la déformation de la maille, *E* est module d'Young, *v* est coefficient de Poisson et σ est la contrainte biaxiale.

Pour la contrainte dans le Pt on exploite une autre méthode qui prend en compte l'anisotropie élastique en supposant également que les contraintes sont biaxiales. Cette méthode est connue sous le nom de la méthode du groupe cristallin (crystallite group method). La mesure se fait en utilisant une lentille multicapillaire qui donne un faisceau quasi-monochromatique *Kα*<sub>1</sub>/*Kα*<sub>2</sub> et ponctuel. L'optique secondaire est un collimateur plat parallèle (tolérance 0.27°) avec le détecteur ponctuel et analyseur en graphite. Vu que le Pt est fortement texturé <111>, pour les mesures de contraintes on utilise la raie <222> pour deux angles d'inflexion différents (ψ = 0° et ψ = 70.5°). Dans le cas de la texture <111> la dépendance de la contrainte en fonction de l'angle ψ est donnée par l'équation suivante :

$$\varepsilon_\psi = (2S_{12} + \frac{1}{2}S_{44} \sin^2 \psi + \frac{2}{3}S_0)\sigma,$$

où  $S_0 = S_{11} - S_{12} - S_{44}/2$ ,  $S_{11}$ ,  $S_{12}$  et  $S_{44}$  sont les constantes élastiques pour le monocristal. Les constantes élastiques du Pt monocristallin ont été prises dans la référence [Frederikse 2006] :

<b><math>C_{11}</math></b>	3.47E+05	<b><math>S_{11}</math></b>	7.34E-06
<b><math>C_{12}</math></b>	2.51E+05	<b><math>S_{12}</math></b>	-3.08E-06
<b><math>C_{44}</math></b>	7.65E+04	<b><math>S_{44}</math></b>	1.31E-05

Les résultats récapitulatifs des contraintes biaxiales et de la taille de grain pour du Pt et du PZT sont présentés dans le Tableau 9.

On confirme en premier lieu que l'apport en contraintes résiduelles très fortement tensiles est principalement imputable à l'électrode et non au PZT. L'origine des contraintes de l'électrode est à chercher au niveau du Pt qui subit une très forte variation entre l'état brut de dépôt (- 660 MPa) et après simulation du recuit de cristallisation du PZT (+ 1.0 GPa). On peut établir une corrélation directe entre contrainte résiduelle (tensile) et croissance des grains ici. On remarque que lorsque le dépôt du Pt est fait à chaud (450°C), cet écart se réduit significativement (50%) puisqu'on part déjà d'un état tensile (+ 570 MPa). C'est ce procédé qui sera retenu pour la fabrication des lots. Pour être représentatif de l'état de stress de l'électrode de Pt dans la membrane complète, c'est-à-dire recouverte avec le PZT cristallisé, on a extrait cette fois les contraintes du Pt dans l'empilement complet (+ 1.2 GPa contre 1.0 GPa). On en déduit qu'il y a un apport supplémentaire de contrainte tensile s'exerçant sur le Pt au travers du PZT de l'ordre de 20 %.

Si l'on s'intéresse maintenant aux contraintes du PZT, on constate qu'elles sont de l'ordre de + 600 MPa sur électrode complète de Pt contre + 300 MPa directement sur TiO<sub>2</sub>. Ce dernier cas est donc nettement plus favorable à la réalisation de la membrane.

Pour compléter l'étude, l'impact de l'épaisseur de la sous couche de SiO<sub>2</sub> a été également analysé. On voit que l'épaisseur de SiO<sub>2</sub> ne joue pas beaucoup ni sur les contraintes internes ni sur la taille des grains. De même, on remarque que le passage de 650°C à 700°C a un impact modéré, notamment, sur Pt (la taille de grain ne bouge plus). Dans le cas du PZT directement sur TiO<sub>2</sub>, les augmentations de la contrainte et de la taille de grain sont un peu plus significatives mais restent marginales. Néanmoins, on s'attend à une valeur minimale des contraintes résiduelles à 250 MPa pour une

membrane constituée de PZT directement sur  $\text{TiO}_2$  et recuite à 650°C, ce qui est le cas le plus favorable à retenir de cette étude.

*Tableau 9. Propriétés mécaniques (module d'indentation et dureté) de couches étudiées déterminés à partir du modèle d'Oliver et Pharr.*

Echantillon	Taille de grains, nm	Contraintes biaxiales, MPa
Pt100/TiO <sub>2</sub> 20/SiO <sub>2</sub> 500 (dépôt à l'ambiante)	15	-662
Pt100/TiO <sub>2</sub> 20/SiO <sub>2</sub> 500 (dépôt à 450°C)	37	574
Pt100/TiO <sub>2</sub> 20/SiO <sub>2</sub> 500 (dépôt à 450°C + recuit à 700 °C)	92	1029
PZT/ Pt100/TiO <sub>2</sub> 30/SiO <sub>2</sub> 600 (recuit à 650°C)	92	1151
PZT/ Pt100/TiO <sub>2</sub> 30/SiO <sub>2</sub> 600 (recuit à 700°C)	98	1184
PZT/ Pt100/TiO <sub>2</sub> 30/SiO <sub>2</sub> 600 (recuit à 650°C)	33	543
PZT/ Pt100/TiO <sub>2</sub> 30/SiO <sub>2</sub> 600 (recuit à 700°C)	34	576
PZT/TiO <sub>2</sub> 10/SiO <sub>2</sub> 600 (recuit à 650°C)	26	249
PZT/TiO <sub>2</sub> 10/SiO <sub>2</sub> 600 (recuit à 700°C)	29	339
PZT/TiO <sub>2</sub> 10/SiO <sub>2</sub> 80 (recuit à 700°C)	30	346
PZT/TiO <sub>2</sub> 10/SiO <sub>2</sub> 160 (recuit à 700°C)	27	303

## 5.4 Conclusion

Cette étude structurale et mécanique a permis de confirmer les résultats établis selon le procédé PZT Sol gel « standard » du LETI (recuit à 700°C sur électrodes Pt/TiO<sub>2</sub>) et d'explorer une zone un peu plus basse en température (650°C). Cette étude apporte surtout un plus vers un procédé hors « standard » qui vise à s'affranchir d'une électrode de Pt continue. Dans ces conditions, nous avons montré qu'il était possible d'obtenir un PZT polycristallin orienté <110> directement sur TiO<sub>2</sub> avec des caractéristiques mécaniques plus favorables que le cas standard (module comparable et contrainte résiduelle réduite de 50%). Le meilleurs compromis a été établi pour un bilan thermique réduit à 650°C. Les mesures électriques devront confirmer ou non le bon comportement piézoélectrique de cette variante au procédé standard.

Par ailleurs, les mesures de nanoindentation nous ont donné les « vrais » valeurs de module d'Young pour tous les matériaux qui vont être implémentés dans le dispositif intégré (SiO<sub>2</sub>, Ru, CoFeB, etc.). Nous constatons que les valeurs utilisées dans les simulations sont relativement proches de celles mesurées pour des couches minces.



# 6. Observation directe de l'effet magnétoélectrique : Effet Kerr

Dans cette partie nous allons voir comment la structure en domaines d'une couche mince ferromagnétique est affectée par l'interaction magnétoélastique. La compréhension de ces phénomènes est absolument nécessaire afin d'intégrer les composites présentés dans le chapitre présente à l'échelle micronique.

Tout d'abord les notions de base concernant la structure en domaines magnétiques seront rappelées pour naturellement passer aux techniques de visualisation de ces domaines. Ensuite, le montage expérimental d'un microscope Kerr développé pour l'étude des matériaux magnétoélectrique sera présenté. Finalement, les résultats expérimentaux sur les composites magnétoélectriques microstructurés seront discutés.

## 6.1 Structure en domaine magnétiques

Les domaines magnétiques sont des zones d'aimantation homogène mais de directions moyennes différentes d'un matériau magnétique qui sont liées à ses propriétés microscopiques et macroscopique. La minimisation de l'énergie libre du système est la raison principale pour laquelle les matériaux magnétiques manifestent une structure en domaines. Ce phénomène résulte de la compétition entre les énergies d'anisotropie magnétocristalline, d'échange, magnétostatique et Zeeman du matériau.

Dans le cas d'une couche mince possédant une anisotropie uniaxiale on observe généralement deux types de domaines :

- Des domaines hexagonaux allongés de largeur  $D_w$  orientés selon l'axe facile qui est défini par le procédé de fabrication ou par l'anisotropie magnétocristalline. Ces domaines sont séparés par des parois à  $180^\circ$ .
- Des domaines triangulaires aux bords des motifs avec une aimantation perpendiculaire à l'axe facile. Ces domaines, dits de fermeture, ont pour fonction de conserver la divergence de l'aimantation nulle (fermer le flux magnétique dans le matériau) afin de minimiser l'énergie démagnétisante. Ces derniers sont séparés par des parois à  $90^\circ$ .

Un exemple de structures en domaines magnétiques est présenté sur la Figure 44. La complication de la structure magnétique permet au matériau de minimiser son énergie libre et de trouver la configuration d'équilibre.

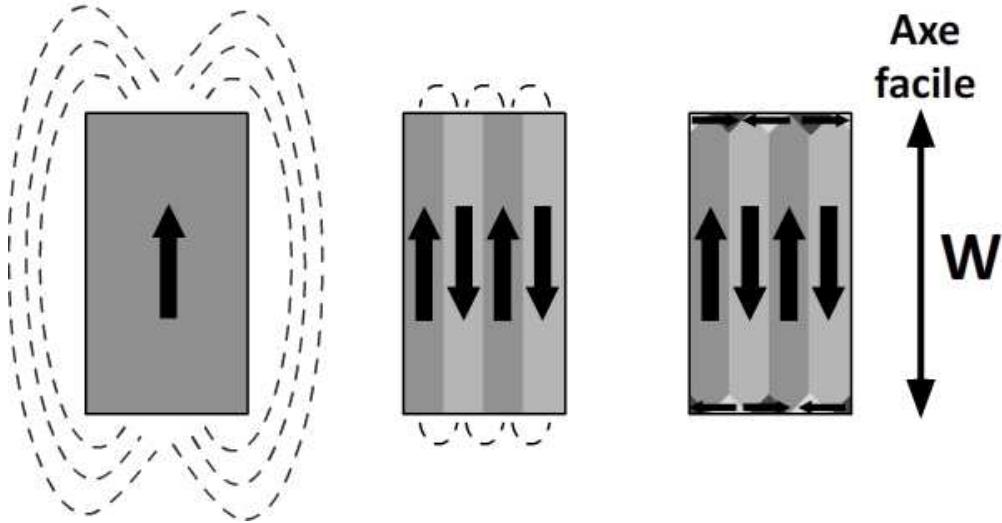


Figure 44. Représentation schématique des lignes de champ pour des structures en domaine magnétique de plus en plus complexe. La formation de cette structure permet à un matériau magnétique de minimiser son énergie dipolaire magnétique.

On peut donc déterminer les paramètres caractéristiques, comme par exemple la largeur des domaines principaux  $D_w$  à partir des conditions d'équilibre de la structure. La compétition entre l'énergie des parois à  $180^\circ$  et à  $90^\circ$  et l'énergie d'anisotropie uniaxiale effective va déterminer la configuration finale des domaines. De façon classique, on établit les conditions d'équilibre à partir de la dérivée de l'énergie totale du système, ce qui donne :

$$D_w = \sqrt{\frac{2\sigma_\pi W}{K_u^{eff}}}, \quad (6.1)$$

où  $D_w$ ,  $\sigma_\pi$ ,  $W$  et  $K_u^{eff}$  sont respectivement la largeur des domaines principaux, la densité d'énergie des parois à  $180^\circ$  ( $\sigma_\pi = 2.4 \cdot 10^{-7} \text{ J/cm}^2$ ), la dimension du motif magnétique selon l'axe facile et la constante d'anisotropie uniaxiale effective. Nous allons utiliser cette expression par la suite pour estimer l'anisotropie des motifs de référence de FeCoB.

On constate que la largeur des domaines dépend inversement de l'anisotropie effective  $K_u^{eff}$ , une variable de matériau qui est à son tour composée de plusieurs termes correspondant aux différentes interactions dans le matériau magnétique :

$$K_u^{eff} = K_u^o + K_u^\sigma + K_u^Z + K_u^N + \dots, \quad (6.2)$$

où  $K_u^0$ ,  $K_u^\sigma$ ,  $K_u^Z$ ,  $K_u^N$  sont respectivement les anisotropies définies par les condition de dépôt (anisotropie induite par la présence du champ magnétique pendant le dépôt), les contraintes mécaniques ressenties par la couche magnétique, le champ extérieur et les dimensions de la couche. Cela veut dire que le changement d'un de ces termes va modifier l'anisotropie effective et par conséquence la structure en domaine.

Comme nous avons vu précédemment dans nos composites magnétoélectriques l'anisotropie de la couche magnétique est fortement modifiée par les contraintes générées par la couche ferroélectrique. Cela suppose une modification importante de la structure en domaine à travers le terme  $K_u^\sigma = 3/2\lambda_s\sigma$ . C'est justement cette modification que nous cherchons à étudier afin de pouvoir intégrer les composites magnétoélectriques laminaires.

Dans le paragraphe suivant nous comparons des différentes techniques de visualisation des domaines magnétiques pour en choisir la plus appropriée à l'étude des composite magnétoélectrique.

## 6.2 Techniques d'observation des domaines magnétiques

Il existe plusieurs méthodes d'observation des domaines magnétiques. Dans l'ensemble, la majorité de ces techniques ne donnent des informations que sur une faible épaisseur de matière (allant jusqu'à quelques microns au maximum). Elles conviennent parfaitement à l'étude des couches minces magnétiques. Les méthodes les plus utilisées sont :

- Méthode de Bitter
- Méthodes magnéto-optique
- Microscopie électronique de Lorentz en transmission (TEM)
- Microscopie électronique à balayage (SEM)
- Microscopie d'électrons secondaires analysés en polarisation (SEMPA)
- Topographie aux rayons X
- Diffraction des neutrons
- Microscopie à force magnétique (MFM)

Présentons chacune de ces techniques enfin de choisir celle qui convienne au mieux à notre étude des composite magnétoélectriques intégrés.

### a. **Méthode de Bitter**

Une des premières techniques (développée dans les années 30 [Bitter 1931]) permettant d'observer le champ de fuite existant au voisinage des parois de domaines magnétiques. Elle consiste à repartir une suspension colloïdale chargée avec de fines

particules (de l'ordre de micron) magnétique d'oxyde de fer (appelée poudre de Bitter) sur la surface de l'échantillon. Ces particules se concentrent au niveau des gradients forts à proximité des parois de domaines. Actuellement, ces suspensions sont remplacées par les ferrofluides qui contiennent des particules magnétiques de taille moyenne de 10 nm et enrobées de molécules organiques [Kant 1981]. L'utilisation d'un microscope optique limite la résolution spatiale à environ un micron. C'est une méthode très simple d'utilisation mais qui peut s'avérer polluante pour l'échantillon. Le caractère indirect de cette technique ainsi que l'impossibilité d'observations dynamiques des domaines rend cette méthode de moins en moins utilisée.

#### **b. Méthodes magnéto-optique**

Ces méthodes utilisent la propriété du milieu magnétique de tourner le plan de polarisation d'un faisceau lumineux polarisé en transmission (effet Faraday découvert en 1845 [Faraday 1946]) et en réflexion (effet Kerr découvert en 1875/7 [Kerr 1877]). La limite ultime de la résolution est fixée au niveau de 200-300 nm par la diffraction. En pratique, sans utilisation des objectifs à immersion la résolution est de l'ordre du micron. Le fait que le faisceau lumineux qui sonde l'état magnétique ne perturbe pas la structure en domaine est un avantage important de ces techniques. La possibilité de travailler en dynamique rend ces techniques très populaires parmi les chercheurs. La qualité de contraste dépend du matériau étudié, de la géométrie du chemin optique du microscope, des caractéristiques de l'analyseur et du polariseur. Elle peut être délicate à obtenir, surtout pour les effets Kerr longitudinal et transversal.

Une variante importante de ce type de méthodes est la microscopie à effet Kerr à balayage (SKEM) dans laquelle un faisceau lumineux balaie la surface de l'échantillon (le plus souvent par déplacement de ce dernier sous l'objectif [Re 1984]). L'image est obtenue point par point à raison de quelques dizaines de points par seconde au maximum. On peut toutefois étudier des phénomènes rapides répétitifs par stroboscopie.

#### **c. Microscopie électronique de Lorentz de transmission (TEM)**

La déviation d'un faisceau d'électrons par la force de Lorentz dépend du sens de l'aimantation de la matière traversée [Reimer 1993]. La distribution micromagnétique est donc visualisée par la méthode d'ombre. Cette technique est applicable aux couches d'épaisseur inférieure à 300 nm. Il est possible d'obtenir une très haute résolution de 10 nm.

#### **d. Microscopie électronique à balayage (SEM et SEMPA)**

Un faisceau d'électrons à incidence normale est détecté après transmission ou rétrodiffusion. Si l'échantillon est magnétique, tous les électrons réémis seront déviés d'une façon ou d'une autre. Donc, on peut extraire l'information sur l'état magnétique à l'aide des détecteurs sensibles à la direction des électrons. L'avantage de cette méthode est de pouvoir observer les couches plus ou moins profondes dans la matière

suivant l'énergie des électrons incidents. Par contre, elle ne permet pas l'observation dynamique (on peut tourner la difficulté par l'emploi de la stroboscopie).

Les électrons secondaires gardent la mémoire de la direction de l'aimantation. Ils permettent de reconstituer la microstructure magnétique avec une résolution de l'ordre de 70 nm (méthode SEMPA [Scheinfein 1990]). Cette méthode performante présente l'inconvénient d'être onéreuse, d'avoir un temps d'acquisition de plusieurs minutes (cartographie) et demande de travailler dans un vide de  $10^{-10}$  Torr.

#### e. *Topographie aux rayons X*

L'imagerie par diffraction de Bragg des rayons X, souvent appelée topographie aux rayons X, permet d'obtenir l'image de défauts contenus dans un échantillon monocristallin ou dans des grains suffisamment grands [Schlenker 1997]. Dans la quasi-totalité des travaux effectués jusqu'à présent, la visibilité des domaines ou parois magnétiques y est indirecte. En effet le contraste est dû à l'effet secondaire que constitue la différence de distorsion, associée à la magnétostriction, entre domaines. La topographie aux rayons X utilisant les faisceaux fournis par une source de rayonnement synchrotron se prête à des observations en temps réel. L'abondance des photons de haute énergie fournis par une machine telle qu'à l'ESRF, la source européenne de rayonnement synchrotron, permet de voir des parois de domaines situés à l'intérieur d'échantillons relativement épais (plus d'un mm pour du fer).

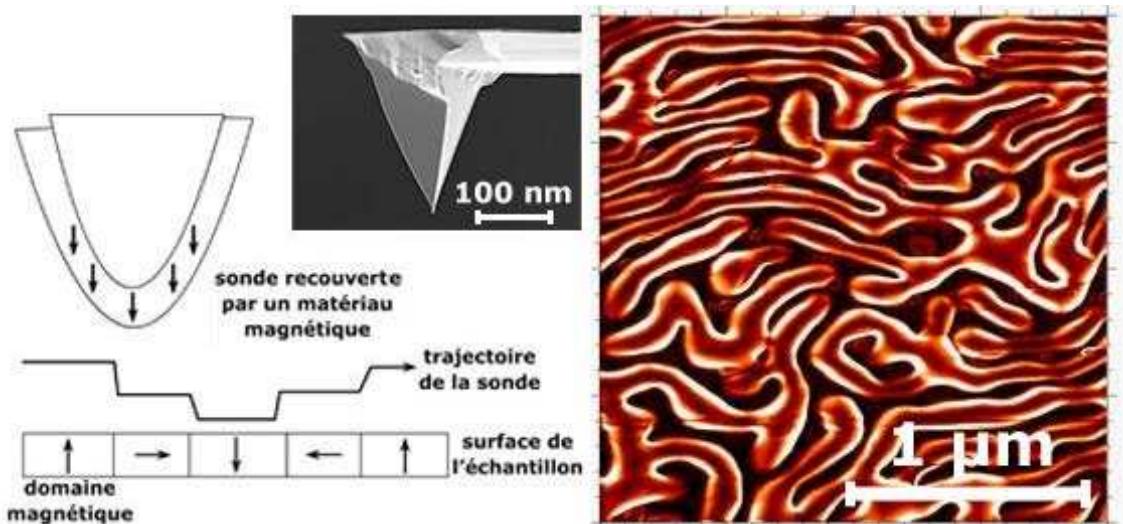
#### f. *Diffraction des neutrons*

Les neutrons interagissent avec la matière par deux mécanismes principaux. D'une part, ils subissent la diffusion nucléaire due à l'interaction forte avec les noyaux. D'autre part, ayant un moment magnétique associé à leur moment cinétique intrinsèque (spin 1/2), ils ressentent le champ magnétique créé par les moments magnétiques atomiques. Ce mécanisme de diffusion des neutrons constitue la source de la plupart des informations dont on dispose sur les structures magnétiques [Bacon 1975]. Le même effet, utilisé autrement, conduit à l'imagerie par diffraction de Bragg de neutrons, analogue dans son principe à la topographie aux rayons X. Cette méthode peut fournir des images des domaines magnétiques de tout type à l'intérieur d'échantillons monocristallins massifs, et cette fois, à la différence du cas des rayons X, l'information magnétique est directement associée à la définition des domaines, et non à un effet secondaire. Cette technique très lourde nécessitant l'accès à une source de neutrons, est utilisée préférentiellement pour étudier le réseau magnétique et non la structure en domaine.

#### g. *Microscopie à force magnétique (MFM)*

Cette technique est une variante de la microscopie à force atomique (AFM). Le paramètre mesuré est la force ou gradient de force magnétostatique entre l'échantillon et une petite sonde ferromagnétique. Ces forces sont mesurées indirectement à travers le changement de résonance d'une poutre vibrante (appelée souvent cantilever) au bout de laquelle est attachée la sonde. Le schéma de principe et

une image typique MFM sont présentés sur la Figure 45. On détecte couramment des forces de l'ordre de  $10^{-8}$  N et on peut attendre  $10^{-10}$  N. La résolution peut descendre jusqu'à 10-20 nm [Grutter 1990] ce qui rend cette technique bien adaptée à l'étude des configuration micromagnétiques à petite échelle telle que la structure interne des parois. Cette méthode est actuellement très utilisée pour des études des systèmes de stockage d'information (bit patterned media).



*Figure 45. (à gauche) Le principe de la mesure MFM. Une sonde ferromagnétique survole la surface de l'échantillon à une distance de quelques nanomètres. La force magnétostatique entre la sonde et la surface est mesurée en permanence. L'image des domaines est reconstituée après le balayage complet de la surface de quelques micromètres carrés. Image faite au MEB d'une sonde (en haut) et une image typique des domaines en bandes perpendiculaires dans une multicoche de Co/Pt obtenue par MFM (à droite).*

*Tableau 10. Comparaison qualitative entre différentes techniques d'observation de domaines magnétiques (adapté de [Hubert 1998]).*

Méthode d'observation	Direction d'aimantation	Champ magnétique maximal (Oe)	Qualité d'échantillon nécessaire	Prix d'équipement
Bitter	indirect	150	basse	bas
Magnéto-optique	direct	pas de limitation	bonne	moyen
TEM	indirect	1000	très bonne	très élevé
SEM (SEMPA)	Indirect/direct	150	bonne	élevé
X-Ray topographie	indirect	pas de limitation	moyen	extrêmement élevé

<b>Neutron</b>	indirect	pas de limitation	basse	extrêmement élevé
<b>MFM</b>	indirect	3000	basse	moyen

La surface de scan limitée à quelques micromètres carrés et le temps d'acquisition relativement long (plusieurs minutes) ne permettent pas à cette technique d'être compétitive par rapport aux méthodes optiques ou électroniques. Elle s'utilise donc souvent en complémentarité avec l'imagerie Kerr pour préciser la zone d'intérêt.

Les caractéristiques principales des différentes méthodes sont présentées dans le tableau 10.

Nous avons finalement retenu la méthode magnéto-optique. C'est une méthode d'observation **directe** et relativement légère permettant d'étudier facilement de nombreux échantillons. Elle autorise des observations relativement rapides (15-100 images par seconde) et donc elle ne nous limite pas à des études statiques. Elle est bien adaptée pour étudier des motifs de FeCoB dont les dimensions varient d'une dizaine à quelques centaines de microns, et donc les épaisseurs peuvent atteindre quelques centaines de nanomètres. Elle présente, en outre, l'avantage d'autoriser l'observation des domaines sur des dispositifs en cours ou juste après la fabrication, ce qui en fait un outil adapté à un contrôle industriel.

## 6.3 Effets magnéto-optiques

Les effets magnéto-optique désignent les modifications de l'état de polarisation d'un faisceau lumineux en interaction avec un matériau porteur de moments magnétiques ordonnés.

Les différents effets sont classés en fonction des changements d'amplitude (dichroïsme) ou de phase (biréfringence) de l'onde lumineuse réfléchie/transmise par rapport à l'incidente. Ces changements dépendent des positions relatives entre le plan d'incidence (plan déterminé par le rayon incident et la normale à la surface de l'échantillon) et la direction d'aimantation locale. On distingue deux catégories d'effet : modification de la lumière transmise par le matériau (effet Faraday et Voigt), et modification de la lumière réfléchie (effet Kerr).

En pratique, l'effet Kerr est le plus utilisé car il ne nécessite pas la préparation des échantillons transparents (amincis). On distingue ainsi trois types d'effet Kerr (Figure 46) :

- L'effet Kerr polaire (1876) : l'aimantation est perpendiculaire à la surface réfléchissante.
- L'effet Kerr longitudinal (1878) : l'aimantation est parallèle à la surface réfléchissante et au plan d'incidence.
- L'effet Kerr transversal (1897) : l'aimantation est parallèle à la surface réfléchissante mais normale au plan d'incidence.

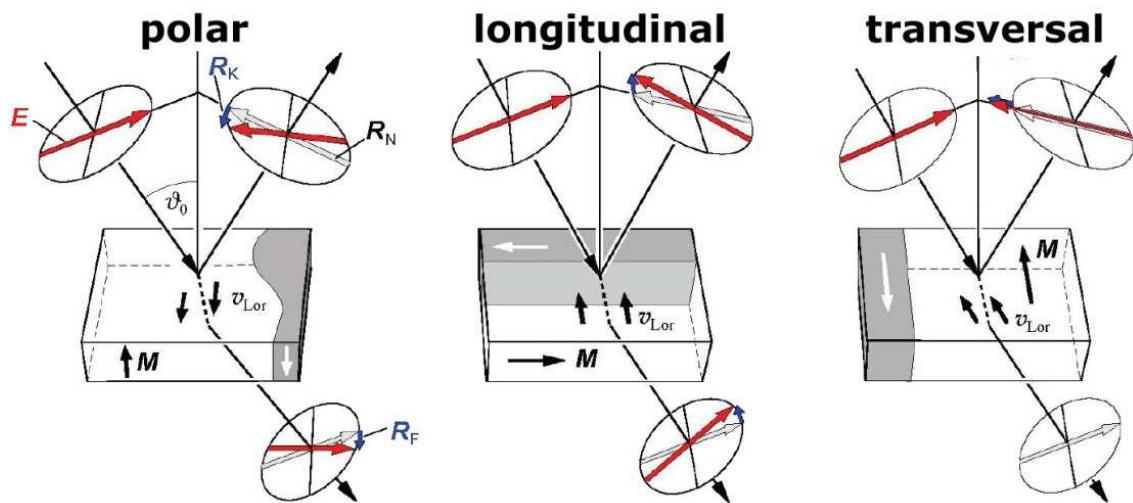


Figure 46. Les effets Kerr et Faraday polaire, longitudinal et transversal [Hubert 1998].

On peut utiliser également une astuce permettant de révéler indirectement la structure en domaine en exploitant l'effet Faraday important dans des matériaux magnétiques transparents du type grenat. Cette méthode s'appelle MOIF (Mageto-Optical Imaging Film) [Dorosinskii 1992] et consiste à déposer un film «indicateur» à la surface de l'échantillon en question. Le champ de fuite présent à la surface va ainsi aimanter le film de grenat très doux. La structure en domaine est observée en utilisant l'effet Kerr polaire.

Il faut noter que pour la plupart des matériaux magnétiques les effets magnéto-optiques sont très faibles (angle de rotation Kerr  $\theta_K \ll 1^\circ$ ). La véritable exploitation de ces effets a commencé grâce à l'utilisation des nouvelles méthodes numériques de traitement d'image. Cela a permis de soustraire le signal de fond principalement topographique et d'augmenter considérablement le contraste magnétique par moyennage de plusieurs images.

On peut trouver des expressions pour le contraste optimal à partir des amplitudes Kerr et de l'intensité du signal de fond. Pour deux domaines avec des aimantations opposées, l'effet Kerr ne se différencie que par le signe. L'amplitude totale de signal pour un domaine peut être écrite dans une forme  $A_{tot} = A_N \pm A_K$ , où  $A_N$  représente la partie régulière du signal et  $A_K$  correspond à l'amplitude effective Kerr. On peut définir l'angle de rotation Kerr comme  $\theta_K = A_K/A_N$ .

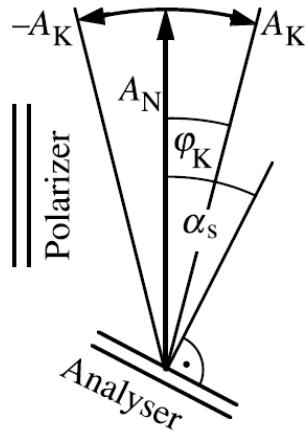


Figure 47. Configuration géométrique de l'analyseur.

Prenons la position de l'analyseur qui correspond à  $\alpha_s = \theta_K$  (Figure 47). Cela impose la condition d'extinction totale pour un des domaines. Si la phase de l'amplitude régulière et magnéto-optique sont égales, on peut prendre  $A_N$  et  $A_K$  comme les valeurs réelles. L'intensité des domaines sombres devient relative à l'intensité incidente :

$$I_1 = A_N^2 \sin^2(\alpha_s - \theta_K) + I_0, \quad (6.3)$$

où  $I_0$  est l'intensité du signal de fond. Pour l'autre domaine :

$$I_2 = A_N^2 \sin^2(\alpha_s + \theta_K) + I_0. \quad (6.4)$$

En optimisant le contraste, donné par  $C_{MO} = (I_2 - I_1)/(I_2 + I_1)$ , par rapport à la variable  $\alpha_s$  on peut obtenir :

$$\tan \alpha_{opt}^C = \sqrt{\frac{A_K^2 + I_0}{A_N^2 + I_0}},$$

$$C_{opt} = \frac{A_K A_N}{\sqrt{(A_N^2 + I_0)(A_K^2 + I_0)}} \approx \frac{A_K}{\sqrt{A_K^2 + I_0}} \quad (6.5)$$

Nous pouvons constater que pour une amplitude  $A_N$  large, le contraste ne dépend que de l'intensité du signal de fond et de l'amplitude Kerr  $A_K$  et non pas de la rotation Kerr. La contribution du signal de fond est déterminée par la qualité du polariseur, les imperfections de la surface de l'échantillon et l'ouverture numérique de l'objectif.

Généralement la visibilité optimale n'est pas déterminée que par le critère du contraste maximal. Par exemple, si l'image est trop sombre il est nécessaire d'augmenter l'angle  $\alpha_s$  (l'intensité lumineuse est proportionnelle à  $\alpha_s^2$ ). Cela va être crucial pour le traitement numérique des images. Un autre paramètre parmi les plus importants qui définit la qualité de contraste est le rapport signal sur bruit du capteur d'image (CCD ou CMOS). Nous allons prendre en compte toutes ces nuances pour optimiser la qualité d'image de notre microscope, décrit par la suite.

L'observation de domaines magnétiques à la surface d'un matériau ferromagnétique (dans notre cas FeCoB), dont l'aimantation est planaire, ne peut être envisagée qu'avec la géométrie propre de l'effet Kerr longitudinal ou transversal. L'effet Kerr transversal se caractérise par une variation très faible du coefficient de réflexion de la lumière polarisée parallèlement au plan d'incidence ( $\Delta R_{||}/R_{||}$  de l'ordre de quelques  $10^{-3}$ ). L'effet Kerr longitudinal génère essentiellement une rotation du plan de polarisation, qui est plus facilement observable et mesurable.

Ainsi, pour l'observation des domaines magnétiques dans les échantillons microstructurés des composites magnétoélectriques nous avons monté un microscope Kerr spécifique et permettant de polariser électriquement (tension DC) les dispositifs aux observations sous contraintes mécaniques. Les détails du montage sont présentés dans le paragraphe suivant.

## 6.4 Réalisation du microscope Kerr

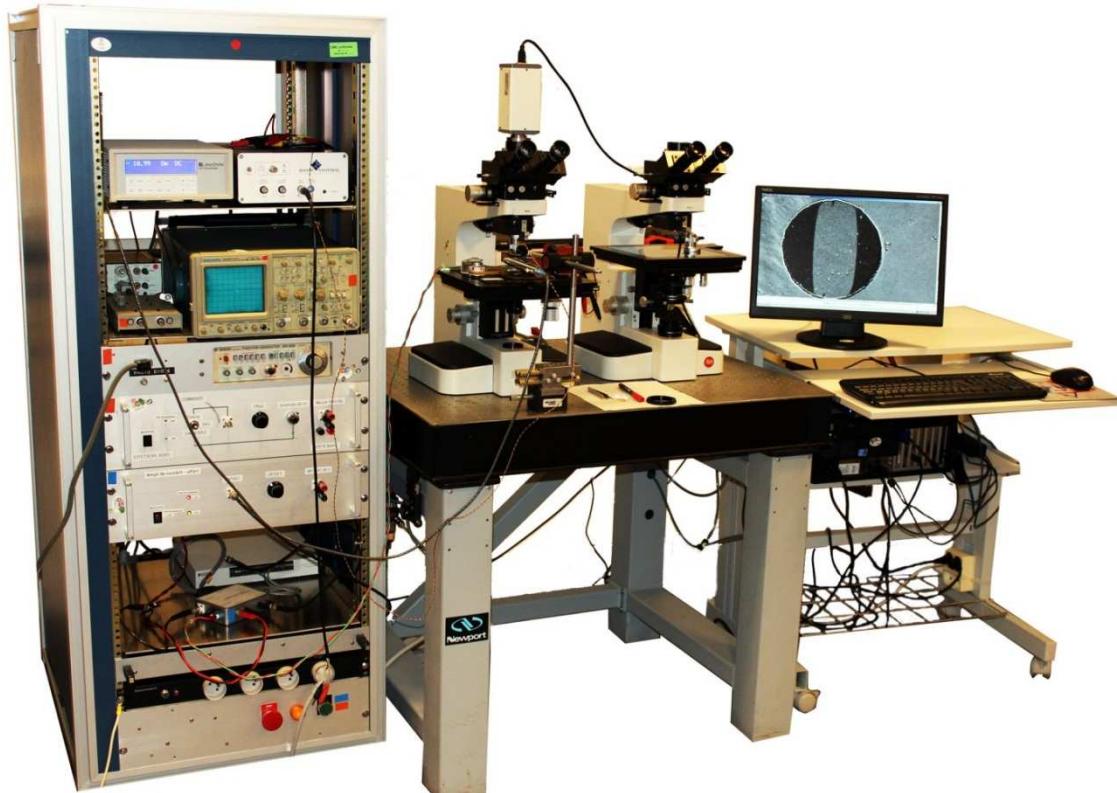
Pour la réalisation du microscope Kerr nous nous sommes inspirés du banc initialement développé au cours de la thèse de Catherine COQUAZ [[Coquaz 1992](#)] (et mis à jour lors de la thèse de Rachid HIDA [[Hida 2004](#)]).

L'ensemble de montage expérimental est présenté sur la Figure 48. Il est constitué de trois parties: ensemble de visualisation, système de génération de champ magnétique et automatisation, et support d'échantillons avec moyens de polarisation (tension DC).

L'objectif du montage à effet Kerr est de créer, par extinction de la lumière réfléchie par un type de domaine, un contraste entre zones brillantes et zones sombres qui sont le reflet de la configuration en domaines.

De façon classique nous utilisons une lumière incidente monochromatique polarisée rectilignement. Après réflexion sur l'échantillon, elle passe à travers un analyseur. Ce dernier a son plan de transmission placé pratiquement à angle droit avec celui du polariseur, i.e. de manière à être à l'extinction pour un état magnétique donné.

Nous avons vérifié expérimentalement que le contraste est optimal lorsque la lumière rectiligne incidente est pratiquement parallèle (*p*) ou normale (*s*) au plan d'incidence (ce qui est conforme à la théorie). Dans notre configuration, nous avons adopté une polarisation *s*. Le plan de transmission du polariseur a été déterminé à l'aide d'une expérience classique d'extinction.



*Figure 48. Photographie du montage expérimental.*

Pour avoir la résolution de l'ordre de quelques microns, l'axe optique doit être normal à la surface de l'échantillon tout en gardant l'angle d'incidence moyen optimal (d'environ  $45^\circ$ ). La solution est d'utiliser un objectif de fort grossissement muni d'une grande ouverture numérique (ON) pour la lumière incidente et réfléchie. Pour nos observations l'objectif optimal est 50X avec ON = 0.85 ce qui permet des angles d'incidence maximum jusqu'à  $59^\circ$ .

Les schémas de la formation d'image utilisés dans le travail de référence de Catherine COQUAZ et après les modifications sont présentés sur la Figure 49. Nous avons intérêt à travailler avec une source de lumière ponctuelle et monochromatique, puisque la rotation Kerr dépend de l'angle d'incidence et de la longueur d'onde. C'est pourquoi nous avons remplacé la source de lumière polychromatique à vapeur de mercure (Hg) 50W par une LED (Light-Emitting Diode) haute puissance. Cela nous permet d'éviter l'utilisation des filtres IR et absorbant nécessaires pour isoler la longueur d'onde de travail dans le spectre blanc de la lampe. Les derniers progrès dans le domaine des LEDs haute puissance ont permis de réaliser des sources

d'illuminations monochromatique commerciales très performantes avec des puissances optiques allant jusqu'à 1W.

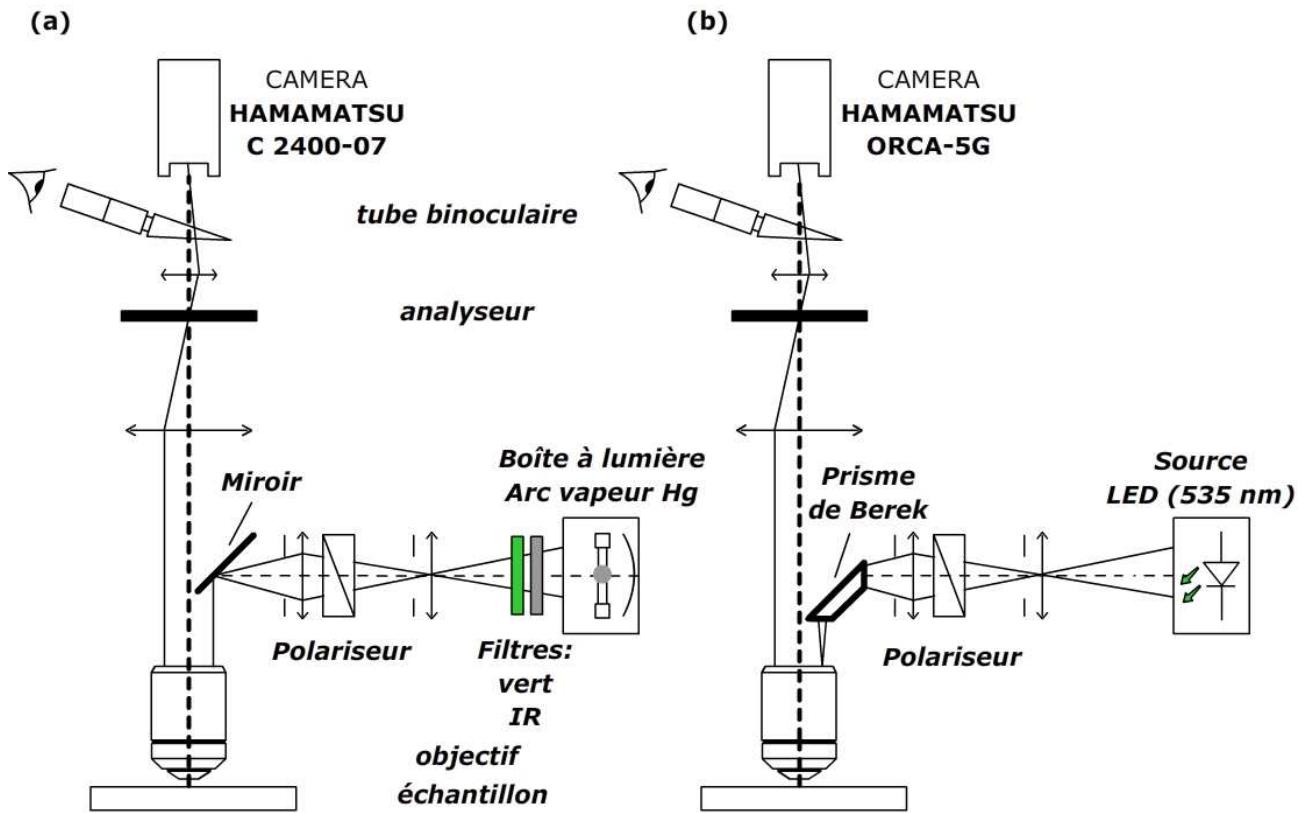


Figure 49. Schéma optique classique utilisé pour la prise d'image dans la configuration longitudinale (a) et modifications adoptées pour améliorer la qualité d'image (b).

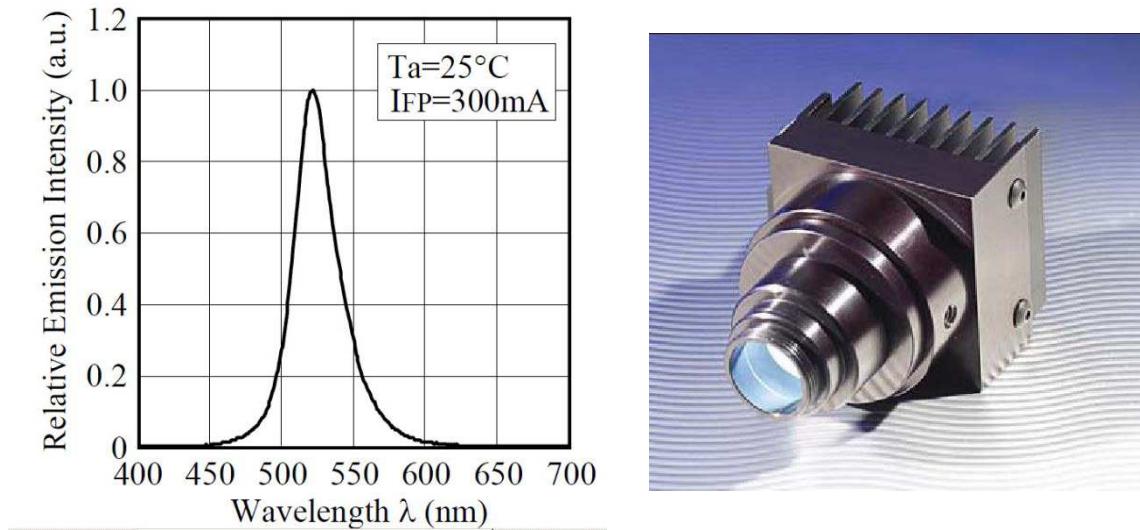


Figure 50. Densité spectrale relative de la LED verte haute puissance NICHIA® (à gauche) utilisée dans les sources d'éclairage BrightLight LED de NAVITAR (à droite).

Pour notre microscope nous avons choisi une source BrightLight LED de NAVITAR [Navitar 2011] qui utilise les LED haute puissance de NICHIA. Un exemple du spectre d'émission d'une LED verte est présenté sur la Figure 50. Nous utilisons la

lumière verte ( $\lambda = 535$  nm) car la rotation Kerr est optimale pour cette longueur d'onde dans les alliages à base de Co et de Fe.

Une fois le faisceau lumineux polarisé, il doit être envoyé sur l'échantillon sous un angle compris entre 30 et 60° sans perdre sa polarisation. Pour cela, nous avons remplacé le miroir semi-transparent par un prisme de Berek. Ce prisme présente l'avantage de conserver, grâce aux réflexions vitreuses, la polarisation issue du polariseur. En outre, ne couvrant contrairement au miroir qu'une demi-pupille, il n'est pas traversé par le faisceau réfléchi.

Le choix de la caméra est également important. L'ancienne caméra, devenue obsolète, demandait le remplacement. Pour les applications de l'imagerie magnétique les critères principaux de choix sont : la résolution du capteur, sa sensibilité, le bruit de lecture (readout noise) et la gamme dynamique. Historiquement les caméras scientifiques de HAMAMATSU ont une très bonne réputation grâce à ces capteurs CCD haute sensibilité. Parmi les caméras de moyenne gamme, le modèle ORCA-05G (le spectre optique est présenté sur la Figure 51) est un bon compromis entre le prix et les performances. Possédant un capteur de 1.3 Mégapixel, elle a un bruit de lecture inférieur à 10 électrons, ce qui combiné avec une gamme dynamique de 12 bits, fait de cette caméra un candidat adapté pour des mesures à faible intensité lumineuse. De plus cette caméra ne possède pas d'obturateur mécanique, ce qui augmente la stabilité d'image soustraite.

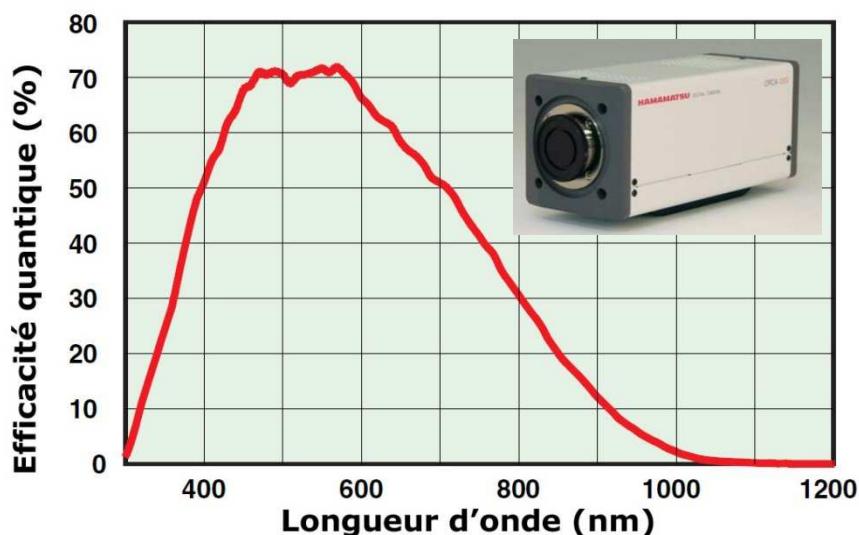
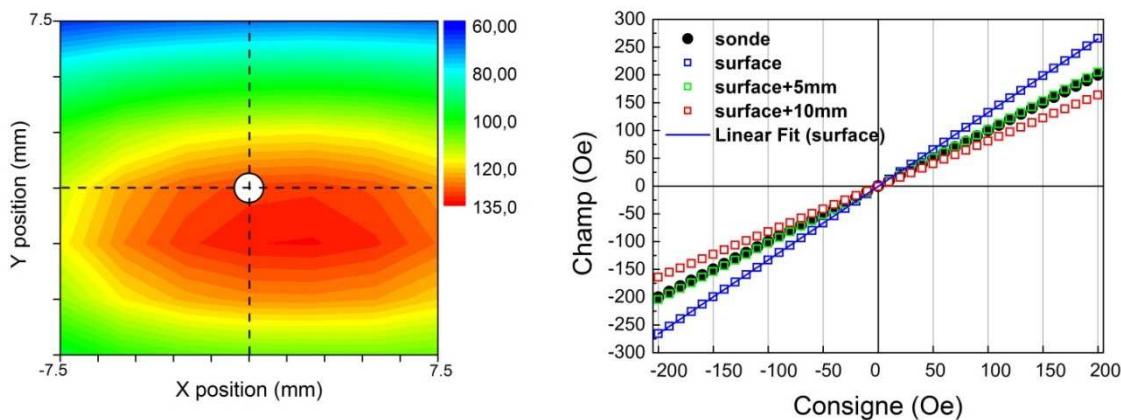


Figure 51. Efficacité quantique en fonction de la longueur d'onde de la lumière reçue pour le capteur CCD de la camera Hamamatsu ORCA-05G.

Le dernier élément indispensable pour l'imagerie magnétique est le système de génération du champ magnétique. Nous avons conservé le choix d'un électro-aimant permettant d'atteindre 1000 Oe, doté d'origine d'un mouvement de rotation de 90° autour de l'objectif indépendant de celui de l'échantillon. Le champ généré par l'électro-aimant est aujourd'hui mesuré par une sonde de Hall axiale (Gaussmètre

LakeShore 425). La mesure du champ ne se fait pas au niveau d'échantillons pour ne pas encombrer l'espace sous l'objectif. C'est pour cela qu'il est essentiel de calibrer précisément la valeur exacte de champ vu par l'échantillon. Comme nous pouvons le constater le champ magnétique varie considérablement en fonction de la position sur le porte échantillon (Figure 52). Cet inconvénient peut être contourné relativement facilement en calibrant la valeur de champ dans chaque point par rapport à la sonde de Hall. Vu que la dépendance du champ est linéaire entre différents points il suffit de déterminer un seul coefficient de calibration et de l'intégrer dans la chaîne de mesure (un exemple des courbes de calibration est présenté sur la figure 52).



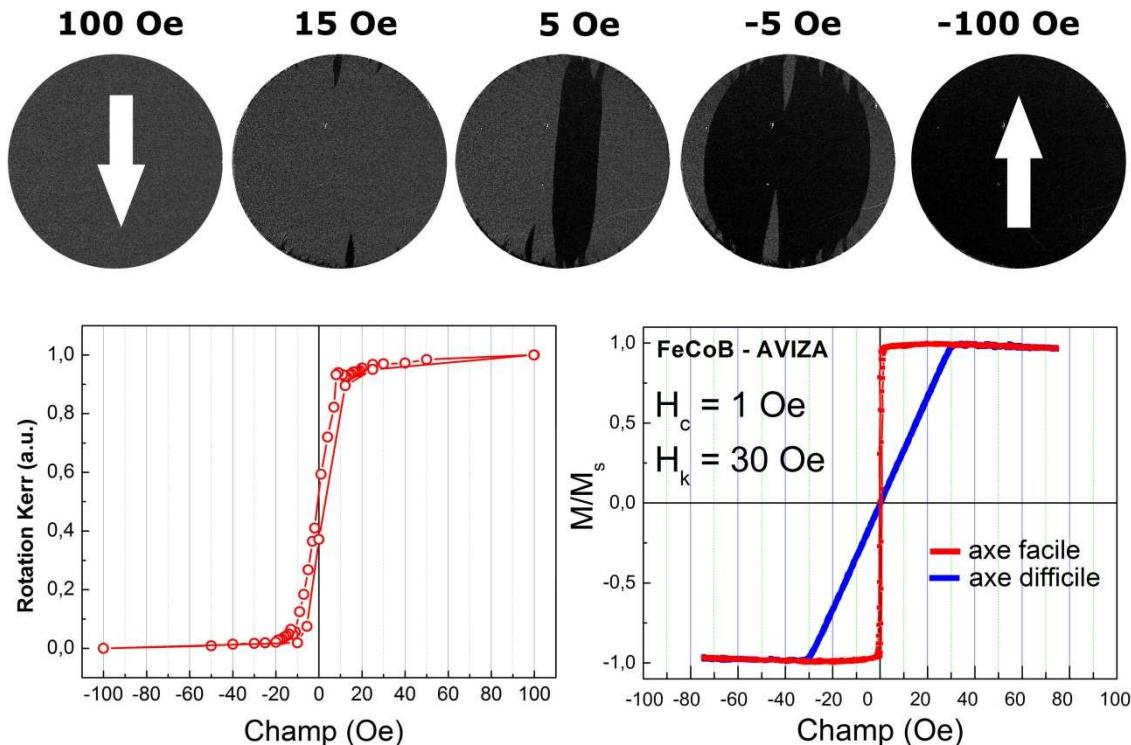
*Figure 52. Distribution du champ magnétique au niveau du porte échantillon. Le cercle blanc représente le point d'aspiration de l'échantillon (à gauche). Courbes de calibration entre valeur mesurée par la sonde et le champ au niveau d l'échantillon (à droite).*

Un logiciel de traitement d'image en temps réel a été également conçu (interface utilisateur LabVIEW) pour cette étude. Ce logiciel permet de réaliser la soustraction d'image de fond (en général à l'état saturé) en temps réel, de moyenner jusqu'à 1000 images, d'appliquer la procédure de désaimantation ainsi que de stocker des images finales. Le système d'asservissement du champ est réalisé en couplant la sonde de Hall avec un amplificateur de puissance qui pilote l'électro-aimant automatiquement.

Un exemple de la visualisation de domaine dans un plot circulaire de FeCoB est montré sur la Figure 53. Le champ magnétique est appliqué transversalement pour induire un retournement de l'aimantation. La direction de l'aimantation des états saturés est indiquée par des flèches. On peut constater que le contraste entre les domaines de sens opposés est très bon (plusieurs centaines de niveaux de gris). Il est également possible d'obtenir le cycle d'hystérisis magnétique à partir de l'intensité intégrale des images. Nous pouvons comparer le cycle obtenu à celui mesuré de façon classique au VSM sur le même échantillon avant la microstructuration. La différence entre deux cycles est principalement liée au facteur de forme du plot ainsi que aux

imperfections dus à la gravure. Cela se traduit par l'augmentation du champ coercitif et une légère inclinaison du cycle.

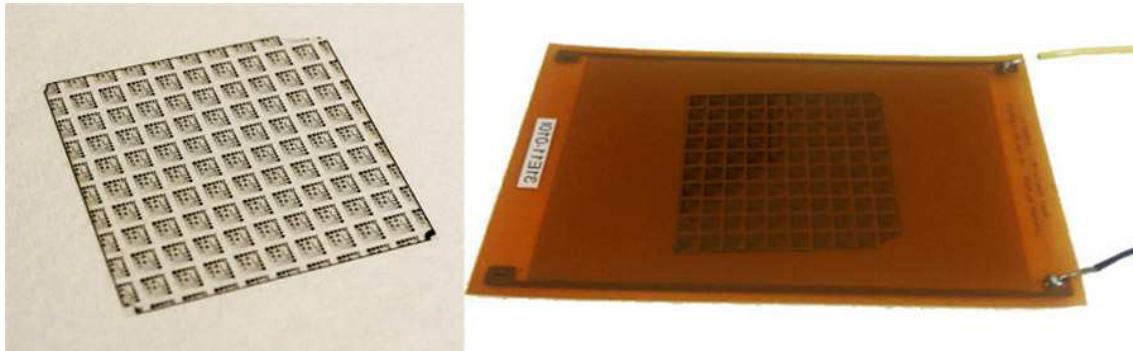
Nous concluons que le microscope Kerr développée est adapté à l'étude de la structure en domaines magnétiques dans les plots de taille micronique.



*Figure 53. Evolution de la structure en domaine magnétique d'un plot circulaire de FeCoB (diamètre 120 µm) au cours d'un retournement d'aimantation (en haut). Cycle magnétique obtenu à partir de l'intensité intégrale des images en fonction du champ appliqué (à gauche). Cycle magnétique mesuré au VSM sur un échantillon de FeCoB pleine tranche.*

## 6.5 Visualisation des domaines magnétiques dans les composites magnétoélectriques microstructurés

Les échantillons pour cette étude ont été réalisés de la même façon que les composites à anisotropie unidirectionnelle présentés précédemment. Pour les observations Kerr nous avons besoin d'une bonne qualité de la surface de l'échantillon. C'est pour cette raison que le matériau magnétique (FeCoB) est d'abord déposé sur un substrat de verre de 50 µm d'épaisseur et non directement sur MFC. Les motifs de différentes tailles et formes sont ensuite réalisés par gravure ionique (IBE). Le substrat de verre avec des plots magnétiques (Figure 54) est finalement collé sur le MFC à l'aide d'une colle.



*Figure 54. Photo du substrat de verre avec motifs magnétiques après la gravure et du composite final.*

Nous avons réalisé deux types d'observations. Tout d'abord, la structure en domaines dans l'état désaimanté a été étudiée en fonction du champ électrique appliqué aux bornes du MFC. Cela nous permet de déterminer la position stable de l'axe facile d'aimantation. Dans un deuxième temps, nous avons regardé le comportement des domaines instables à l'état rémanent (après la saturation du matériau magnétique) dans les mêmes conditions de champ électrique appliquée.

#### **a. Evidence directe de la rotation de l'axe facile d'aimantation dans l'état désaimanté**

La structure en domaines obtenue sur des plots circulaires pour différents champ électriques appliqués est présentée sur la Figure 55. La première image est prise pour le champ électrique  $E = -1$  MV/m, ce qui correspond à une contrainte en tensions ( $\sigma > 0$ ) dans le sens de l'axe facile initiale (vertical). Dans ce cas, l'anisotropie effective est renforcée grâce au terme d'anisotropie magnétoélastique. Nous observons trois domaines verticaux bien alignés avec l'axe facile. En augmentant le champ électrique jusqu'à  $E = 1.4$  MV/m, nous observons la réduction de nombre de domaines ce qui reflète la diminution de l'anisotropie effective (les contraintes générées par le MFC deviennent négatives ( $\sigma < 0$ ) par rapport à l'axe initial). Les images correspondant aux champs critique  $E_{cr} = 1.8 - 2.2$  MV/m nous indiquent le passage par l'état d'anisotropie évanescante qui est caractérisé par une structure en «vortex». Un autre indice de la très faible anisotropie résiduelle est l'apparition de sous-domaines très fins (ridules) au niveau des parois à  $180^\circ$ . Ce que l'on appelle « cross-tie domains » [Middelhoek 1961].

Finalement, le basculement de l'axe facile d'aimantation est observé pour des champs électriques supérieurs à 2.4 MV/m. Le nombre de domaines horizontaux augmente avec l'augmentation du champ électrique dû à la croissance de l'anisotropie effective lu long du nouvel axe facile.

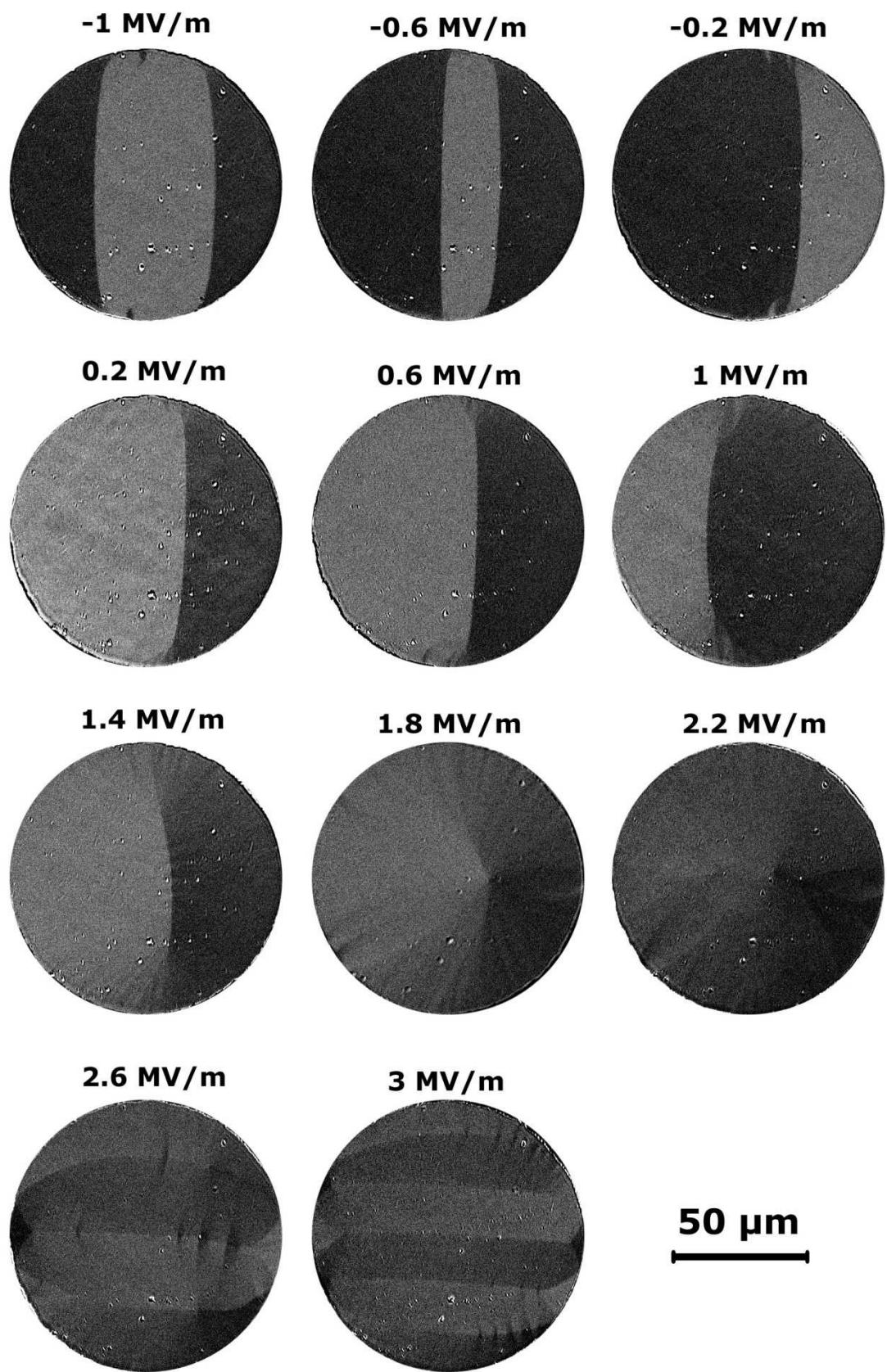


Figure 55. Images Kerr obtenues sur les plots circulaires (de diamètre 100 µm) pour différents champs électriques appliqués sur le composite. Toutes les images sont faites dans l'état désaimanté.

Nous pouvons ainsi extraire la position de l'axe facile d'aimantation en fonction du champ électrique appliqué (Figure 56). La dépendance a le caractère hystérétique lié à l'hystérésis piézoélectrique de la déformation du MFC. Nous constatons que la transition est relativement abrupte mais reste progressive. En effet, l'alignement entre l'axe facile initial et l'axe d'application des contraintes n'est pas parfait dû à l'imperfection du collage. Le résultat est un désalignement d'une dizaine de degrés entre deux axes. Le calcul théorique pour un tel désalignement nous donne cette rotation progressive que l'on observe expérimentalement avec un bon accord (courbe bleu en carrés vides).

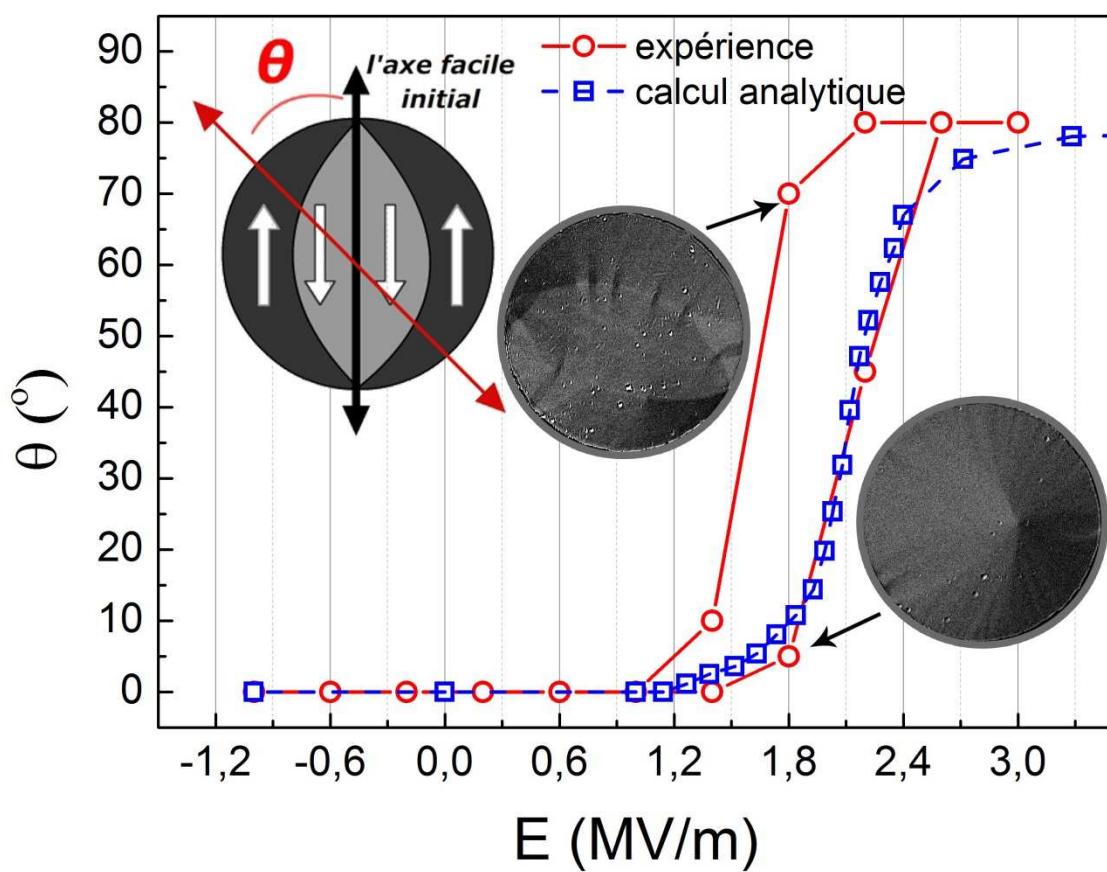


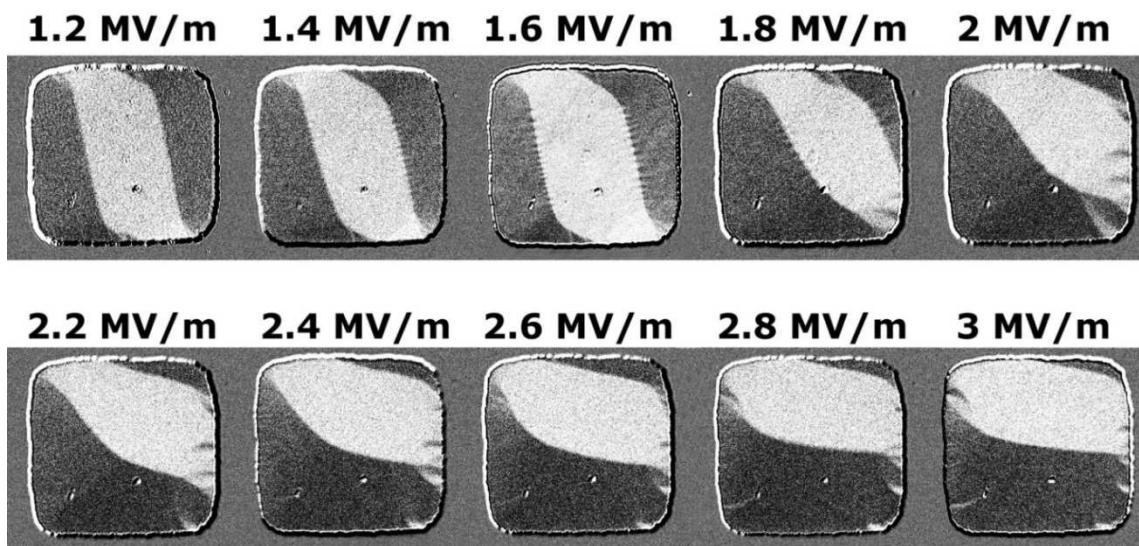
Figure 56. Angle de rotation de l'axe facile d'aimantation en fonction du champ électrique appliqué sur le composite.

Nous allons nous intéresser maintenant au comportement des domaines magnétiques sous l'effet des contraintes générées par le MFC dans la zone de transition mais cette fois-ci à l'état rémanent après la saturation.

## b. Rotation des domaines à l'état rémanent

Les observations précédentes ont été réalisées consécutivement en utilisant la soustraction d'image de fond pour chaque valeur du champ électrique. La difficulté principale de l'expérience présente est de garder la stabilité mécanique de l'échantillon, de prendre une seule image de fond et de réaliser toute la série d'images en continu. Dans la pratique, cela se traduira par la fixation de la position du composite par l'aspiration du composite niveau du support échantillon. Le point d'observation (et de l'aspiration) doit être au plus près du fond de la courbure du composite (sous tension électrique) pour ne pas perdre le focus sur l'image.

Le meilleur résultat en termes de qualité d'image a été obtenu pour un plot carré de 50 µm de côté (Figure 57). Notons que les plots circulaires ont montré un comportement similaire. Pour la valeur du champ électrique la plus faible (état de départ) nous avons la structure classique avec trois domaines principaux et de petits domaines triangulaires de fermeture.



*Figure 57. Evolution de la structure en domaines d'un plot carré (côté 50 µm) en fonction du champ électrique appliqué sur le composite.*

Du point de vue de la structure en domaines, la situation est différente par rapport au cas décrit précédemment. Nous observons des déplacements progressifs des parois de domaines au fur et à mesure de l'augmentation du champ électrique appliqué. Ces déplacements sont engendrés par le changement du terme de d'anisotropie magnétoélectrique qui exige une reconfiguration des moments magnétiques locaux pour minimiser l'énergie libre du système. Deux tendances sont présentes. Premièrement, la croissance progressive d'un de domaine de fermeture (le plus foncé en bas) jusqu'à ce qu'il occupe la quasi-moitié du plot, ce qui est accompagné par la diminution respective des domaines principaux latéraux. Deuxièmement, la rotation continue du domaine central pour finalement former le deuxième domaine principal horizontal. Nous pouvons conclure que dans ce cas-là la modification de la structure en domaines se fait de façon à respecter l'anisotropie

effective et d'une manière continue. Encore une fois, les contraintes produites par le substrat piézoélectrique sont suffisantes pour faire basculer la position de l'axe facile d'aimantation à pratiquement 90°.

## 6.6 Conclusion

Nous avons réalisé un microscope Kerr adapté à la visualisation de la microstructure en domaines magnétiques dans des composite magnétoélectriques à aimantation planaire. La résolution spatiale de ce microscope permet d'étudier des motifs avec les dimensions caractéristiques de quelques dizaines de microns. L'utilisation d'une LED haute puissance nous a permis de simplifier le schéma optique du système, éviter le chauffage nuisible à l'échantillon et d'augmenter l'homogénéité de l'illumination tout en améliorant le contraste.

La rotation de l'axe facile d'aimantation dans les composites laminaires magnétoélectriques microstructurés a été mise en évidence par l'imagerie Kerr. Cette rotation est caractérisée par une transition relativement brusque à proximité du champ électrique critique, ce qui est prévu théoriquement (voir page 26).

L'application du champ électrique produit une modification importante de la structure en domaines à l'état rémanent. Cette modification se fait principalement par le déplacement des parois des domaines principaux en respectant l'état d'anisotropie effective.

Nous allons finir ce chapitre en attirant l'attention sur le fait que l'imagerie Kerr se présente comme un moyen unique de caractérisation des composites magnétoélectriques intégrés. Entre autres, cette technique peut être éventuellement utilisée pour le contrôle industriel « in-ligne » des dispositifs utilisant ces composites.

# 7. Realisation de l'inductance variable MEMS

Dans ce chapitre nous allons détailler la conception, la fabrication et la caractérisation de l'inductance variable intégrée exploitant l'interaction magnétoélastique entre la couche magnétostrictive de FeCoB et un moteur de contrainte MEMS dont le concept a été présenté précédemment. Dans un premier temps nous allons aborder le design des dispositifs ainsi que le procédé de fabrication. Les étapes critiques de la fabrication seront détaillées. Puis, les tests électriques fonctionnels et diélectriques seront présentés. Ensuite, nous verrons des résultats concernant les caractérisations mécaniques, magnétiques et RF des dispositifs. Finalement, dans la conclusion nous donnons des perspectives d'amélioration du design actuel pour permettre le fonctionnement optimal de l'inductance variable proposée.

## 7.1 Design du dispositif

D'une manière très générale une inductance est constituée au moins d'un élément conducteur qu'on va appeler par abus de langage «bobinage» et éventuellement d'une ou plusieurs éléments à forte perméabilité magnétique («noyaux») à proximité de ce bobinage. Plusieurs types de couplage se manifestent à l'intérieur ainsi qu'entre ces éléments. Dans le cas de composant inductif, nous nous sommes intéressés principalement par le couplage magnétostatique entre le noyau et le bobinage qui définit le niveau d'inductance  $L$  (nH). On peut donc proposer trois principes pour réaliser une inductance variable :

- Faire varier la géométrie du bobinage afin de modifier les inductances mutuelles au sein de ce dernier [Lubecke 2001].
- Jouer sur le couplage entre le bobinage et le noyau magnétique en faisant varier leurs positions relatives [Fang 2010].
- Modifier la perméabilité de noyau magnétique [Vroubel 2004, Lou 2009, Liu 2010].

Tous ces trois principes demandent l'utilisation d'un ou plusieurs moyens d'actionnement dans leur mis en œuvre (Rq : à l'exception de Vroubel où il ne s'agit que d'un courant dc dans le bobinage). Il se trouve que les deux premiers principes sont relativement inefficaces pour la réalisation des composants intégrés car ils nécessitent des déplacements importants entre différentes parties du dispositif qui

sont difficilement réalisables en intégré (Rq : tensions d'actuation en électrostatiques élevées > 40V et consommation en actuation thermique trop importante > mA).

Pour ce qui est de la réalisation technologique, il existe trois approches principales. La première consiste à utiliser la technologie CMOS standard soit pour réaliser des inductances actives à base de gyrateurs [Grözing 2003], soit pour obtenir une variable digitale (non continue) en ayant une commutation entre plusieurs niveaux d'inductance [Park 2004]. L'avantage de cette approche est la compatibilité avec des procédés classiques CMOS et le design relativement simple des dispositifs. Les variations de la valeur de l'inductance peuvent atteindre plusieurs centaines de pourcent avec des facteurs de qualité acceptables (3-5 à 2GHz). En revanche, le bruit élevé ainsi que la consommation relativement importante limitent les applications de ce type d'inductance variable.

Une autre possibilité consiste à utiliser des actionneurs MEMS (électrostatiques, thermiques ou magnétiques) pour réaliser des inductances variables basées sur les principes décrits ci-dessus. Généralement un actionnement électrostatique est utilisée [Tassetti 2004, Fang 2004, Okada 2006]. Dans ce cas, les variations d'inductance sont nettement plus faibles comparées aux dispositifs CMOS et se limitent à une centaine de pourcent. Cependant, à la faveur de l'actionnement électrostatique, la consommation est plus basse. En outre, les facteurs de qualité obtenus sont très attractifs (10-30 à 2GHz).

L'actionnement thermique est utilisé principalement pour changer la géométrie de l'inductance [Lubecke 2001, Shih 2004, Oogarah 2011, Zine-El-Abidine 2007] ou bien réaliser des contacts entre plusieurs niveaux d'inductance [Zhou 1999]. La taille de ces MEMS est relativement grande pour pouvoir atteindre des amplitudes importantes de déformation ou déplacement. Le fait d'utiliser le chauffage par courant électrique rend ces dispositifs coûteux en énergie. Néanmoins, les performances RF sont intéressantes avec des valeurs d'inductance de quelques nH, une agilité supérieure à 100 % et des facteurs de qualité satisfaisants.

Finalement, des concepts hybrides sont apparus récemment, comme par exemple une inductance variable réalisée avec un noyau magnétique en ferrofluide, injecté par un système microfluidique [El Gmati 2011]. Les résultats RF publiés à ce jour sont plutôt satisfaisants mais la question de leur intégration réelle reste à explorer.

Après avoir examiné les principales réalisations d'inductances variables actuelles, nous pouvons supposer que la possibilité de jouer directement sur les propriétés du noyau magnétique peut être la plus judicieuse afin d'obtenir une variation d'inductance importante sans utiliser des mouvements de grandes amplitudes. De plus si on arrivait à contrôler les propriétés magnétiques par la tension électrique on pourrait espérer avoir une consommation très avantageuse.

Si l'on considère un bobinage solénoïde infini avec noyau magnétique, l'inductance est directement proportionnelle à la perméabilité du matériau magnétique utilisé. Cette grandeur peut varier entre l'unité (perméabilité relative de l'air) et plusieurs centaines dans la gamme des GHz pour des matériaux de type FeCoB. On pourra ainsi, si l'on arrive à « annuler » le caractère perméable de ce dernier, obtenir potentiellement une variation de perméabilité relative de l'ordre de 1 : 100<sup>aines</sup>. Dans le cas de composants réels, les variations d'inductance seront moindres, car elles seront pondérées par le coefficient de couplage entre bobinage et noyau (qq. 10<sup>aines</sup> de %) qui dépend fortement de la topologie de l'inductance, mais resteront très importantes. En termes applicatifs, on vise typiquement un rapport  $L_{\max}/L_{\min} = 2$  à l'instar des capacités ferroélectriques variables avec  $C_{\max}/C_{\min} = 2$ .

Les deux manières les plus simples de modifier la perméabilité d'un matériau magnétique sont : le chauffage de matériau (à proximité du point de Curie le matériau passe dans l'état paramagnétique ce qui fait fortement varie sa perméabilité) ou l'application du champ magnétique extérieur qui modifie l'anisotropie effective du matériau et donc sa perméabilité. Le défaut principal de ces deux approches est la forte dépense énergétique (consommatrice de courant), ce qui est pénalisant pour des dispositifs intégrés destinés à des applications télécom.

Une autre possibilité, indépendante de toute consommation de courant est de jouer sur les propriétés magnétiques, consiste à exploiter l'interaction magnétoélastique en appliquant des contraintes mécaniques sur le matériau magnétique, sous réserve que ce dernier soit suffisamment magnétostrictif. Effectivement, nous avons vu que les composites magnétoélectriques laminaires (présentés dans le chapitre 3) permettent de modifier fortement l'anisotropie magnétique et respectivement la perméabilité. Nous avons montré qu'un moteur de contrainte piézoélectrique de type « push-pull » couplé avec au matériau magnétique déposé à sa surface pouvait répondre à ce cahier des charges. Cependant, les tensions d'actuation utilisées avec des matériaux piézoélectriques massifs sont trop élevées (kV) pour des dispositifs intégrés. C'est pourquoi, il devient nécessaire ici d'utiliser des couches minces piézoélectriques; la réduction d'épaisseur (< 1 µm) permettant d'accéder à des tensions inférieures à la 10<sup>aines</sup> de volts. Ici, le noyau magnétique de l'inductance sera déposé sur la partie active de la poutre ce qui constituera la brique de base de notre inductance variable. Les contraintes générées dans la poutre par le biais des capacités piézoélectriques d'actuation disposées latéralement, seront transmises à la couche magnétique modifiant la perméabilité du noyau et par conséquent l'inductance de la ligne RF ou du bobinage couplé à ce noyau. Ainsi, nous obtiendrons une variation d'inductance en fonction de la tension appliquée aux bornes des électrodes à l'instar d'une capacité accordable. Ce type de composant présente plusieurs avantages : l'actionnement piézoélectrique ne nécessite que peu d'énergie,

ce mode d'actionnement statique n'affecte pas la stabilité de l'inductance en fonction de la fréquence, de grandes densités d'inductance sont atteignables au prix de bobinages plus complexes (solénoïdes) et les variations de l'inductance sont potentiellement très importantes ( $\geq 1 : 1000$ ). Du moins, ceci est vrai pour les inductances basses fréquences (KHz). Pour les inductances RF, la minimisation des pertes (tangente de pertes) impose un ajustement du rapport entre fréquence de résonance ferromagnétique (FMR) du noyau et fréquence optimale d'utilisation (ratio  $\geq 3 / 1$ ), ce qui conduit naturellement à une réduction de la plage de variation de l'inductance ( $\leq 1 : 100$ ) afin de conserver un facteur de qualité élevé (Q) sur toute la plage de fréquence.

Les spécifications que nous visons pour le composant final sont : l'inductance de l'ordre de quelques nH dans la gamme de fréquences de 1 à 2.5 GHz avec un facteur de qualité supérieur à 5. L'accordabilité maximale visée correspond à  $L_{max}/L_{min} = 2$  pour des tensions de commandes n'excédant pas  $\pm 10$  V.

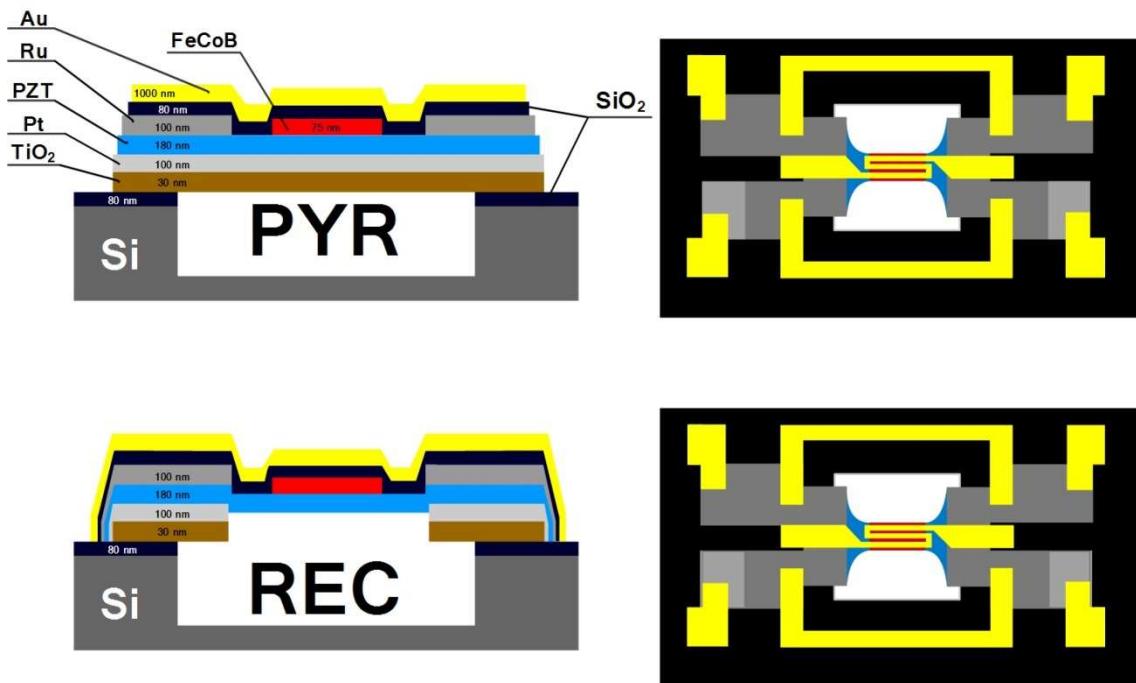
### 7.1.1 Empilement technologique

Un exemple de l'empilement technologique de l'inductance variable proposée est présenté sur la Figure 57.

Le dispositif est composé d'une poutre en PZT doublement encastrée sur le substrat de Si. Cette poutre s'étend continument entre deux électrodes délimitées à ses deux extrémités et qui forment les deux capacités MIM (metal/insulator/metal) latérales d'actuation. Ces capacités sont partiellement libérées du substrat afin et se déforment verticalement selon le mode de déformation  $d_{33}$  du PZT. La transformation en déformation plane de la poutre est réalisée par l'effet Poisson (conservation du volume) grâce à la continuité de la poutre de PZT. Le facteur de forme de la poutre a été optimisé au préalable pour maximiser l'uniaxialité du tenseur de déformation/contrainte en son centre.

Dans l'état de l'art, le PZT est quasiment toujours utilisé sur des substrats platinés sur sous-couche d'oxyde de titane, ce qui constitue une bonne barrière de diffusion au Pb, c'est pourquoi nous utiliserons ce type d'électrode inférieure. L'électrode supérieure est également le plus souvent en platine mais pour des raisons pratiques nous utiliserons ici le ruthénium du fait de la non disponibilité du platine en mode contaminé (après dépôt de PZT). Le matériau magnétique en FeCoB est déposé sur la partie active de la poutre pour maximiser le transfert des contraintes et leur homogénéité. Enfin un niveau d'or permet la réalisation la plus simple de la ligne RF et des reprises de contacts électriques avec les électrodes. Cette métallisation est

séparée du noyau magnétique par une couche d'oxyde de silicium qui joue le rôle d'isolant électrique.



*Figure 57. Représentation schématique des empilements PYR et REC : coupe longitudinale (à gauche) et vue de dessus (à droite). Les dimensions ne sont pas à l'échelle.*

Nous avons conçu deux types d'empilements qui se distinguent par la manière dont les couches sont empilées. Classiquement, pour des raisons de fiabilité, on procède par recouvrement (ou encapsulation) des couches inférieures (label REC), ce qui demande des étapes technologiques bien maîtrisés. Ici, du fait de la nouveauté de l'empilement et de la faible maturité des procédés, on réalisera également une deuxième version où les couches sont empilées de façon pyramidale (PYR) caractérisé par un retrait progressif de chaque couche supérieur. Le défaut de ce type de construction est de laisser des flancs où chaque matériau est localement à découvert, ce qui peut poser des problèmes de corrosion par exemple ou de surgravure latérale. Généralement le PZT est déposé sur substrats de Si platinés c'est-à-dire entièrement recouvert par une couche de Pt. Or, la présence de cette couche diminue l'amplitude des contraintes générées dans la partie active en rigidifiant la structure mécanique. C'est pour cette raison que nous avons décidé de réaliser deux cas de figures :

- Motifs PYR : électrode inférieure continue avec l'empilement le plus simple à réaliser technologiquement
- Motifs REC : électrode inférieure gravée Avec empilement de type recouvrant ici du fait du risque important de court-circuit au passe de marche des électrodes inférieures.

Nous allons voir par la suite comment cette différence d'empilements technologiques affecte les performances des dispositifs.

### 7.1.2 Design des masques

Le design des structures conduit à différents niveaux de masque comme présenté sur la Figure 58.

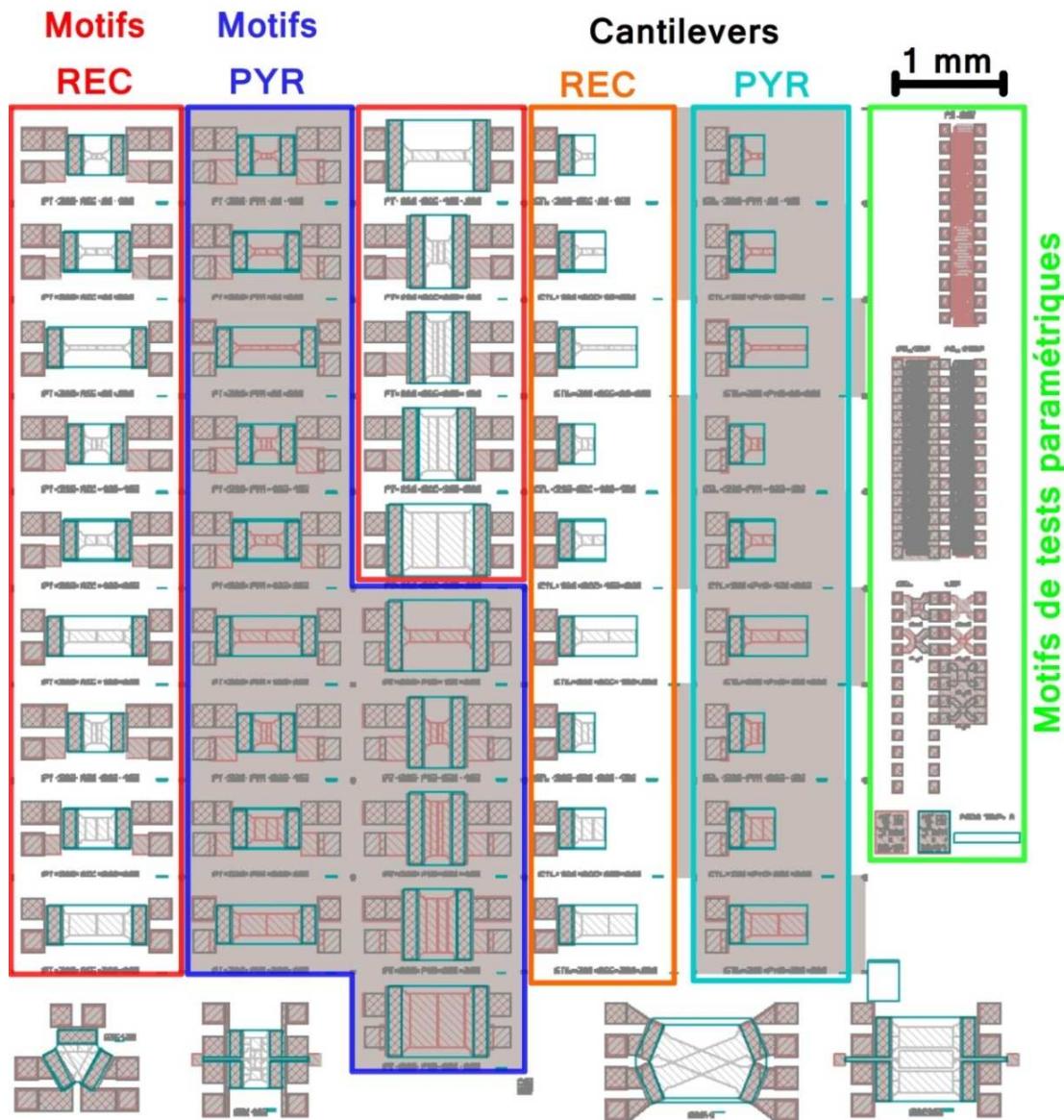


Figure 58. Vue d'ensemble de tous les niveaux de masques pour une puce élémentaire.

La puce élémentaire est composée de plusieurs zones. Les motifs REC et PYR avec différents facteurs de formes sont repartis dans deux blocs séparés. Nous avons prévu différents variantes géométriques pour la partie active des poutres dans le but d'étudier leur influence sur les performances des dispositifs. La largeur varie de 50 à 200 microns et la longueur de 100 à 500 microns. La surface des électrodes a été également mise en jeu. Deux tailles d'électrodes sont choisies,  $150 \times 350 \mu\text{m}^2$  en tant

que standard et une variante avec  $150 \times 650 \mu\text{m}^2$  pour la version large. Les plots d'accès (pads) des électrodes sont adaptés en fonction de la longueur des poutres pour donner toujours la même longueur totale de dispositifs ce qui facilite les tests fonctionnels avec une carte à pointe unique.

Des cantilevers, qui sont la déclinaison exactes de  $\frac{1}{2}$  structures doublement encastrées sont prévus pour étudier la répartition des contraintes résiduelles dans chaque couche utilisée dans l'empilement. Ils n'ont pas de vocation fonctionnelle ici. Bien évidemment, les cantilevers sont également présentés dans les deux versions REC et PYR.

Finalement, des motifs de tests paramétriques standards de type Van der Paw et Kelvin permettent de réaliser le contrôle électrique à tous les étapes de la fabrication.

Cette puce élémentaire est ensuite multipliée pour remplir la surface d'un substrat 200 mm, ce qui donne au total presque 150 puces élémentaires, soit environ 5000 composants par « wafer ».

## 7.2 Fabrication

Cette partie décrit la fabrication des composants. Nous avons choisi le procédé de fabrication sur substrats de silicium de diamètre 200 mm, ce qui est aujourd'hui le standard industriel pour la fabrication de MEMS. Le lot initial de 25 plaques a été réalisé dans les salles blanches 41 pour les étapes non contaminées du début de fabrication puis au BHT pour le reste de l'empilement. En fonction du niveau auquel nous arrêtons la fabrication (PZT, noyau magnétique ou l'inductance complète) le nombre total d'étapes technologiques varie de 70 à 90.

### 7.2.1 Process flow

La Figure 59 présente le procédé de fabrication simplifié des dispositifs. Le substrat de départ est un substrat de Si (diamètre 200 mm) de  $500 \mu\text{m}$  d'épaisseur, représenté en Figure 59-a.



**PYR**

**REC**

(a) Substrat de Silicium



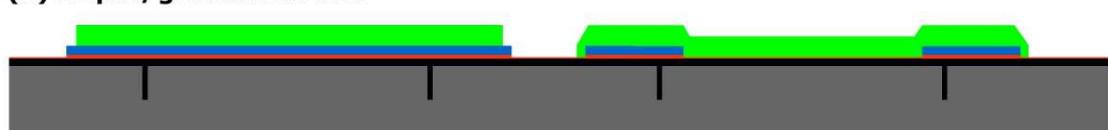
(b) Réalisation des murs d'arrêt de gravure et de la barrière de diffusion en SiO<sub>2</sub>



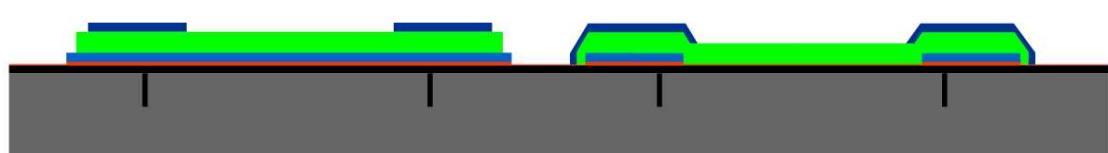
(c) Dépôt/gravure de l'électrode inférieure en TiO<sub>2</sub>/Pt



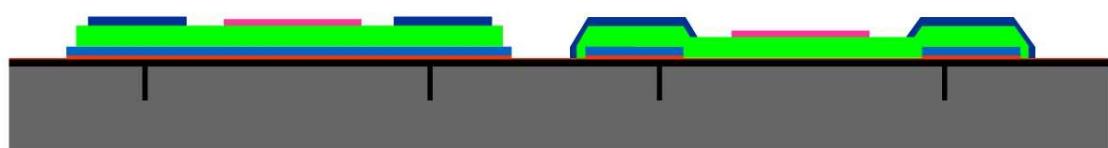
(d) Dépôt/gravure du PZT



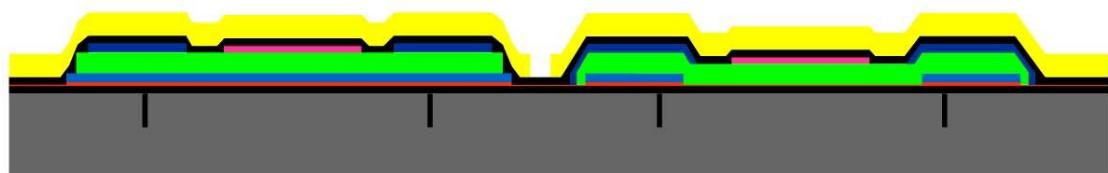
(e) Dépôt/gravure de l'électrode supérieure en Ru



(f) Dépôt/gravure du noyau magnétique en CoFeB



(g) Dépôt/gravure de la couche d'isolation en SiO<sub>2</sub> et de la ligne RF



(h) Libération des dispositifs

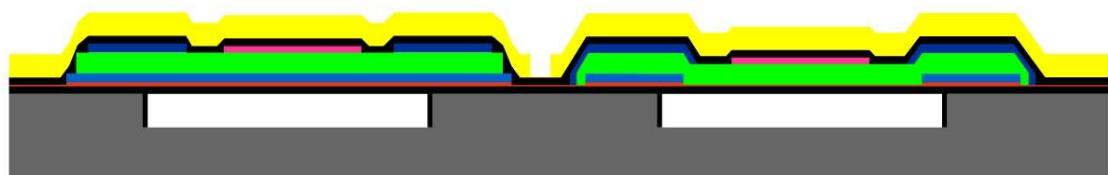


Figure 59. Procédé de fabrication simplifié des versions PYR et REC des inductances.

On commence par graver des tranchées profondes (15 µm) dans le substrat qui seront ensuite remplies par un oxyde de silicium pour créer des murs d'arrêt de gravure pour l'étape finale de libération. Après planarisatoin, on dépose ensuite un second oxyde de silicium plan (80 à 160 nm) qui servira d'isolation électrique avec le substrat et renforcera la barrière de diffusion au Pb. Ces dépôts d'oxyde sont réalisés par PECVD avec un recuit postérieur à 800°C pendant 3 heures (Figure 59-b). L'électrode inférieure de platine (100 nm) est ensuite déposée par pulvérisation cathodique sur une sous-couche de TiO<sub>2</sub> (30 nm). La température de dépôt du platine détermine la texturation à venir du PZT. Dans notre cas le dépôt du platine se fait à 450°C, ce qui impose au PZT la texture la plus favorable suivant le plan (111). La définition des électrodes se fait ensuite par gravure ionique (IBE) en s'arrêtant dans la couche de TiO<sub>2</sub> grâce à un moyen de détection de fin d'attaque (SIMS). Après gravure, on estime qu'il reste entre 5 et 10 nm d'oxyde de titane. Dans le cas de la structure pyramidale (PYR) l'électrode inférieure de Pt est non gravée (continue) (Figure 59-c). Le PZT est ensuite déposé par le procédé sol-gel développé au LETI qui sera présenté par la suite. 3 étalements sont nécessaires pour obtenir le film de 180 nm d'épaisseur représenté en Figure 59-d. L'électrode supérieure ruthénium (100 nm) est ensuite déposée par pulvérisation cathodique, illustré en Figure 59-e. La gravure s'effectue ici par voie humide (chimie), ce qui permet de minimiser la surgravure de la poutre de PZT, ce qui est critique en termes de fonctionnalité mécanique. Le dépôt suivant du noyau magnétique en FeCoB (75 nm) est réalisé par la technique de pulvérisation par faisceau d'ions (IBD) (Figure 59-f). Cette couche ne peut être ensuite gravée que par voie sèche (IBE) et on s'assure que la surgravure n'excède pas 10% grâce au SIMS. Finalement, après le dépôt de la couche d'isolation de SiO<sub>2</sub> (200 nm) et l'ouverture des contacts avec les électrodes, le niveau d'or est réalisé par sputtering conventionnel (PVD) suivi d'une gravure humide (Figure 59-g).

La dernière étape consiste à libérer les poutres et les cantilevers par gravure du silicium massif avec un gaz de XeF<sub>2</sub> (Figure 59-h). Cette gravure est isotrope et sélective. Elle s'arrête naturellement sur les murs de SiO<sub>2</sub> réalisés à la toute première étape. Avant de procéder à la libération, il est nécessaire de graver localement les couches de silice qui recouvrent le silicium du substrat pour permettre l'injection de gaz.

## 7.2.2 Electrode inférieure

La photo correspondant au niveau de l'électrode inférieure après gravure est présentée sur la Figure 60. On peut facilement distinguer les zones correspondant aux futurs dispositifs REC (les deux électrodes inférieures sont séparées) et PYR (l'électrode inférieure est continue).

Le point le plus important de cette étape est de s'arrêter correctement dans la couche d'oxyde de titane. Rappelons que cette couche fait office de barrière de diffusion au Pb. Son épaisseur résiduelle dans le cas des motifs REC est particulièrement critique suite à la gravure du platine. Pour choisir la surgravure optimale nous avons calibré le temps de gravure en utilisant des témoins ayant le même empilement.

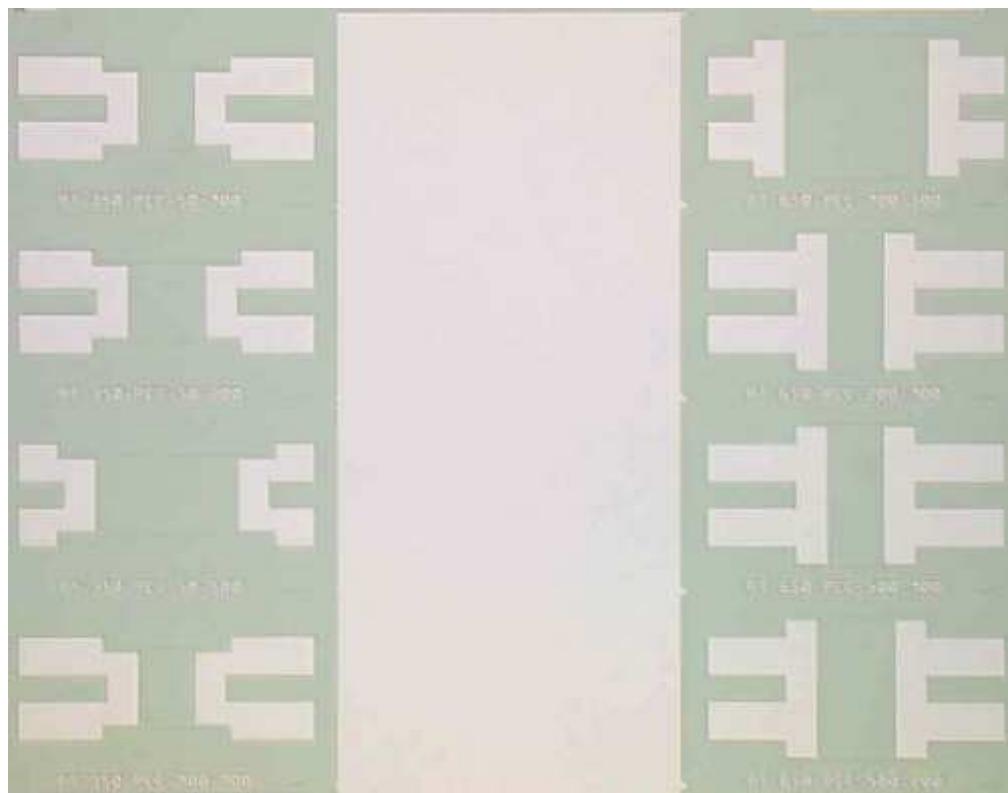


Figure 60. Photo obtenue par la microscopie optique de la couche de platine après la gravure de l'électrode inférieure.

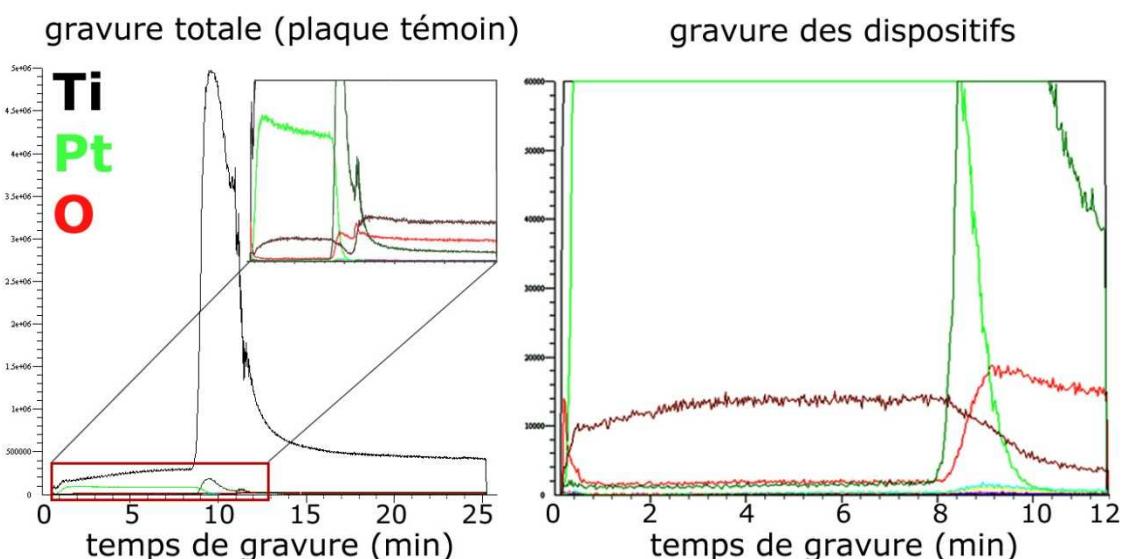


Figure 61. Exemples de profils SIMS de la gravure totale de Pt/TiO<sub>2</sub> sur la plaque témoin et la plaque avec les dispositifs.

Grace au spectromètre de masse à ionisation secondaire (SIMS) intégré dans la machine de gravure nous estimons le temps de la gravure totale de la bicouche Pt/TiO<sub>2</sub> (Figure 61). On peut donc déterminer la fenêtre de temps dans laquelle la couche de TiO<sub>2</sub> est gravée (la courbe décroissante de Ti entre 10<sup>ème</sup> et 15<sup>ème</sup> minute). Le temps de gravure choisi pour les dispositifs était autour de 12 minutes.

### 7.2.3 Dépôt du PZT

Le procédé sol-gel est aujourd’hui la méthode de dépôt du PZT qui permet d’obtenir les propriétés piézoélectriques les plus élevées. Ce procédé est utilisé tant à l’échelle du laboratoire qu’à l’échelle industrielle, par STMicroelectronics [Bouyssou 2005] par exemple. Il consiste à déposer et transformer les précurseurs du matériau dilués dans un solvant. Le procédé comporte quatre étapes :

- dépôt de la solution contenant les précurseurs et gélification sur le substrat,
- séchage de la couche obtenue pour évaporer les solvants,
- calcination de la couche pour éliminer les chaînes carbonées,
- cristallisation des couches déposées en phase pérovskite et densification du matériau.

Le procédé sol-gel utilisé dans cette étude est schématisé en Figure 62. La couche de PZT est d’abord déposée par centrifugation sur le wafer à température ambiante. Elle est ensuite séchée à 130 °C sur une plaque chauffante pendant 5 minutes puis calcinée sur une autre plaque chauffante pendant 5 minutes à 350 °C. Ces opérations sont répétées jusqu’à obtenir 3 couches calcinées (ce qui correspond à l’épaisseur totale de 180 nm). Les trois couches sont ensuite recuites à 700 °C pendant 1 minute dans un four à recuit rapide (RTA Jipelec).



Figure 62. Schéma du procédé sol-gel pour le dépôt PZT.

La composition du PZT déposé (ratio Zr/Ti) est conditionnée par la composition de la solution initiale. On utilise une solution commerciale dont le ratio Zr/Ti est (52/48), car cette composition correspond à la phase morphotropique où les propriétés piézoélectriques sont maximales. La solution contient de plus 10% d’excès

de plomb pour pallier les lacunes de plomb car l'oxyde de plomb ( $PbO$ ) s'évapore à partir de  $300^{\circ}C$ . La solution est composée des précurseurs et solvants reportés dans le Tableau 11.

*Tableau 11. Composition de la solution utilisée pour le dépôt PZT sol-gel.*

	Formule chimique	Concentration massique (%)
<b>Précurseurs</b>		
Acétate de plomb	$Pb(CH_3CO_2)_3H_2O$	12
Zirconium-tetra-n-butoxide	$Zr(n-OC_4H_9)_4$	6
Titanium-tetra-iso-propoxide	$Ti(i-OC_3H_7)_4$	4
<b>Solvants</b>		
1-butanol	$C_4H_9OH$	68
Propylène-glycol	$CH_3CH(OH)CH_2OH$	10

Les paramètres rhéologiques de la solution sont conditionnés par les solvants. Dans la solution, les précurseurs sont partiellement hydrolysés pour former le «sol». Le «sol» est un amas polymérique en suspension formés à partir des particules libérées par l'hydrolyse des précurseurs. La fraction volumique du «sol» augmente, ce qui fait augmenter la viscosité de la solution, jusqu'à former le gel.

Le recuit final est une étape cruciale pour obtenir la bonne phase piézoélectrique de PZT. Il est réalisée dans un four de recuit rapide (RTA : Rapid Thermal Annealing). Des lampes IR viennent chauffer le wafer par rayonnement. Ce type de recuit est extrêmement rapide :  $700^{\circ}C$  pendant 1 minute avec une rampe de température supérieure à  $10^{\circ}C/\text{min}$ . Au cours de cette étape, la couche mince de PZT passe d'un état amorphe à un état cristallisé, en phase pérovskite. Pour former le  $Pb(Zr,Ti)O_3$ , le recuit est réalisé sous flux d'oxygène. La pression est proche de la pression atmosphérique.

Généralement le recuit final se fait sur des dépôts de PZT pleine tranche sur substrats platinés. Donc, la réflectivité de la plaque est homogène sur toute la surface de la plaque, ce qui permet d'avoir un gradient de température relativement faible. Nous avons rencontré des difficultés à cette étape liées au fait que dans notre cas la couche de PZT et l'électrode inférieure de platine ne sont pas continues sur toute la surface du wafer. Cela provoque des forts gradients de température associés à une anisotropie locale de réflectivité et donc la cristallisation devient fortement inhomogène. Lorsque le contrôle de la température est réalisé avec un pyromètre optique, l'aspect irrégulier de la réflectivité peut fausser les résultats de la mesure et faire dériver la température réelle sur la plaque. Grâce à un thermocouple permettant d'estimer la température au niveau de la plaque nous avons constaté qu'il existe un écart important entre la consigne et la température vue par la plaque qui peut dépasser  $200^{\circ}C$ . Cette dérive entraîne un suréchauffement local du PZT qui peut

dépasser 900°C sur les zones sans platine. Ceci provoque le craquage ou la fissuration de la couche de PZT dans les zones où il est directement déposé sur le TiO<sub>2</sub> (Figure 63). La différence principale entre les trois plaques présentées dans cette synthèse est l'épaisseur des sous-couches de TiO<sub>2</sub> et de SiO<sub>2</sub>. La conclusion que nous avons tirée après avoir réalisé plusieurs tests sur des plaques témoins et plaques du lot est que les épaisseurs minimales de TiO<sub>2</sub> est de SiO<sub>2</sub> sont de 30 et 150 nm respectivement pour palier à cet endommagement de la couche de PZT. Cela permet, notamment, de limiter la diffusion de Pb à travers les couches annexes, ainsi que minimiser les contraintes responsables de la fissuration. Dans ces conditions « exotiques », nous avons réussi à maîtriser la cristallisation du PZT. Toutefois, cette dernière reste partielle sur TiO<sub>2</sub> au regard des tailles de grains modérées et d'une texture <111> moins bien définie par rapport au procédé standard sur Pt. Néanmoins, la cohabitation de ces deux structures (PYR et REC) sur une même plaque a conduit à un taux de défaillance élevé des motifs REC (<10 % de bons). La solution optimale à venir, au sens d'un rendement technologique acceptable, est d'avoir un dépôt homogène de PZT sans topologie sur toute la surface du substrat. Cela veut dire qu'on ne devra pas conserver les motifs PYR et REC sur la même plaque mais dédier un lot spécifique à chacune de ces filières.

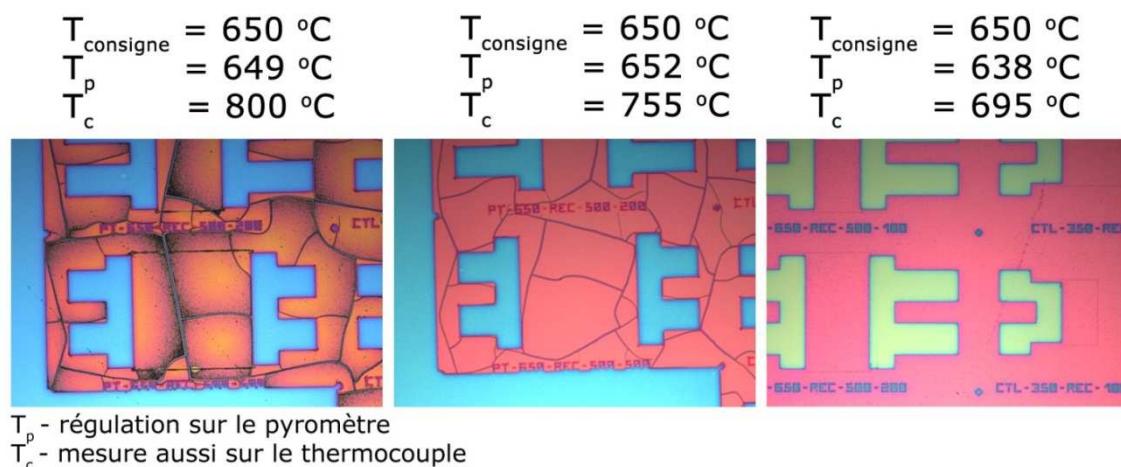


Figure 63. Images au microscope optique des motifs REC après le recuit RTA du PZT correspondant aux trois plaques différentes (épaisseurs de SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub> variables).

## 7.2.4 Electrode supérieure

Après la gravure de PZT qui est réalisé par IBE avec la finition en gravure humide nous pouvons définir l'électrode supérieure en Ru. Cette étape nous permet également de reprendre le contact sur l'électrode inférieure de Pt. La Figure 64 montre les images au microscope optique des motifs juste après la gravure de PZT et après avoir réalisé les électrodes supérieures en Ru. Les carrés blancs de l'image de gauche correspondent à l'ouverture sur les électrodes inférieures de Pt. Le contrôle d'arrêt de gravure est critique et réalisé de façon analogique avec détection SIMS.

Le point important de cette étape est la gravure complète des couches Pt/TiO<sub>2</sub> autour des motifs PYR pour pouvoir réaliser ultérieurement la gravure localisée du SiO<sub>2</sub> indispensable à la libération des MEMS (tout résidu de TiO<sub>2</sub> bloque l'amorçage de la gravure SiO<sub>2</sub> par RIE). Au cours de cette gravure les motifs REC sont protégés par de la résine.

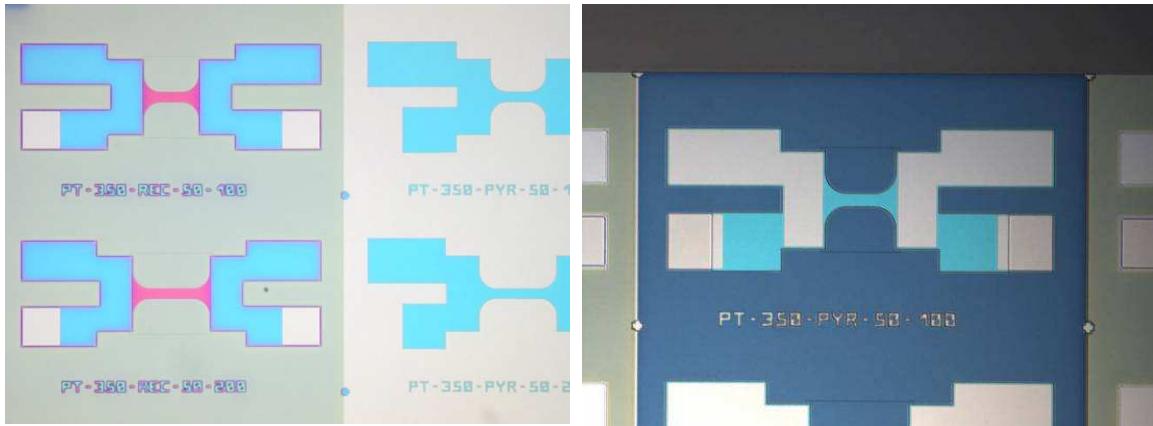


Figure 64. Images au microscope optique des motifs avant (à gauche) et après (à droite) réalisation de l'électrode supérieure de Ru.

### 7.2.5 Dépôt du matériau magnétique

Après avoir fini la brique de base MEMS responsable de l'actionnement nous passons à l'intégration du noyau magnétique. Le dépôt de FeCoB se fait par IBD [McNally 1990].

Cette technique de dépôt possède des avantages par rapport aux autres méthodes de pulvérisation (PVD). Le plasma est généré et confiné dans un canon dont sont extraits uniquement des ions incidents de grande énergie (entre 1 et 30 keV).

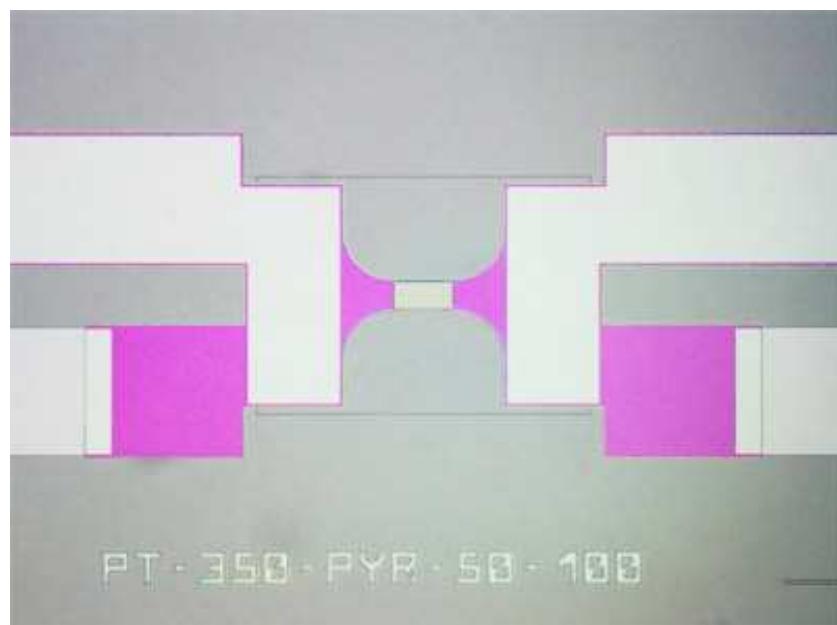
L'absence de plasma dans l'enceinte de dépôt évite toutes sortes de collisions secondaires généralement responsables, de dégradation de surface (ions), d'échauffement parasite (électrons secondaires) et de diminution de densité. Sur ce point, La pression lors du dépôt est de 10<sup>-4</sup> Torr, ce qui est un ordre de grandeur plus faible que lors d'une pulvérisation cathodique. Les couches ne sont donc pas contaminées et sont en général beaucoup plus denses. De plus, Le matériau pulvérisé passe en phase vapeur par bombardement ionique directif (faisceau collimaté) et ne subit pas de collisions secondaires au retour, ce qui permet de conserver une très bonne stoechiométrie. En théorie, tous les matériaux peuvent être déposés,, les diélectriques nécessitent un neutraliseur pour compenser l'excès d'émission d'électrons qui s'accumulent au niveau des grilles d'accélération. Un autre avantage important de l'IBD est l'absence d'échauffement thermique ce qui permet de déposer sur des substrats sensibles à la chaleur comme des substrats organiques par exemple. Enfin, les cibles sont moins sujettes à une érosion non uniforme en raison de l'absence

de magnétron comme en pulvérisation cathodique standard. A l'inverse, le principal désavantage de L'IBD est sa relativement faible vitesse de dépôt (au mieux 10 fois moins qu'en PVD).

Concernant le dépôt de matériaux magnétiques, Il est possible d'appliquer un champ magnétique lors du dépôt. Cela permet d'imposer à la couche une anisotropie uniaxiale magnétique dit induite. Un dernier avantage à l'IBD consiste ici en une grande maîtrise de l'uniaxialité de ce type d'anisotropie qui n'est pas perturbée par les lignes de champs résiduelles des magnétrons auxquelles les matériaux magnétiques ultra doux sont très sensibles. Dans notre cas nous pouvons aligner l'axe d'anisotropie induite avec l'axe des poutres pour la réalisation des composants d'inductance variable ou bien tourne cet axe à 90° afin de travailler par exemple dans les conditions optimales pour l'observation des domaines magnétiques a l'effet Kerr pour l'étude de l'effet magnétoélectrique.

Enfin nous terminerons cette partie sur la propension naturelle à cette technique à l'amorphisation des matériaux déposés due au cumul d'une énergie incidente élevée et d'absence d'échauffement parasite. Nous tirerons profit de cette combinaison pour optimiser les propriétés magnétiques des couches amorphes ultra douces de FeCoB dans cette étude et ouvrir une compatibilité vers les substrats organiques et souples.

Figure 65 montre l'image au microscope optique d'un motif PYR après la gravure IBE de la couche magnétique. Le noyau magnétique occupe la partie centrale ou zone active de la poutre. Pour éviter des problèmes liés à l'imperfection des bords de gravure, la couche magnétique est structurée en retrait de 5 microns par rapport au bord de la poutre en PZT.



*Figure 65. Image au microscope optique d'un motif PYR après la gravure du noyau magnétique.*

### 7.2.6 Métallisation or

L'avant dernière étape consiste à réaliser le niveau d'or. Tout d'abord une couche d'isolation en SiO<sub>2</sub> (100 à 200 nm) est déposée afin de séparer électriquement le noyau magnétique est la ligne RF. Après l'ouverture des contacts avec les électrodes inférieures et supérieures la couche d'or d'épaisseur typique 1µm est déposée par pulvérisation cathodique. Cette couche sert à la fois pour former les plots de contacts des électrodes et définir les lignes de transmission du signal RF. L'épaisseur de la métallisation (1 à 1.5 µm) correspond au standard de lignes RF à fort facteur de qualité élevé ( $Q \geq 5$ ). En fonction des dimensions de la poutre et du noyau magnétique la forme de ligne d'excitation peut varier d'une simple ligne continue à des structures en méandres pour les poutres les plus larges. Dans tous les cas, les lignes de transmission correspondent à une topologie coplanaire avec une terminaison deux ports classique de type Ground/Signal/Ground (GSG) pour mesure en réflexion et transmission. L'espacement des plots GSG est conçu pour respecter une adaptation d'impédance à 50 Ohm à l'entrée.

### 7.2.7 Libération

Finalement, les structures sont libérées par gravure isotrope de silicium en phase vapeur de XeF<sub>2</sub>. Sous pression atmosphérique et à température ambiante, le XeF<sub>2</sub> se trouve initialement en phase solide. Le passage à une pression inférieure à 4 Torr dans un réacteur permet sa sublimation. On obtient alors du XeF<sub>2</sub> sous forme vapeur. Ce gaz fluoré réagit à température ambiante avec le Si. Cette réaction chimique permet la formation de tétrafluorosilane et de xénon sous forme gazeuse. La grande sélectivité (> 1000:1) du Si notamment par rapport aux oxydes minéraux (SiO<sub>2</sub>) en fait l'une technique privilégiée dans le domaine des MEMS.

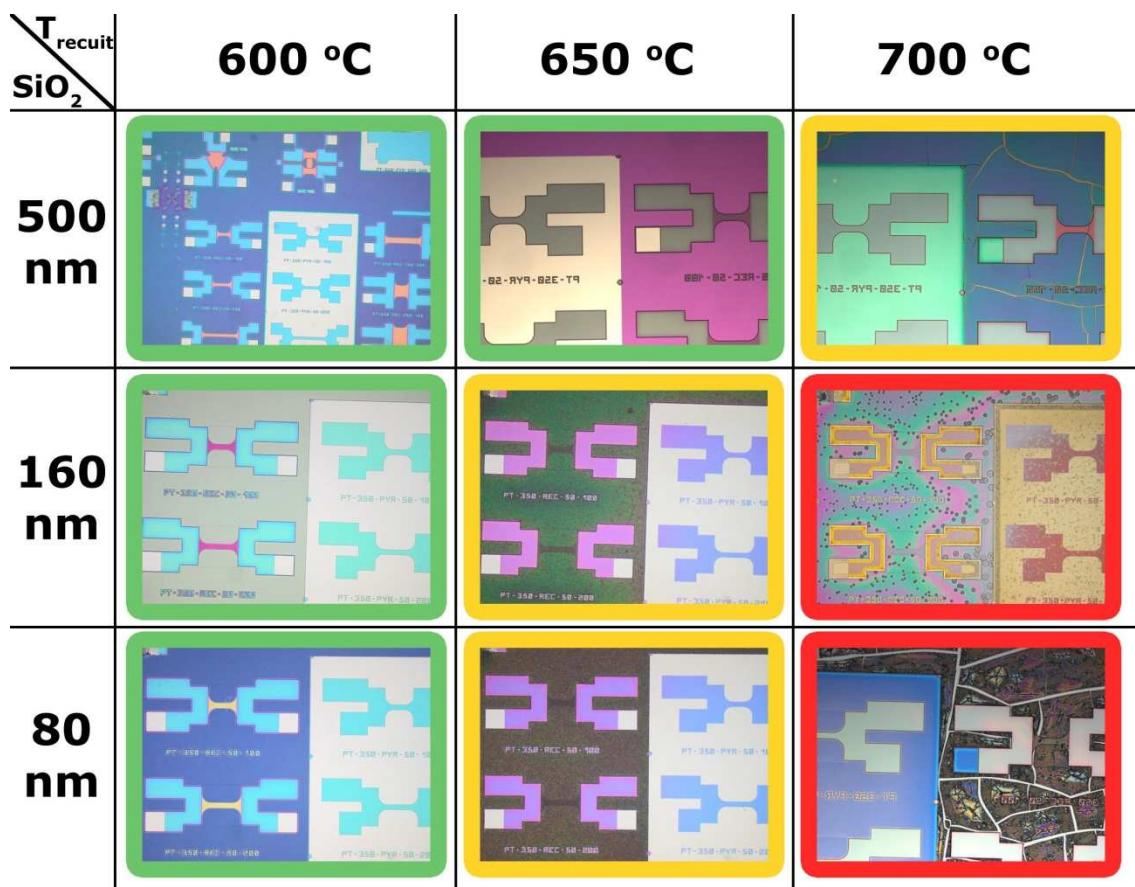
Pour réaliser cette étape nous avons utilisé un bâti X3 Series Xetch (Xactix, USA). Ce bâti est composé d'une chambre de détente dans laquelle le XeF<sub>2</sub> est vaporisé et mélangé au diazote sous basse pression. Le gaz entre ensuite dans la chambre de gravure où est préalablement chargé l'échantillon. Une fois dilué dans du N<sub>2</sub>, il est évacué au moyen d'une pompe primaire. Le temps d'un cycle et le nombre de cycles peuvent être configurés en fonction de l'épaisseur du Si à graver.

Le caractère isotrope de cette gravure n'est pas optimal pour nos besoins. Etant donné que la plus grande distance latérale à graver est de quelques centaines de microns afin de libérer entièrement les poutres, on se retrouve avec une gravure en

profondeur équivalente. Le problème qui se pose est que les murs d'arrêt de gravure (de 15 µm de profondeur) ne peuvent plus empêcher la surgravure de Si sous les électrodes. Ces dernières doivent être partiellement libérées (2/3) pour offrir le meilleur comportement mécanique (voir chapitre 4) mais une libération trop poussée sera source de défaillances structurelles car les ancrages seront quasi inexistantes. Ceci nous a amené à limiter la libération aux structures donc la largeur est inférieure à 100 µm pour garder la rigidité mécanique des MEMS. Le nombre de cycles nécessaires à cette largeur de libération a été déterminé sur les plaques témoins en contrôlant optiquement l'état de gravure après chaque 50 cycles.

Au final, sur les 25 plaques initiales, 50% arriveront jusqu'au bout de la fabrication, ce qui est très acceptable pour une filière inédite en 200mm. 5 plaques offriront de bons rendements (~ 90% pour PYR et ~20% pour REC) pour mener l'étude fonctionnelle à son terme. Le bilan technologique montre que la quasi intégralité des étapes technologiques et leur enchainement sont maîtrisés. Seule l'étape de cristallisation du PZT s'avère insuffisamment contrôlée, ce qui a conduit à une grande disparité des plaques comme illustré ci-dessous. C'est le point le plus critique du procédé.

*Tableau 12. Récapitulative sur la cristallisation du PZT en fonction de la température de recuit et l'épaisseur de la sous-couche de SiO<sub>2</sub>.*



La Figure 66-a présente la photographie d'un wafer de 200 mm de diamètre complètement fabriqué. La Figure 66-b est un zoom sur une puce élémentaire.

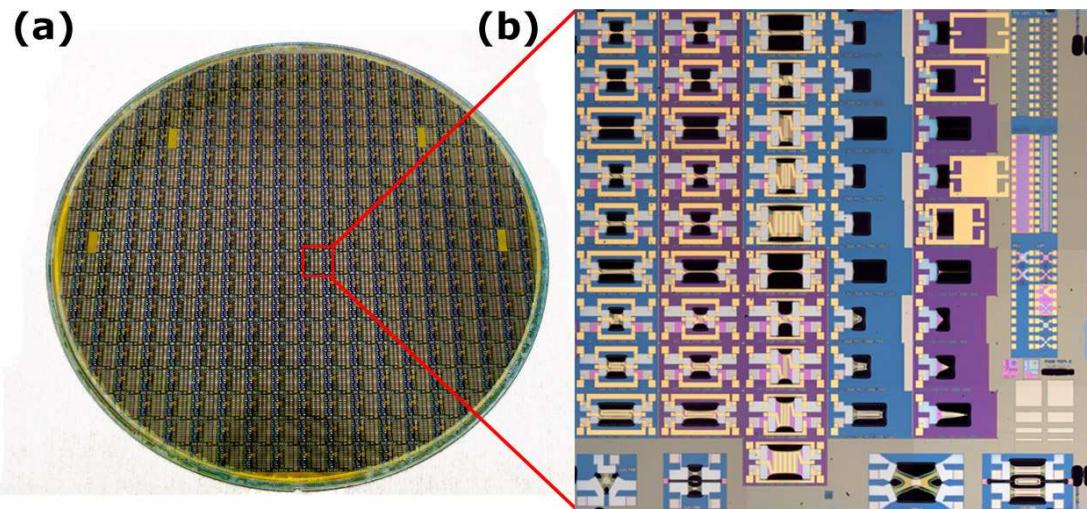


Figure 66. Photographie d'un wafer 200 mm à la fin de la fabrication. Zoom sur une puce.

## 7.3 Tests électriques

Nous avons réalisé différents types de tests électriques au cours et en fin de la fabrication des dispositifs. Tout d'abord, des tests paramétriques de type Van der Paw et Kelvin, nous ont permis de contrôler à la fois qualité des contacts électriques mais aussi l'isolation électrique entre les électrodes à toutes les étapes de la fabrication. Grâce à ces tests, nous avons pu constater, sur les premières plaques, une mauvaise isolation entre les deux électrodes inférieures de Pt des motifs REC, à travers l'oxyde de titane. Ce dernier étant réalisé à partir d'une couche métallique de Ti. Cela indique que l'oxydation a été incomplète pendant le recuit. Nous avons pu effectuer un recuit supplémentaire qui a résolu ce problème pour la suite. Après la fabrication, des mesures  $C(V)$ ,  $D(V)$  et  $I(V)$  ont été faites sur la majorité des structures grâce à un testeur automatique. Ces mesures nous donnent une information sur le rendement des dispositifs fonctionnels et la distribution des paramètres critiques. Enfin, deux types de tests manuels ont été réalisés sur une sélection de puces pour la caractérisation ferroélectrique fine de la couche piézoélectrique de PZT. Les cycles ferroélectriques  $P(E)$  sont obtenus par la méthode Sawyer-Tower, complétés par des courbes  $C(V)$  manuelles.

### 7.3.1 Test automatiques

Un exemple typique de cartographie des dispositifs fonctionnels obtenu à partir des mesures automatiques C, D, I(V) est présenté sur la Figure 67. Le critère de sélection le plus sévère est pris sur le courant de fuites maximal qui ne doit pas dépasser 100 nA. Les trois plaques présentées diffèrent par le budget thermique vu au cours de leur fabrication. L'impact principal sur le rendement est relié à l'étape de de recuit du PZT. D'une manière générale, les dispositifs PYR présentent un net meilleur rendement (jusqu'à 95%) que les motifs REC. Cela peut être expliqué par le changement de l'environnement autour des électrodes dans le cas des structures REC. Le passage entre les zones de Pt et de TiO<sub>2</sub> entraînant un écart de cristallisation significatif du PZT influe sur la qualité des bords et de l'isolation entre les électrodes. Le résultat est l'augmentation significative de fuites. La plaque P6 ayant la meilleure qualité de cristallisation du PZT (cette plaque a été recuite dans les conditions optimales) montre le rendement le plus élevé des dispositifs REC (54 %) ce qui est acceptable ici pour ce type de procédé (PZT sans Pt) inédit.

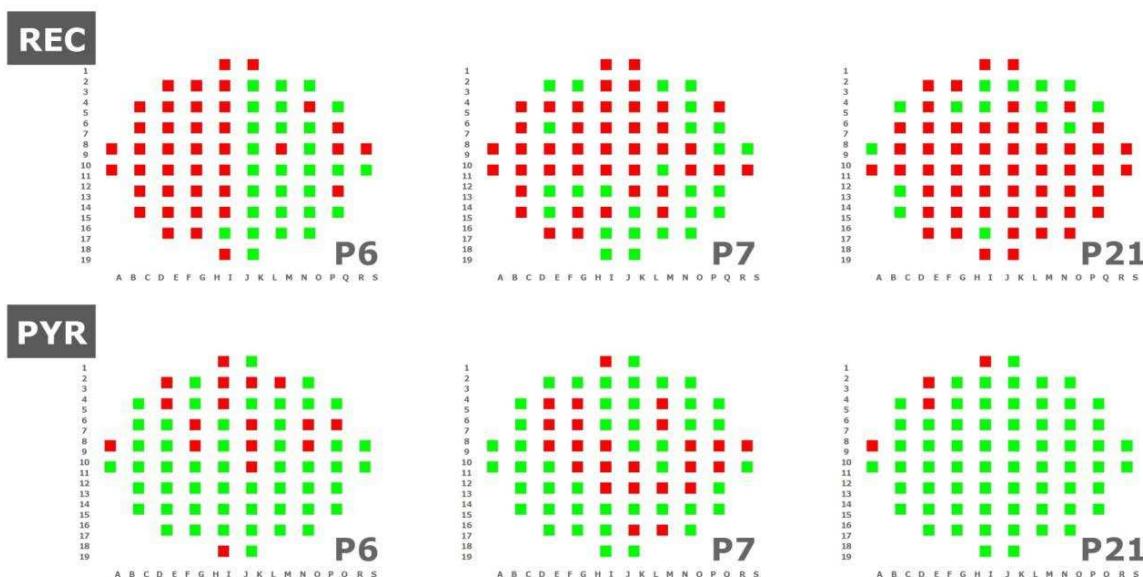


Figure 67. Cartographie des capacités fonctionnelles des motifs REC et PYR pour différentes plaques.

Pour les plaques P7 et P21 qui ont vu une température de recuit trop élevée (750-800 °C) la dégradation du rendement est assez importante. En revanche, le rendement des motifs PYR dépend plus de la qualité d'étalement de la solution sol-gel de PZT que des conditions de recuit.

A partir des courbes C(V) on peut également extraire la valeur de la capacité à 0 V (Figure 68). Toutes les capacités ont été mesurées séparément. La Figure 68 présente la distribution pour chaque capacité individuelle ainsi que la distribution de la somme des deux capacités latérales appartenant au même dispositif. On remarque que la dispersion des valeurs est assez faible (la variation ne dépasse pas 5%) ce qui

indique une uniformité des propriétés diélectriques du PZT relativement bonne sur la surface de la plaque. La différence des valeurs de capacités entre motifs REC et PYR est essentiellement liée aux conditions de cristallisation du PZT (et pas à la différence de surface des deux types d'électrodes  $S_{REC}=12,12 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2$  et  $S_{PYR}=12,9 \cdot 10^{-8} \text{ m}^2$ ). Pour les motifs PYR, on trouve systématiquement une valeur de capacité plus importante que pour les motifs REC. Il est fortement possible que le recuit soit optimal dans les zones plus largement recouvertes par le Pt (zone motifs PYR) tandis que dans les zones où le Pt est alterné avec le TiO<sub>2</sub> (zone motifs REC), on obtient un PZT moins bien cristallisé. Cela est en partie imputable à une dégradation de permittivité électrique pour les motifs REC. Dans le cas de la plaque P6, le calcul de la permittivité donne effectivement  $\epsilon_{PYR}^{max} = 995$  et  $\epsilon_{REC}^{max} = 965$ . Dans les deux cas, Ces valeurs sont inférieures aux valeurs maximales obtenues pour un PZT sol-gel « pleine tranche » sur Pt ( $\epsilon \sim 1100-1300$ ) mais restent néanmoins satisfaisantes et garantes d'un état ferroélectrique dominant même s'il n'est pas complet. Une optimisation du recuit peut permettre de s'approcher de ces performances.

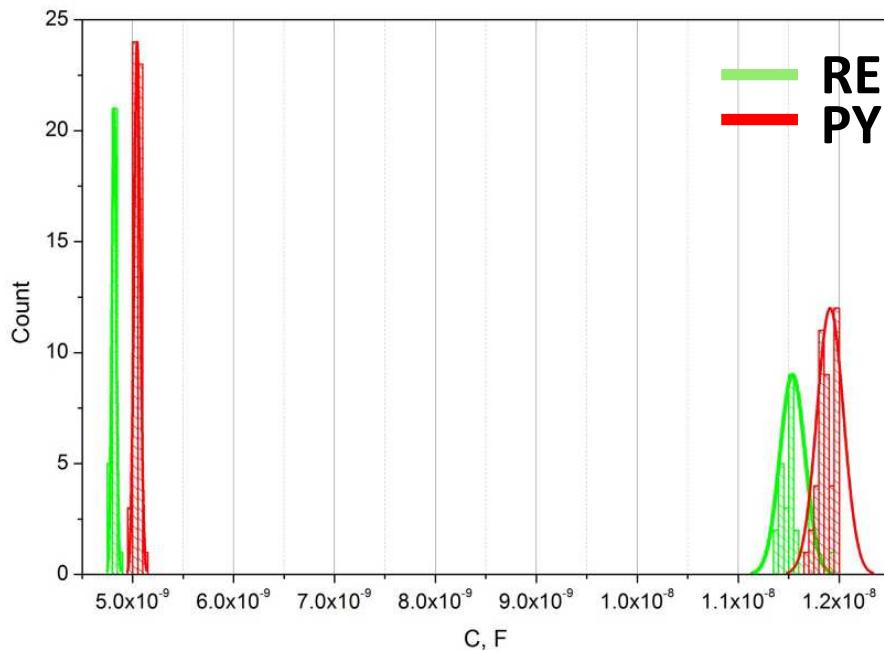


Figure 68. Distributions de la valeur des capacités individuelles pour les motifs REC et PYR ainsi que leur somme (représentative de la fonctionnalité du dispositif).

### 7.3.2 Caractérisation piézoélectrique du PZT

La caractérisation piézoélectrique est réalisée au moyen d'un LCR-mètre HP 4194. L'équipement applique une tension de la forme  $U = U_{DC} + U_{AC} \cdot \sin(\omega t)$ , où l'on peut faire varier  $U_{DC}$ ,  $U_{AC}$  ou  $\omega$ . L'impédance du composant est calculée grâce à la mesure du courant débité. Pour caractériser le PZT, on réalise une mesure C(V), c'est-

à-dire que l'on fait varier la tension de polarisation statique appliquée sur la capacité. Les mesures sont réalisées en appliquant un signal sinusoïdal de fréquence 10 kHz et d'amplitude 100 mV.

La Figure 69 montre un cycle typique C(V) pour une capacité individuelle d'un motif PYR. La forme du cycle de capacité (ou son équivalent en permittivité diélectrique) décrit alors une courbe typique appelée «cycle papillon». Cette forme est la signature du caractère ferroélectrique. Une variation de capacité supérieure à 600% et une tangente de pertes inférieure à 5-6%, nous indique une qualité de PZT relativement bonne. Nous sommes proche des valeurs optimales obtenue dans des filières stabilisées. On remarque aussi sur la figure 69, un décalage du cycle par rapport à l'origine qui est souvent observé dans le cas d'électrodes asymétriques ou constituées de matériaux différentes (Pt et Ru dans notre cas) [Al-Shareef 1995]. L'asymétrie entre deux interfaces diélectrique/métal provoque un champ électrique interne qui fait office de champ de polarisation (bias) permanent.

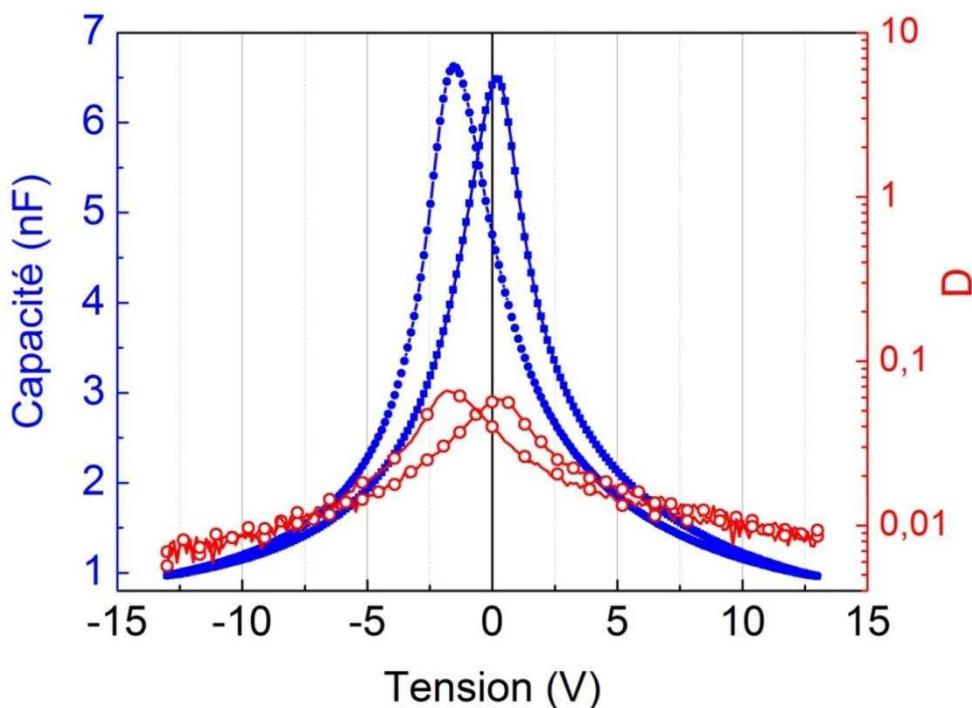


Figure 69. Cycles C(V) et pertes diélectriques pour une capacité d'un motif PYR.

Nous avons également comparé les cycles C(V) entre les plaques qui ont subies des recuits différents (Figure 70). Les plaques P14 et P15 ont été recuites à une température trop basse (600-650°C) pour obtenir un PZT pleinement cristallisé. Cela se traduit directement par une dégradation importante des propriétés diélectriques. De plus, cette cristallisation incomplète modifie l'état d'interface entre le PZT et les électrodes en créant une plus forte asymétrie de la courbe d'hystérésis. Il est également possible qu'un tel traitement thermique favorise un gradient de la composition dans l'épaisseur du PZT et provoque une accumulation de charges non négligeable [Bouregba 2003]. Cette accumulation est généralement observée dans les

couches relativement minces ( $<200$  nm) et due à une forte asymétrie de conduction aux interfaces [Zheng 1996, Bao 2001]. Elle, est aussi observée dans les mesures de cycles ferroélectriques.

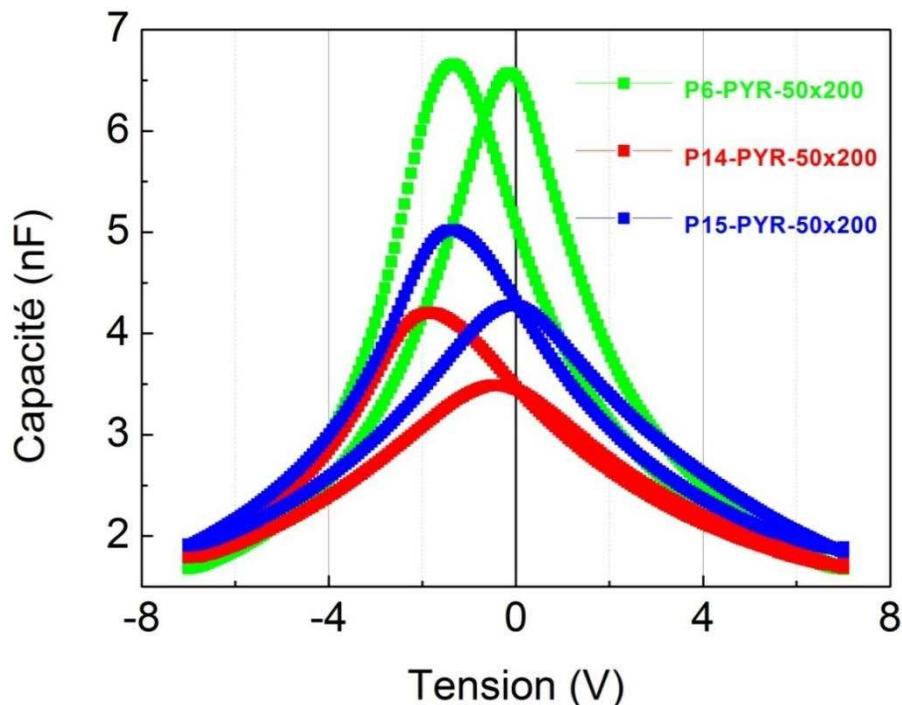


Figure 70. Comparaison de cycles  $C(V)$  pour différentes plaques mesurées.

Les cycles ferroélectriques sont mesurés à partir d'un montage de type Sawyer-Tower [Sawyer 1930]. La capacité à mesurer  $C$  est montée en série avec une capacité  $C_0$  aux bornes d'un générateur de fonction, selon le schéma représenté en Figure 71. Les potentiels  $Y_1$  et  $Y_2$  sont mesurés aux bornes du générateur de fonction et aux bornes de la capacité  $C_0$ . Lorsque la capacité  $C_0$  est très grande devant la capacité PZT, la tension aux bornes de la capacité  $C_0$  est l'image de la polarisation.

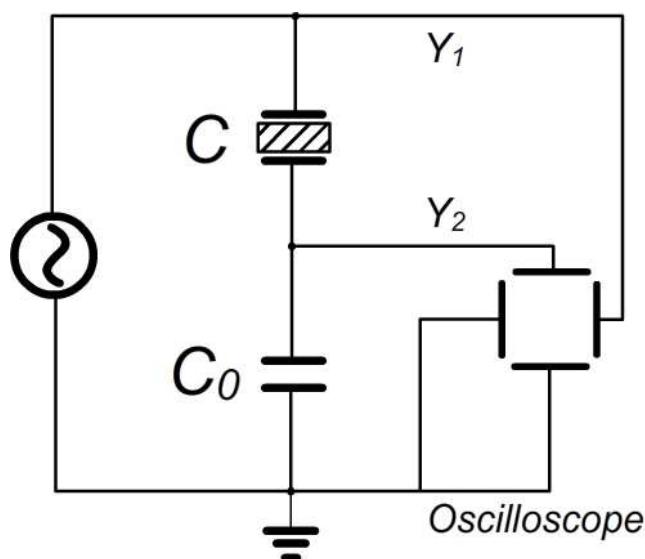


Figure 71. Montage Sawyer-Tower simplifié.

La polarisation et la tension aux bornes de la capacité  $C_0$  sont reliées par l'équation :

$$P = \frac{C_0 \cdot Y_2}{S}, \quad (7.1)$$

où  $S$  est la surface de la capacité PZT, définie par son électrode supérieure. En appliquant un signal sinusoïdal, il est possible de visualiser le cycle d'hystérésis de polarisation du PZT. La fréquence de mesure est généralement de 1 kHz.

Un exemple typique des cycles ferroélectriques en fonction de la tension DC appliquée et présenté sur la Figure 72. Le champ coercitif de 50-60 kV/m est relativement faible et proche des valeurs obtenues pour les couches piézoélectriques « pleine plaque » sur Pt. Nous notons que La polarisation maximale est de 30-35  $\mu\text{C}/\text{cm}^2$  ce qui correspond à l'état de l'art actuel pour le PZT sol-gel.

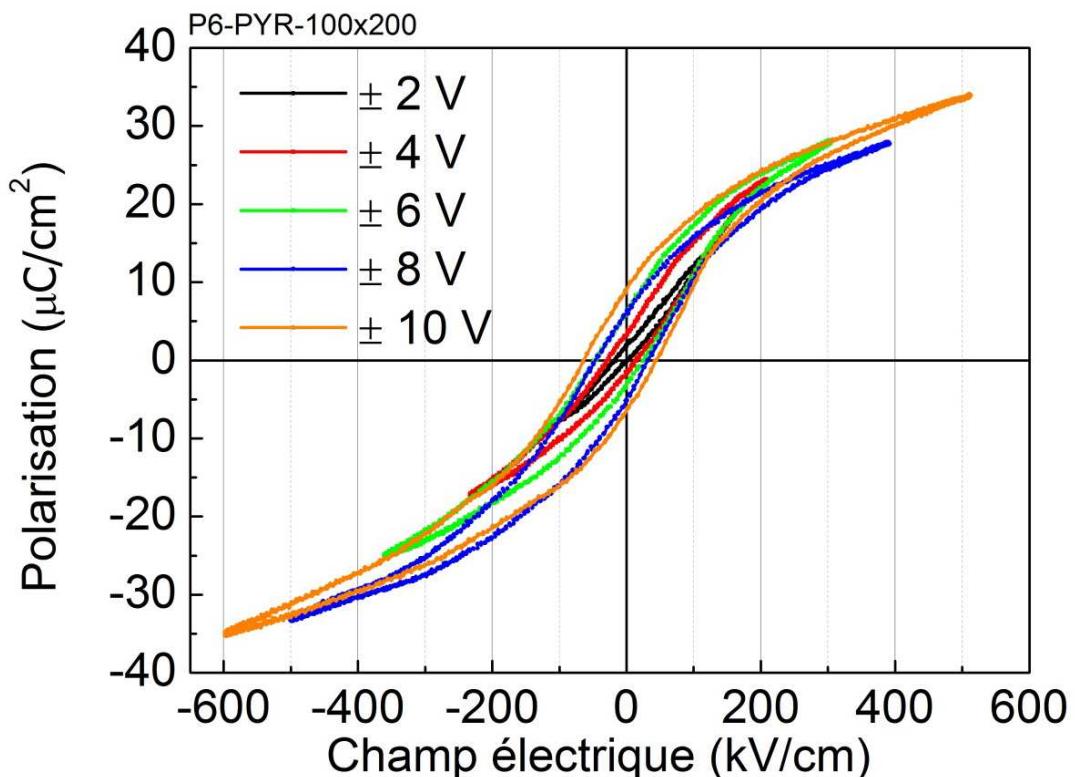


Figure 72. Cycles d'hystérésis de la polarisation en fonction de la tension appliquée maximal.

La dépendance en fréquence de la forme du cycle ferroélectrique (Figure 73) manifeste le comportement classique pour les ferroélectriques de type pérovskite (massif et couches minces) [Wongdamnern 2009]. L'augmentation de la fréquence de mesure provoque une diminution du champ coercitif  $E_c$  et une légère baisse de la

polarisation à saturation. La diminution d' $E_c$  est principalement liée à l'augmentation du courant de fuite à basse fréquence et à la dynamique de retournement des domaines ferroélectriques. Ce comportement peut être plus ou moins marqué pour différents degrés de cristallisation du PZT.

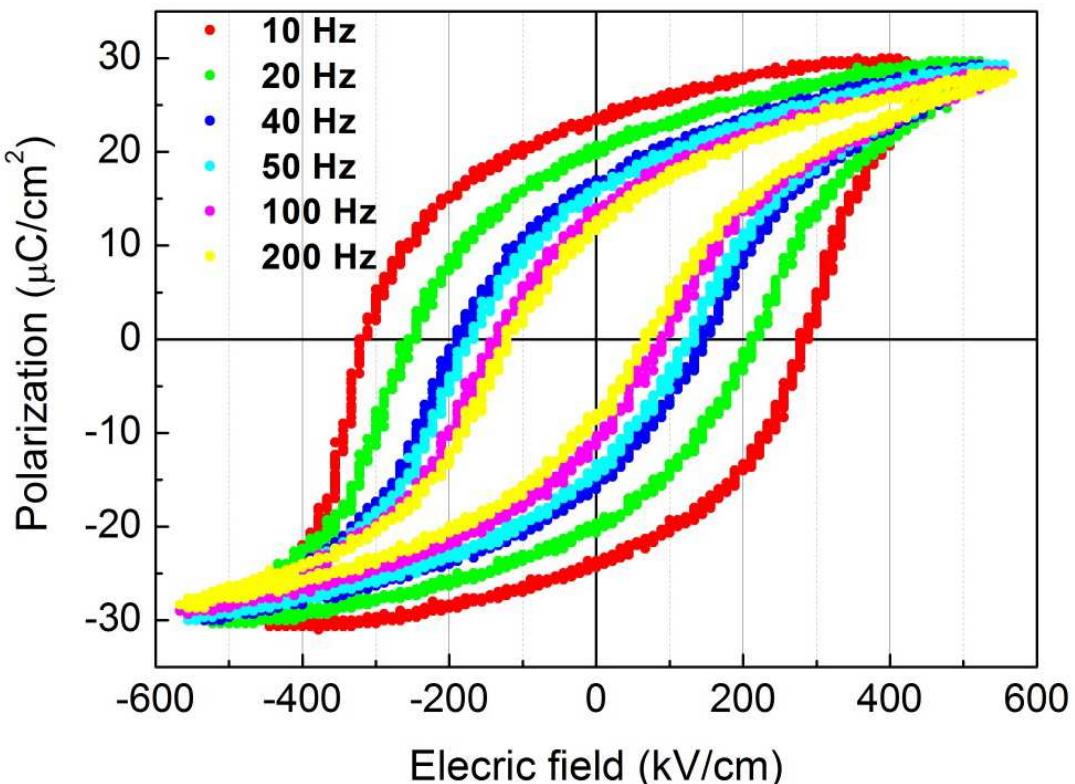


Figure 73. Cycles d'hystérésis de la polarisation en fonction de la fréquence de mesure.

Entre autre, nous avons observé une forte dérive de polarisation sur les plaques qui ont subi un recuit insuffisant (par exemple P14, P15). La Figure 74 montre un exemple d'un tel comportement. Cet effet a été reporté dans la littérature surtout pour des épaisseurs assez faibles de PZT [Bao 2001]. L'origine exacte de cette dérive n'est pas encore établie, néanmoins il peut y avoir plusieurs sources. L'effet est principalement observé dans des ferroélectriques avec un fort gradient de composition. Cela peut provoquer une asymétrie de conductivité au niveau des interfaces avec les électrodes, favoriser l'accumulation de charges et créer des dipôles liés aux défauts (surtout des lacunes d'oxygène). Plus la tension appliquée est grande, plus l'effet est prononcé. En pratique, la présence de cette dérive abaisse fortement la tension de claquage, en particulier dans le cas de sollicitation statique. C'est ce que nous observons.

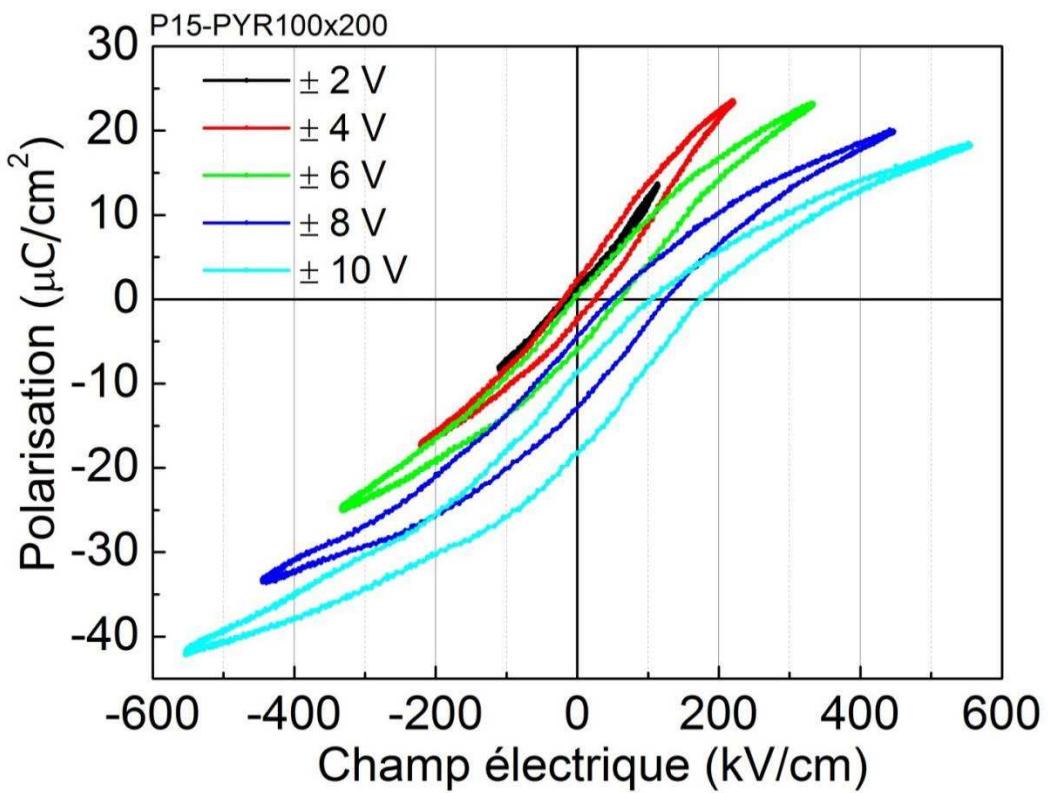


Figure 74. Cycles d'hystérésis de la polarisation pour l'échantillon présent une dérive de polarisation.

Des tests de claquage ont été effectués (Tableau 13). Ces tests confirment globalement les tendances observées dans les mesures ferroélectriques. Meilleure est la cristallisation, meilleure est la tenue en tension. Les motifs PYR ont systématiquement un champ de claquage plus élevé que les motifs REC. Les champs de claquage les plus élevés sont 70 MV/m et 30 MV/m pour les motifs PYR et REC respectivement. Ces valeurs sont représentatives d'un PZT d'épaisseur modérée (200nm)

Tableau 13. Tensions de claquage (V) pour différentes plaques.

	P6	P14	P15	P22
PYR	13-14	8-10	9-10	3-4
REC	5-6	4-5	4-5	2-3

## 7.4 Caractérisation mécaniques des structures

Les dispositifs fabriqués en technologie MEMS subissent des contraintes résiduelles qui peuvent influencer les performances, créer des défauts ou même endommager les dispositifs (arrachement, rupture mécanique...). C'est pour cette

raison que l'étude des contraintes et des déformations résiduelles et au sein de nos dispositifs est une étape indispensable à la compréhension de leur fonctionnement. Dans ce paragraphe nous allons, tout d'abord, nous intéresser à la topologie des dispositifs REC et PYR après l'étape de libération, pour trois cas de figure (poutre de PZT seule, avec la couche magnétique et enfin avec la ligne RF). Les motifs de type cantilever ont été également mesurés dans le but de remonter aux contraintes résiduelles générées par ces trois grandes étapes de fabrication. Ensuite, nous allons voir comment à partir de ces mesures, on peut calculer les contraintes résiduelles analytiquement et par la méthode des éléments finis. Finalement, les résultats de tests fonctionnels sous actuation piézoélectrique réalisés par la technique d'interférométrie double-faisceau seront présentés.

#### **7.4.1 Déformation des cantilevers et des poutres après la libération**

L'étude de la déformation des poutres et des cantilevers a été réalisée grâce au profilomètre optique 3D Wyko. Ce travail a été fait dans le cadre d'un contrat d'alternance.

Le profilomètre Wyko-NT9300 utilise le principe de l'interférométrie à balayage vertical (VSI – Vertical Scanning Interferometry) pour reconstruire la topologie de l'échantillon. Le fonctionnement est le même que pour un microscope à interférence de type Mirau. La lumière blanche est séparée en deux faisceaux sur un miroir semi-réfléchissant. Un de ces faisceaux est redirigé vers une surface de référence et l'autre sur l'échantillon. Le faisceau réfléchi par l'échantillon et celui de référence sont recombinés pour former des franges d'interférence qui sont projetées sur un capteur CCD. Le contraste des franges est ensuite analysé. Un algorithme de démodulation de l'enveloppe du signal obtenu permet de reconstruire la topologie (différence de hauteur) de l'échantillon par rapport à la surface de référence.

Pour cette étude, trois plaques différentes ont été sélectionnées afin de voir la progression à trois grandes étapes de la fabrication (briques de base) :

- Brique de base « PZT » : La plaque P06 est stoppée après structuration de l'électrode supérieure et amenée directement à l'étape de libération (poutre de PZT seule).
- Brique de base « FCB » : La plaque P22 est stoppée après la réalisation du noyau magnétique en FeCoB et amenée à l'étape de libération (poutre de PZT + FCB). Cette étape comprend la couche d'isolation de  $\text{SiO}_2$ .

- Brique de base « ligne RF » : la plaque P15 correspond au procédé complet avec réalisation de la ligne RF par ajout d'une métallisation Au ( $1\mu\text{m}$ ).

L'information que souhaitons extraire est de nature topologique (différence de hauteur) afin d'estimer les hauteurs physiques des différentes couches et les déformations mécaniques subies par la poutre (ou le cantilever). Or, le résultat de ce type de mesure optique dépend aussi de la réflectivité et de l'indice optique de la surface de l'échantillon (donc du matériau éclairé). Il est donc indispensable d'avoir une référence non-topologique pour pouvoir soustraire ce contraste purement optique. Dans notre cas, nous utilisons comme référence « optique » le profil d'une poutre du même type mais non-libérée

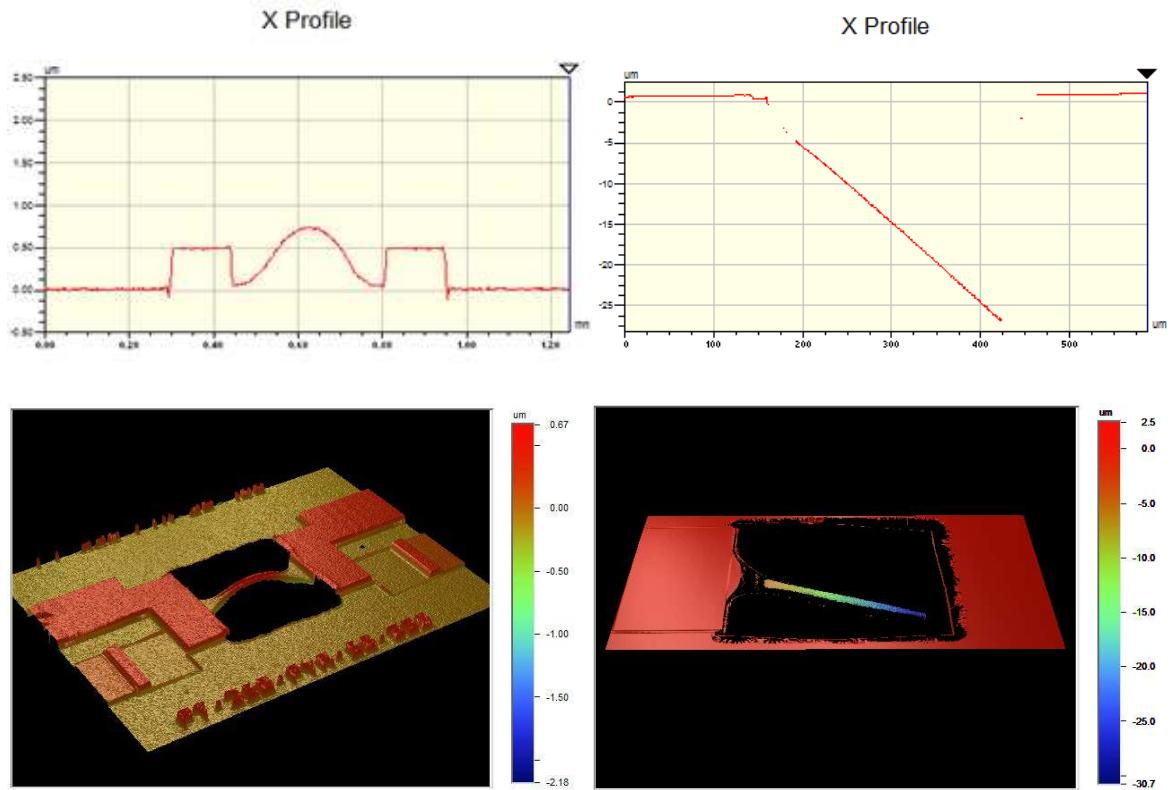
Nous allons voir dans ce qui suit comment évolue la déformation résiduelle après libération des dispositifs REC et PYR 50-200 et des cantilevers associés après les trois briques de base du procédé de fabrication

#### *a. Brique de base « PZT »*

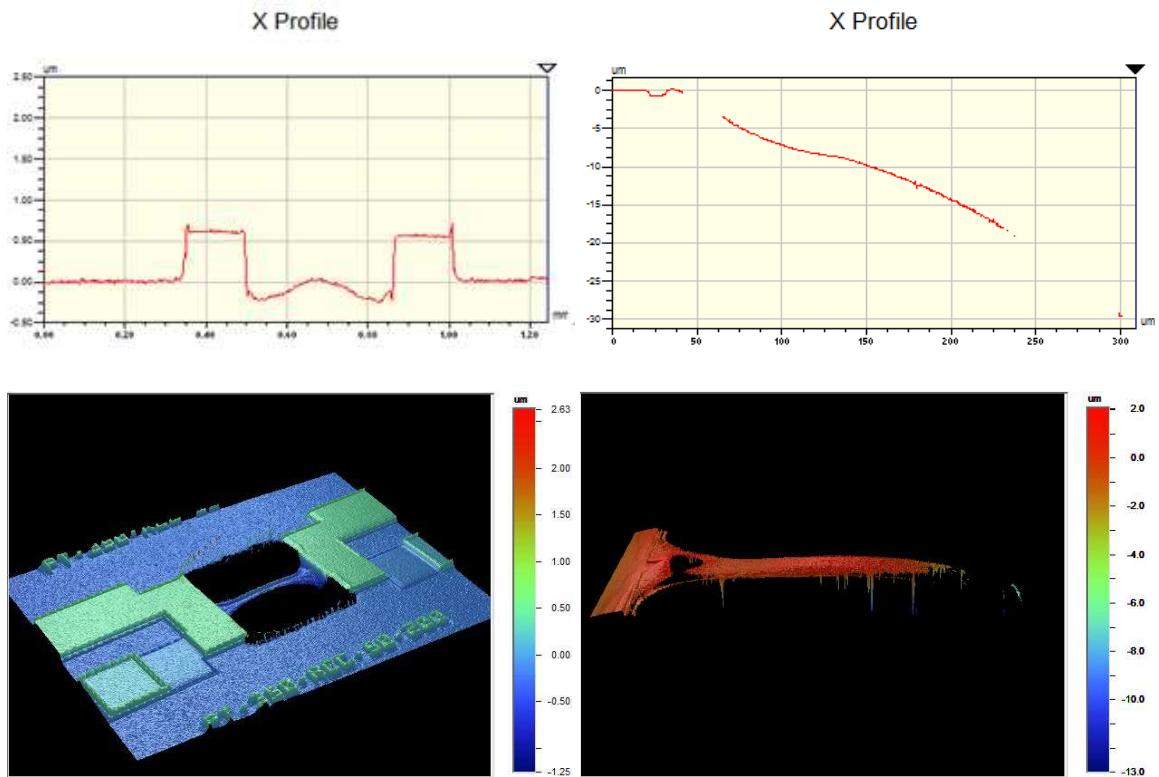
Figure 75 et 76 présentent les profils de déformation des dispositifs REC, PYR et CTL 50-200 de la plaque P6.

On remarque que les poutres ont tendances à se déformer vers le haut. Cette tendance est observée pour toutes les géométries des poutres. Plus la longueur des poutres augmentent plus elles se déforment. Toutefois, cette déformation résiduelle verticale est à mettre en proportion à la longueur des poutres (ou cantilevers) qui font plusieurs  $\mu\text{m}$  (attention aux échelles sur les figures). L'amplitude de ce flambage varie de 200 à 600 nm pour des structures PYR et de 100 à 200 nm pour des structures REC. En comparant aux cantilevers (CTL), on remarque que les cantilevers plonge dans la cavité jusqu'à plusieurs dizaines de micromètres (de 20 à 30  $\mu\text{m}$ ), on en conclu que la poutre subit un gradient de contrainte vertical positif (surface en tension, dessous en compression).

Dans le cas des types PYR, ce gradient est nettement plus important et est principalement imposé par la contrainte initiale (avant libération) du platine qui est en forte tension, cherchant à « perdre » de l'espace après libération. Cette couche en tension cherche à se contracter, comme elle est située sous le PZT, elle le fait dévier les CTL vers le bas Ceci conduit à un profil de poutre bombée vers le haut (flambage positif) sur le dispositif complet. Les valeurs exactes de la déformation des cantilevers (non présentées ici) nous permettront par la suite de calculer les contraintes résiduelles dans chaque couche.



*Figure 75. Profils le long de la poutre et du cantilever et leurs vues 3D respectives pour les dispositifs PYR 50-200 et CTL 50-200 (P6).*



*Figure 76. Profils le long de la poutre et du cantilever et leurs vues 3D respectives pour les dispositifs REC 50-200 et CTL 50-200 (P6).*

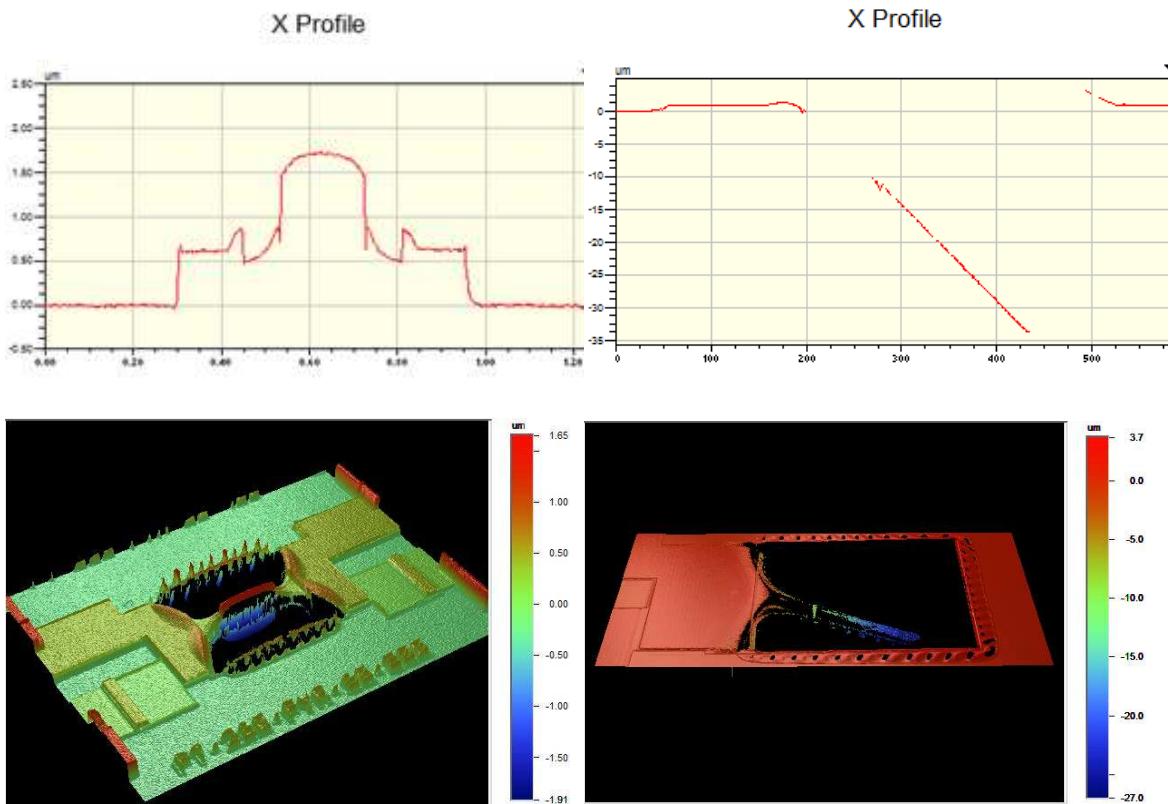


Figure 77. Profils le long de la poutre et du cantilever et leurs vues 3D respectives pour les dispositifs PYR 50-200 et CTL 50-200 (P22).

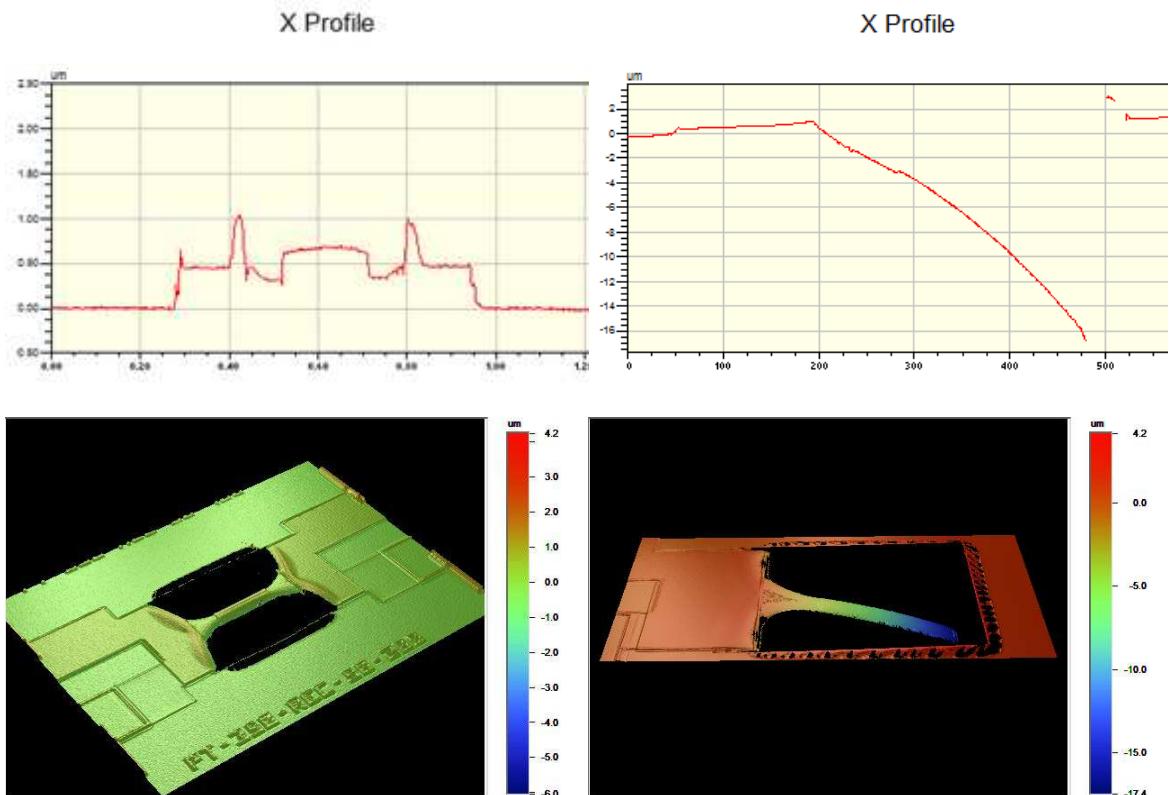


Figure 78. Profils le long de la poutre et du cantilever et leurs vues 3D respectives pour les dispositifs REC 50-200 et CTL 50-200 (P22).

### b. Brique de base « FCB »

L'étape suivant est de regarder l'impact du niveau magnétique sur les déformations des dispositifs. C'est le cas de la plaque P22 (Figure 77 et 78). Le flambage reste positif dans tous les cas. Les motifs PYR sont toujours les plus déformés mais l'amplitude du flambage est supérieure au cas précédent (600 à 2300 nm) et ce d'autant plus que la poutre est longue. Les motifs REC sont globalement moins déformés qu'à l'étape antérieure (50 à 450 nm) mais ont cette même tendance quand la longueur augmente. Le fait que la couche magnétique est structurée localement au centre de la partie active de la poutre fait apparaître des déformations en « accordéon » entre les bords intérieurs des électrodes et ceux de cette couche. Cette déformation résiduelle localisée est le résultat de gradients de contraintes dans le plan dus à la forte hétérogénéité de ces zones intermédiaires (épaisseurs, nature des matériaux différentes, passage de marche...). Cela peut affecter le transfert des contraintes et donc les performances de nos dispositifs. Une des solutions possibles est de déposer la couche magnétique sur toute la surface des poutres et éviter ainsi les points ou zones de concentration de contraintes. La couche magnétique quant à elle renforce le gradient vertical positif, signe d'une contrainte initiale en compression (signe opposé à celle du Pt) qui se traduit après libération par une flexion vers le bas encore plus importante des cantilevers dans la cavité (plus quelques microns de flexion supplémentaires). Cela corrobore l'observation d'un flambage positif plus important sur les dispositifs complets.

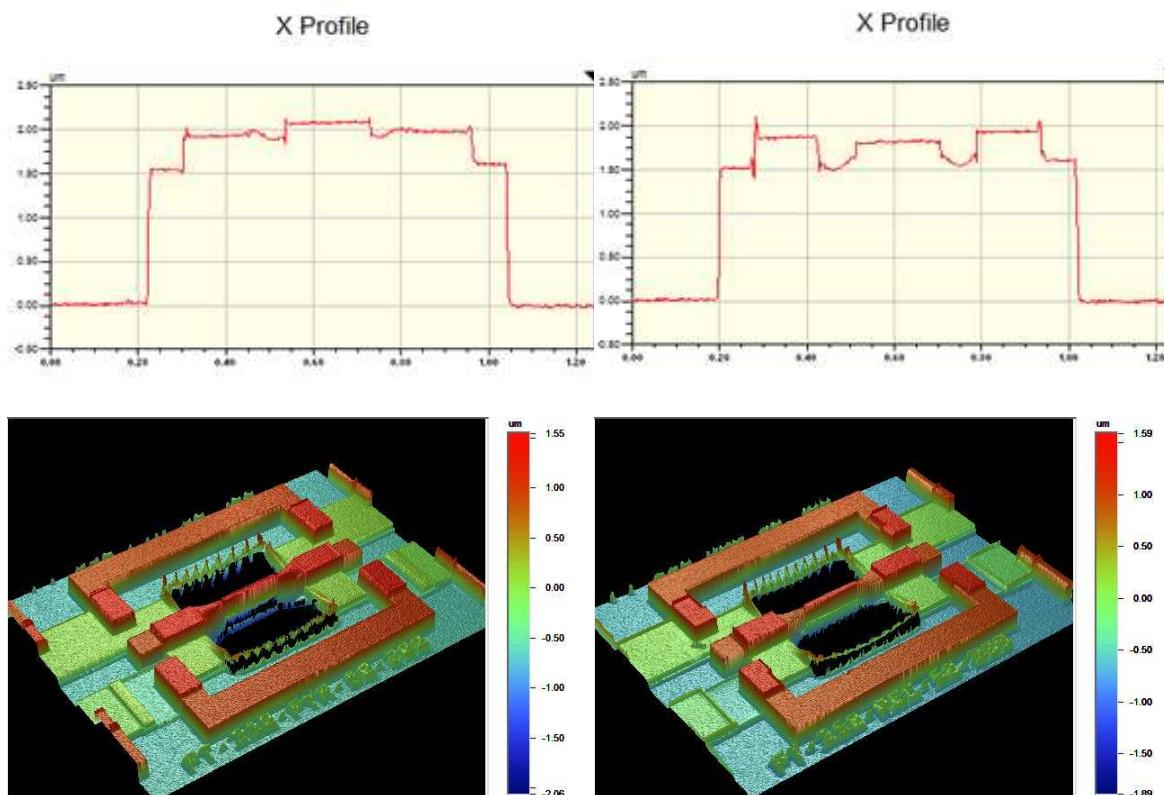


Figure 79. Profils le long de la poutre et leurs vues 3D respectives pour les dispositifs PYR 50-200 (à gauche) et REC 50-200 (à droite) (P15).

### **c. Brique de base « Ligne RF » :**

Finalement, le dernier cas de figure correspondant à l'empilement complet avec la ligne d'or d'un micron d'épaisseur est présenté sur la Figure 79. On constate que la présence de l'or « aplati » (flambage positif plus faible) le profil des poutres des motifs PYR et REC. Les dispositifs ne sont quasiment plus déformés. Un léger flambage reste néanmoins observable sur les motifs PYR avec la largeur de 100 microns mais dans l'ensemble les amplitudes de déformations de dépassent pas 100 nm. Cela est principalement lié à l'épaisseur importante de la couche d'or.

Nous effectuons le bilan de ces observations. Aux trois briques de base, on remarque des comportements différents au fur et à mesure que l'on ajoute un niveau. Le platine inférieur étant de loin le matériau le plus contraint (en tension) de tout l'empilement. Cela provoque une déformation considérable des poutres de type PYR ; l'ajout du matériau magnétique supérieur dont la contrainte est inversée (compression) amplifie cet effet. La nature compressive du FeCoB amorphe est liée à la méthode de dépôt utilisée ici (IBS). En revanche, on observe qu'en ajoutant la métallisation de la ligne RF, la tendance au flambage s'estompe sur tous les dispositifs. En raison de l'épaisseur de cette couche très grande devant les autres, il est probable que la fibre neutre de la poutre se déplace vers le haut modifiant profondément la contribution des autres couches au gradient vertical de contraintes. A ce stade, l'or apparaît tensile avant libération (même signe que Pt) contribuant à relaxer le gradient vertical de contrainte des poutres. D'un côté, cela est favorable à une transmission efficace des contraintes par les actionneurs piézoélectriques latéraux du fait de l'absence de flambage. De l'autre côté, une telle épaisseur de métallisation peut bloquer la transmission des contraintes au niveau de la poutre par une rigidification trop grande, bien que l'or possède un module d'Young relativement faible (70 GPa). Une étude complémentaire est nécessaire pour déterminer épaisseur de l'or optimale permettant d'avoir un bon facteur de qualité pour la ligne de transmission RF et un impact mécanique minimal sur le transfert des contraintes.

Grace aux observations complémentaires des cantilevers nous avons pu remonter aux valeurs des contrainte résiduelles de chaque couche mise en jeu et vérifier la cohérence de la déformation des dispositifs complet ainsi que l'influence de ces contraintes sur l'actionnement piézoélectrique. Cela est le sujet du paragraphe suivant.

## **7.4.2 Calcul des contraintes résiduelles**

Tout d'abord, il est bon de rappeler ce qu'on appelle les contraintes résiduelles : ce sont les contraintes qui subsistent dans les pièces mécaniques qui ne sont soumises

à aucun effort extérieur. Ces contraintes sont en équilibre sur l'ensemble du volume que constitue un composant.

Généralement, dans les microsystèmes, des contraintes résiduelles se développent lors d'étapes de fabrication, par exemple à cause d'un gradient de composition chimique, de taille de grains dans l'épaisseur ou d'un gradient thermique (par exemple lorsque le système est refroidi à température ambiante ou que la température change lors des étapes de fabrication). En effet, la disparité des coefficients d'expansion thermique entre les différentes couches entraîne dans ce cas l'apparition de contraintes résiduelles.

Il existe plusieurs méthodes pour déterminer les contraintes résiduelles dans des couches minces. Les trois les plus utilisés sont : la méthode de Stoney [Stoney 1909], la méthode de Debye-Scherrer (diffraction des rayons X) [Debye 1916] et à partir de la mesure de la déflection d'un cantilever multicouche [Hsueh 2002, Hsueh 2002b, Hsueh 2006]. La dernière est considérée comme la plus représentative de la technologie utilisée et la plus précise bien que non-directe. C'est pour cette raison que nous avons ajouté des cantilevers sur nos masques. Les déformations de ces cantilevers nous permettent de calculer analytiquement les contraintes résiduelles de chaque couche de l'empilement (SiO<sub>2</sub>, TiO<sub>2</sub>, Pt, PZT, FeCoB, SiO<sub>2</sub>, Au). En commençant avec les cantilevers les plus simples constitués de SiO<sub>2</sub>/TiO<sub>2</sub>/PZT (plaqué P06), on peut retrouver les contraintes résiduelles du PZT selon ses différents états de cristallisation, les autres étant parfaitement connues (procédés standards). Ensuite, en ajoutant successivement les autres couches : Pt (motifs PYR de la plaque P06), CoFeB (plaqué P22) et Au (plaqué P15) il est possible de retrouver les valeurs des contraintes pour toutes ces couches.

### a. Calcul analytique

Le modèle que nous avons utilisé est développé et adapté de celui proposé par Hsueh pour les cantilevers multicouches. Le modèle créé par Hsueh permet de calculer le rayon de courbure d'une structure multicouche à un point d'encrage en fonction des dilatations thermiques ou d'autres stimuli de contraintes dont l'effet piézoélectrique. Les dilatations thermiques des matériaux ne sont pas identiques, les matériaux étant liés les uns aux autres mécaniquement, la différence de contraintes internes conduit à un équilibre où le multicouche est en flexion. La vue en coupe du multicouche est représenté en Figure 80.

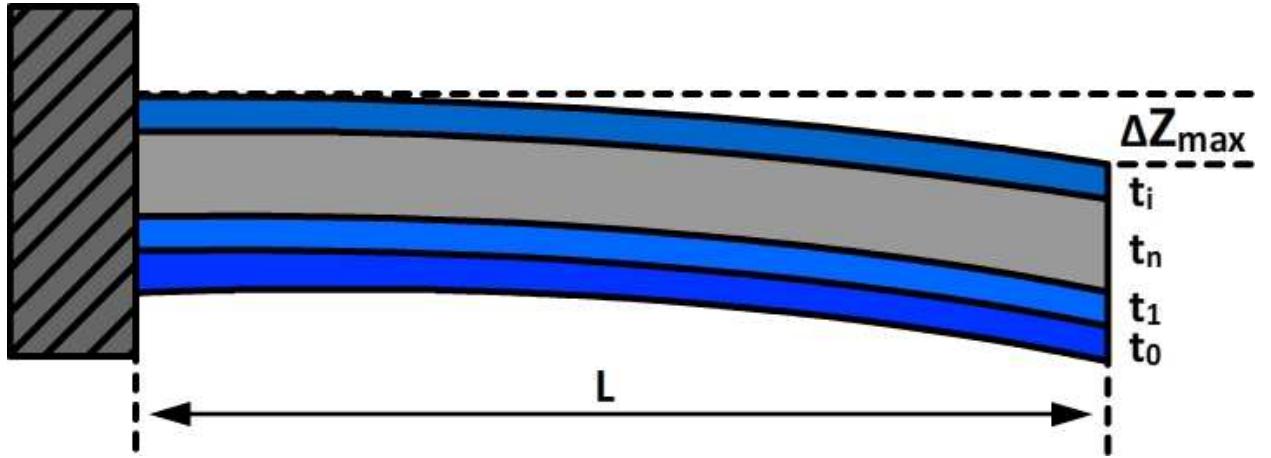


Figure 80. Modèle de flexion d'un cantilever multicouche (modèle de Hsueh).

Pour un tel système, la déflexion prenant en compte les contraintes résiduelles est donnée par la relation :

$$\Delta Z = \frac{L^2}{2R}, \quad (7.1)$$

où  $L$  est la longueur du barreau et  $R$  le rayon de courbure, avec

$$R = \frac{\sum_{i=1}^n [E_i t_i (6h_{i-1}^2 + 6h_{i-1}t_i + 2t_i^2 - 3t_b(2h_{i-1} + t_i))] }{3 \sum_{i=1}^n [E_i t_i (2h_{i-1} + t_i) (c + \frac{\sigma_i}{E_i})]}, \quad (7.2)$$

Où  $n$  est le nombre de couches;  $E_i$  - le module d'Young de la couche  $i$ ;  $t_i$  - l'épaisseur de la couche  $i$ ,  $h_{i-1}$  - la distance de la partie supérieure de la couche  $i-1$  par rapport à l'origine (interface entre le substrat et la première couche);  $\sigma_i$  - la contrainte résiduelle de la couche  $i$ ;  $c$  - la composante de contrainte uniforme de la couche  $i$ ;  $t_b$  - la fibre neutre (défini comme la ligne de la section transverse du système où la composante de déformation de flexion est nulle).

Les coefficients  $c$  et  $t_b$  sont donnés par les formules:

$$c = \frac{-\sum_{i=1}^n (\sigma_i t_i)}{\sum_{i=1}^n (E_i t_i)} \quad (7.3)$$

et

$$t_b = \frac{\sum_{i=1}^n (E_i t_i (2h_{i-1} + t_i))}{2 \sum_{i=1}^n (E_i t_i)} . \quad (7.4)$$

Pour déterminer les paramètres  $c$  et  $t_b$ , on utilise les deux conditions aux limites suivantes : la résultante de la force due à une déformation en flexion est nulle et la somme du moment de flexion par rapport à l'axe de flexion est en équilibre avec le moment appliqué par unité de largeur sur le multicouche.

Pour cette partie, nous allons utiliser les résultats des mesures Wyko de déflexion réalisées sur les cantilevers des wafers P06, P22 et P15. Nous allons faire varier la contrainte résiduelle de la couche que l'on étudie et ce jusqu'à ce que l'on retrouve la valeur de la déflexion mesurée. De ce fait, nous pouvons estimer la contrainte résiduelle de la couche qui entraîne une telle déformation. Plus tard, ces valeurs de contraintes seront insérées dans un modèle FEM des poutres sous COMSOL, dans le but de se rapprocher au maximum de la réalité. Les hypothèses mises en place pour cette étude sont les suivantes :

- on néglige l'influence des moments de flexion,
- la contrainte résiduelle de chaque couche est indépendante de l'existence des autres couches (les couches sont indépendantes les unes des autres),
- dans cette partie, la dilatation thermique n'est pas simulée (pas de variation de température),
- la contrainte résiduelle des couches de  $\text{SiO}_2$  est connue : 200MPa (donnée techno.),
- la contrainte résiduelle de la couche de  $\text{TiO}_2$  est également connue : 500MPa (donnée techno.).

On commence par étudier le cas avec PZT seul (dispositif REC du wafer P06) afin de déterminer la contrainte résiduelle de la couche de PZT qui entraîne la déflexion mesurée. Ensuite, on étudie la couche de platine (dispositif PYR du wafer P06). En conservant la valeur trouvée pour le PZT, on fait varier la contrainte résiduelle du platine pour trouver la déflexion mesurée pour ce dispositif.

On exécute le même protocole pour un dispositif REC et un dispositif PYR sur le wafer P22 pour déterminer la contrainte résiduelle dans la couche magnétique. Pour finir, les dispositifs REC et PYR sur le wafer P15 nous ont permis de déterminer la contrainte résiduelle dans la couche d'or et d'étudier le comportement du système complet.

Dans cette partie, la rapidité des calculs nous a permis d'étudier tous les systèmes totalement libérés, soit les cantilevers de largeur 50 $\mu\text{m}$  et de longueurs respectives 100, 200 et 500 $\mu\text{m}$ . Cela nous permet d'obtenir plusieurs valeurs de

contraintes résiduelles pour un même matériau, ce qui est représentatif de la dispersion spatiale des procédés sur les plaques. Celle-ci étant propre au matériau (donc indépendante des dimensions géométriques et de la dispersion de procédés), nous en déduirons une valeur moyenne.

Tableau 14 regroupe les résultats du calcul pour toutes les couches mises en jeu. Tout d'abord, on constate une bonne concordance entre les valeurs de contraintes résiduelles extraites pour différentes longueurs de poutres. La contrainte résiduelle moyenne obtenue pour la couche de PZT est de +260 MPa. Par convention, le signe sert à indiquer si la couche est en traction ou en compression dans son état initial (avant libération). Dans notre cas, la contrainte est positive (ce qui est en accord avec les valeurs extraites à partir des profils XRD), ce qui veut dire que la couche de PZT est en tension après dépôt et recuit. La valeur absolue de cette contrainte est relativement proche de celles de la littérature [Garino 1991].

*Tableau 14. Contraintes résiduelles (en MPa) des couches constituant la poutre calculées analytiquement pour différentes longueurs des cantilevers.*

	100 µm	200 µm	500 µm
<b>PZT</b>	260	265	260
<b>Pt</b>	925	930	935
<b>FeCoB</b>	-475	-475	-475
<b>Au</b>	-380	-	-

La couche de Pt manifeste une forte contrainte de tension allant jusqu'à 1GPa. Cette contrainte dépend considérablement de la température maximale vue par la couche au cours de la fabrication. Elle peut varier dans la gamme de contrainte de -500 MPa à 1200 MPa pour les températures de recuit entre 20 et 800 °C (mesures réalisées sur des dépôts de Pt/TiO<sub>2</sub> pleine tranche par la méthode de Debye-Scherrer). La valeur obtenue dans notre cas est représentative des températures de recuit de 650-700 °C utilisées dans notre procédé. Les couches de FeCoB et d'Au sont caractérisées par des contraintes en compression d'amplitudes non négligeables.

## b. Simulations FEM

Pour compléter le modèle analytique, nous avons créé un model FEM sous COMSOL, d'abord, pour vérifier les résultats précédents et, ensuite, afin d'implémenter les contraintes résiduelles dans l'étude réalisée auparavant (chapitre 4), afin d'évaluer leur impact sur l'efficacité mécanique du moteur de contrainte.

Dans cette partie, nous allons reprendre les valeurs de déflexion déjà utilisées pour le modèle analytique sauf que, cette fois-ci, la déformation des couches va être obtenue en faisant varier virtuellement le coefficient d'expansion thermique de chacune des couches. Cela nous permet de connaître le coefficient d'expansion thermique effectif de la couche étudiée. Pour retrouver la valeur de la contrainte résiduelle, on extrait numériquement la valeur moyenne dans le plan de coupe de la structure. Nous allons vérifier que la répartition de la contrainte résiduelle de chaque matériau est uniforme, puis nous allons regarder la variation des contraintes résiduelles dans l'épaisseur.

Pour valider le model nous avons procédé de même façon que dans le cas des calculs analytiques. Tout d'abord les cantilevers les plus simples ( $\text{SiO}_2/\text{TiO}_2/\text{PZT}$ ) ont été modélisés dans le but d'extraire les contraintes résiduelles du PZT. Ensuite, en rajoutant successivement les autres couche (Pt, FeCoB, SiO<sub>2</sub>, Au) on peut construire le model complet et retrouver l'état mécanique de cette structure. Figure 81 montre un exemple du model de cantilever PYR-50-500 possédant l'ensemble des couches qui nous intéressent. La courbe à droite représente la déflection de la partie libérée avec le déplacement maximal qui correspond à la mesure réelle des cantilevers au Wyko. Afin de mieux comprendre la repartions des contrainte dans chaque couche en question on peut extraire le profil des contraintes en épaisseur comme montré sur la (Figure 82).

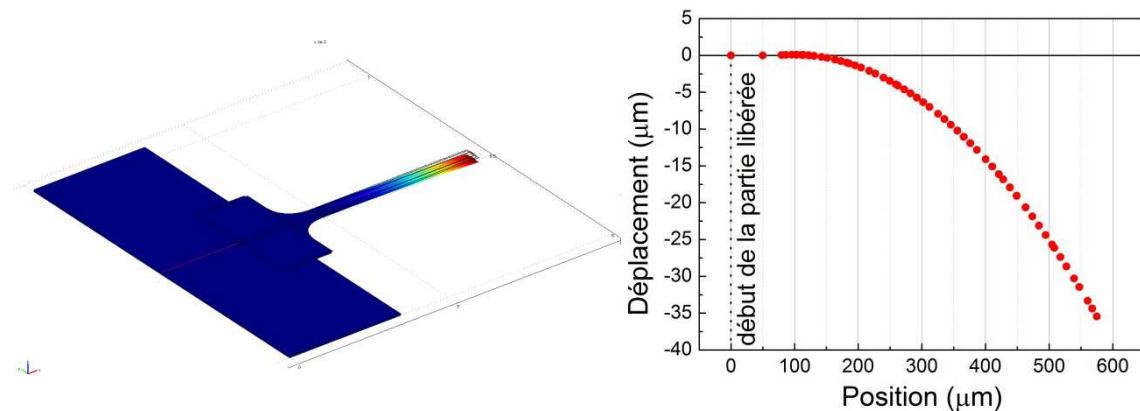


Figure 81. Profil de déformation longitudinale d'un cantilever PYR-50-500.

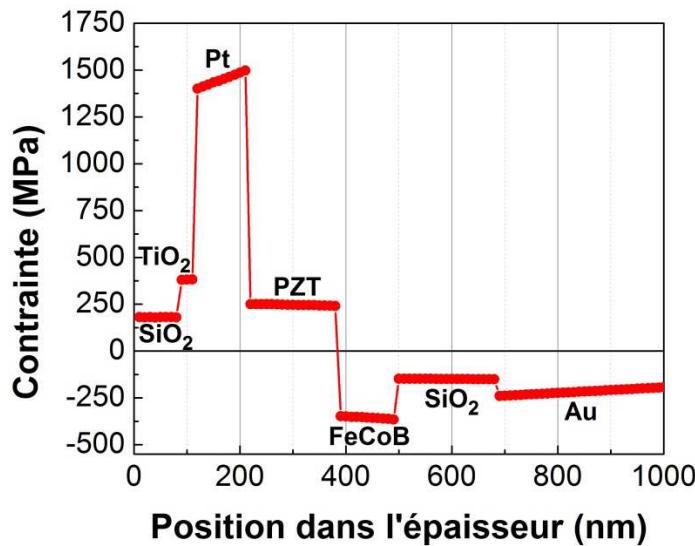


Figure 82. Répartition des contraintes dans l'épaisseur du cantilever. Les sauts correspondent aux passages d'une couche à l'autre.

A partir de ce profil, il est possible de calculer la contrainte moyenne des couches (Tableau 15).

Tableau 15. Contrainte moyenne calculée pour chaque couche constituant le cantilever.

	SiO <sub>2</sub>	TiO <sub>2</sub>	Pt	PZT	FeCoB	SiO <sub>2</sub> (isol)	Au
Contrainte (MPa)	180	380	1450	250	-360	-150	-210

Les valeurs obtenues sont en bon accord avec les calculs analytiques. La différence est principalement liée au fait que dans les simulations FEM on prend en compte l'effet de la géométrie réelle ce qui n'est pas le cas pour le calcul analytique précédent.

Au final, on retrouve les mêmes tendances, ce qui est très satisfaisant. Le Pt domine avec la plus forte contrainte (en tension). Les couches de PZT, de FeCoB et d'Au sont significativement contraintes (en compression) alors que les couches de TiO<sub>2</sub> et SiO<sub>2</sub> sont en retraits mais ne peuvent pas être négligées pour autant.

Pour les couches de FeCoB et d'Au nous avons utilisé les valeurs réalistes de coefficients de la dilatation thermique. En outre, la variation de la température  $\Delta T=600$  °C choisie est très proche de celle que les dispositifs subissent au cours de la fabrication. Le fait que la simulation FEM a donné des valeurs proches aux calculs analytiques peut justifier l'hypothèse de l'origine essentiellement thermique de ces contraintes.

Pour finir, nous avons réalisé des simulations mécaniques fonctionnelles des dispositifs complets sous tension électrique (tension DC). Deux cas de figure sont traités. Premièrement, on simule les structures REC et PYR 50-500 sous actionnement sans prendre en compte les contraintes résiduelles (comme cela a été fait dans la chapitre 4 mais avec d'autre géométries).

Deuxièmement, les contraintes résiduelles sont implémentées en se basant sur les résultats précédents. Les résultats sont récapitulés sur la Figure 83. Dans le premier cas, la variation des contraintes effectives au sein de la couche magnétique est linéaire et symétrique, ce qui est similaire aux simulations précédentes (chapitre 4). La structure REC est toujours plus efficace mécaniquement que la structure PYR. En revanche, dans le cas avec les contraintes résiduelles, le comportement est complètement différent.

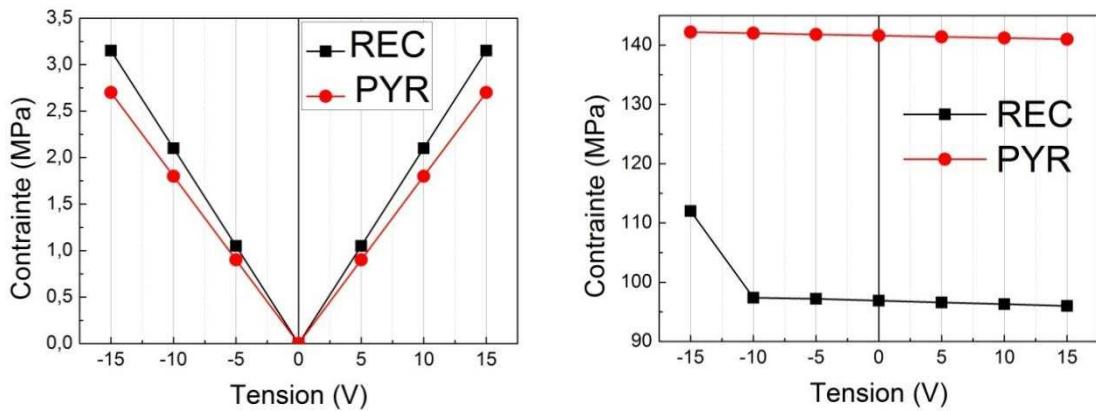


Figure 83. Contrainte effective moyenne au niveau de la surface supérieure de la couche magnétique en fonction de la tension électrique appliquée (V DC) sur les capacités d'actionnement. Le cas sans prendre en compte les contraintes résiduelles (à gauche). Le cas avec les contraintes résiduelles (à droite).

On constate d'abord que le point de fonctionnement (à 0V) des structures PYR (avec Pt) s'est nettement décalé sous l'effet des contraintes résiduelles du platine. On note ensuite que la sensibilité à la tension d'actuation s'est écroulée. Dans le cas des REC (sans Pt), l'offset est moins important du fait de l'absence de Pt mais reste significatif et réduit aussi grandement l'efficacité mécanique. On peut constater que l'application de la tension électrique DC ne fait plus varier la contrainte effective que très faiblement autour de l'état mécanique rémanent. Le saut de contrainte correspondant au motif REC pour la valeur de tension  $V = -15$  V est probablement lié au phénomène de flambage local (déformations en accordéon) observé par simulation et expérimentalement, au niveau du passage de marche des électrodes.

Pour conclure, le calcul de l'efficacité d'actionnement donne 0.22 MPa/V dans le cas idéal sans contrainte résiduelle contre 0.07MPa/V pour le cas réel, soit 70% de perte en efficacité. Il en résulte que les fortes contraintes résiduelles liées aux procédés à fort bilan thermique affectent considérablement les performances de notre

moteur de contrainte qui utilise le mode d'actionnement ***indirect*** de type « push-pull ». Une des solutions envisagées est d'optimiser la technologie PZT « sans Pt » en travaillant sur d'autres sous-couches spécifiques (templates) moins contraintes (on pense en particulier à ZrO<sub>2</sub>). Une solution complémentaire est de changer de mode d'actionnement en passant à un mode « d<sub>33</sub> plan » en utilisant des électrodes interdigitées. On se rapproche alors du fonctionnement optimal des composites MFC utilisés dans la première partie de ce travail.

### 7.4.3 Tests sous tension électrique

Nous nous intéressons par la suite au couplage piezo-mécanique au sein de nos structures. Une façon de caractériser la fonction de transfert mécanique entre les capacités PZT d'actionnement qui se déforment verticalement et la zone active qui se déforme dans le plan) est de mesurer directement le déplacement de la poutre sous l'effet de la tension électrique. Sachant que l'amplitude de déplacements ne dépasse pas quelques dizaines de nanomètres, il faut utiliser des techniques de mesure extrêmement sensibles. Dans notre cas, nous avons choisi la vibrométrie basée sur l'interférométrie double faisceaux.

Le vibromètre dont nous disposons est le modèle MSA 400 commercialisé par Polytec. Cet outil est utilisé pour mesurer de très faibles déplacements, vitesses ou accélérations avec une grande précision. Il est constitué d'un laser double faisceau : un premier faisceau sert de référence en pointant sur une partie fixe du montage et le second pointe sur la partie mobile que l'on cherche à mesurer. Le mode de fonctionnement est le suivant. Un signal haute-fréquence est généré par un photodétecteur couplé à une cellule de Bragg (aussi appelé modulateur opto-acoustique). Pour effectuer la mesure de déplacement, le rayon laser est pointé sur la partie vibrante de l'objet et balaye celle-ci avec un pas déterminé. La vitesse et l'amplitude de l'objet vibrant génèrent respectivement des variations de fréquences et de phases du laser, dues à l'effet Doppler. Cette modulation est convertie en un signal temporel grâce à un décodeur. En sortie, on obtient un signal sous forme d'une tension (V). Le déplacement (z) peut se calculer en utilisant l'équation :

$$z = \frac{C \cdot V}{2\pi f} , \quad (7.5)$$

où  $C$  est une constante de calibration,  $V$  la tension à la sortie de la mesure et  $f$  la fréquence de la mesure. Cette technique permet de mesurer des déplacements verticaux de l'ordre de quelques picomètres et des déplacements horizontaux de l'ordre d'une dizaine de nanomètres.

Les détails de la méthode expérimentale complète sont donnés dans [Holtz 2012]. Nous en résumons ici le principal.

Nous avons décidé de travailler en mode de mesure verticale en tenant compte sa plus grande sensibilité. Pour obtenir les cycles d'hystérésis de la fonction de transfert mécanique (appelée par abus de langage hystérésis piézo-mécanique), on applique une rampe de tension DC croissante puis décroissante superposée à la tension AC de mesure. Pour une plus grande résolution et un meilleur rapport signal sur bruit, on travaille en mode de détection de vitesse de vibration de la poutre. Par intégration (fft rapide), on calcule le déplacement en un point au centre de la poutre. La vitesse de rampe de tension est de 0.05 V/s. Afin d'augmenter la précision de la mesure, la fréquence de la modulation AC correspond à la résonance mécanique de la poutre qui est déterminée préalablement.

Les Figures 84 et 85 montrent des exemples de cycles piézo-mécaniques pour les structures PYR 50-200 et REC 50-200, respectivement. La courbe de déplacement ainsi que la courbe de phase présentent une hystérésis dans les deux cas. Cette hystérésis confirme le caractère piézoélectrique de l'actionnement, ce qui est un résultat important pour valider le concept de l'actionnement proposé (un actionnement parasite électrostatique est exclu). Les tensions (eq. champs électriques) de basculement de la phase correspondent aux champs coercitifs ferroélectriques mesurés précédemment dans la partie concernant la caractérisation piézoélectrique des capacités PZT (paragraphe 7.3.2).

La différence de la forme des cycles de déplacement est probablement liée à des modes de déformation distincts pour les structures PYR et REC. Vu qu'on fait la mesure au milieu de la poutre et non directement sur les électrodes d'actionnement (déplacement vertical trop faible), le résultat brut de la mesure dépend de plusieurs facteurs difficilement corrélables:

- paramètres piézoélectriques intrinsèques d'actuation
- fonction de transfert de déformation « hors plan / dans le plan »
- données géométriques et mécaniques de la poutre et de l'encrage
- déformations résiduelles au repos (flambage)

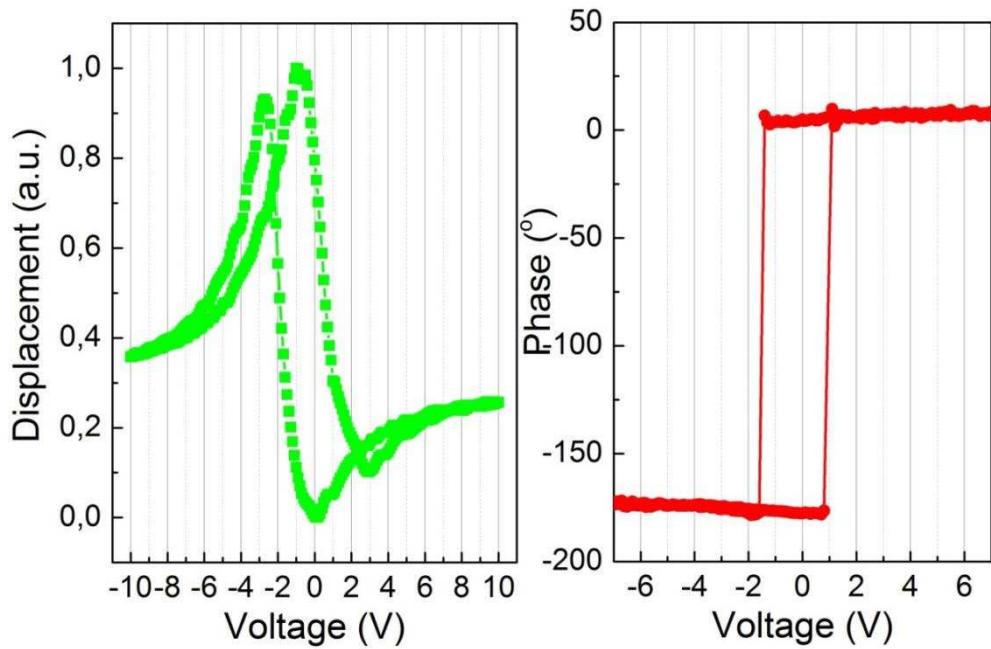


Figure 84. Cycles d'hystérésis du déplacement et de la phase pour un motif PYR 50-200 ( $f_{res} = 194.4$  kHz) mesurés au milieu de la poutre.

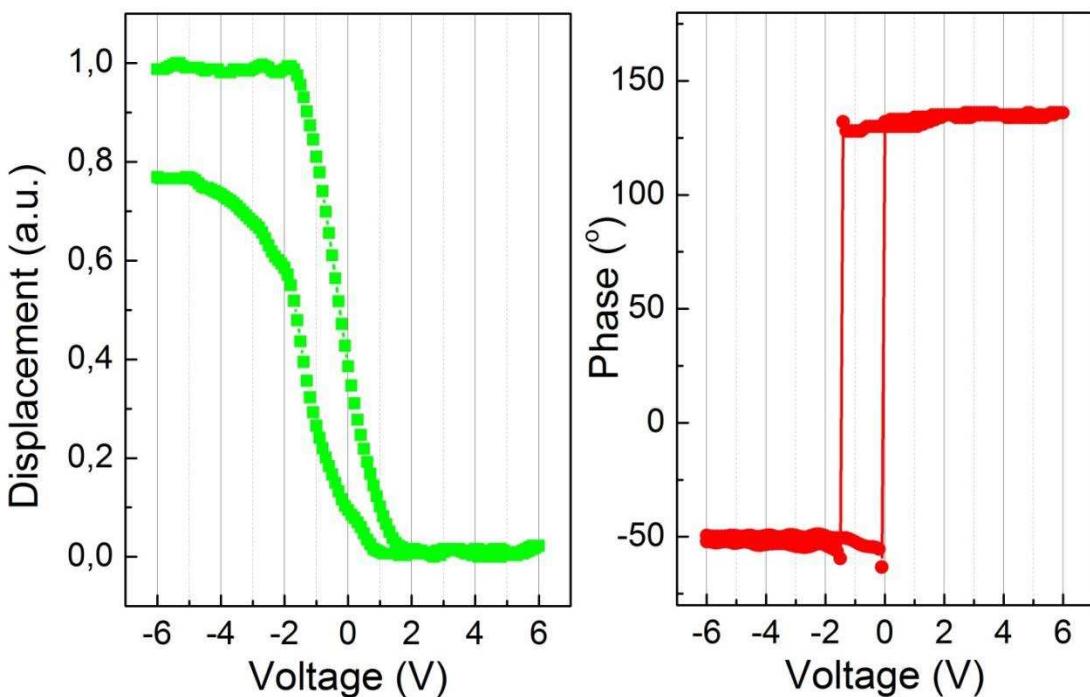


Figure 85. Cycles d'hystérésis du déplacement et de la phase pour un motif REC 50-200 ( $f_{res} = 152.5$  kHz) mesurés au milieu de la poutre.

Une autre possibilité de voir le couplage mécanique entre les actionneurs piézoélectriques est la partie active est de regarder directement le changement de la fréquence de résonance mécanique de la poutre en fonction de la tension électrique appliquée. La Figure 86 présente les résultats d'une telle mesure sur un motif PYR 50-200. Nous observons un changement de comportement à proximité de  $\pm 1$  V qui

correspond au basculement de polarisation du PZT, ce qui est une autre façon de déterminer le champ coercitif. Au-delà de ces points, l'augmentation de la fréquence de résonance indique la croissance de la rigidité mécanique (ou raideur) de la structure. Ces observations confirment la fonctionnalité du principe d'actionnement par effet Poisson. En effet, au-delà du coercitif, les capacités PZT se dilatent (déplacement vertical) comme attendu quel que soit le signe de la tension en réponse au mode  $d_{33}$  du PZT et par conservation de volume contractent (déplacement dans le plan) la poutre qui subit alors une contrainte de traction.

Ce mode de fonctionnement peut s'avérer avantageux car il évite les comportements mécaniques complexes à proximité du champ coercitif. Il s'applique particulièrement bien au cas de PZT modérément « dur » (pas de procédure de poling) comme ici. En revanche, le moteur de contrainte devient indépendant du signe de la tension et fonctionne en mode traction.

Le fonctionnement idéal en mode linéaire entre tensions positives et négatives requiert quant à lui de travailler à « l'intérieur » des champs coercitifs pour ne pas dépolariser le PZT. A l'heure actuelle cette plage de fonctionnement est trop réduite ( $\pm 1$  V). Les prévisions initiales ( $\pm 10$  V) exigent une amélioration notable quant à la croissance du PZT dans notre technologie pour repousser le champ coercitif (et les tensions de claquage) plus nettement haut.

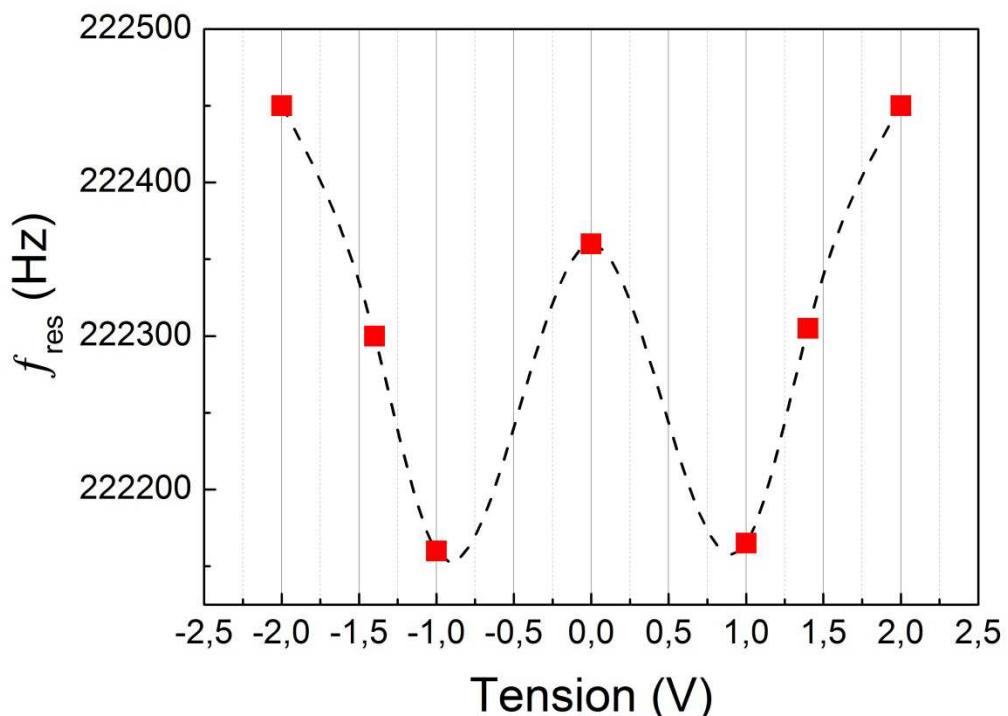


Figure 86. Fréquence de résonance mécanique de la poutre d'un motif PYR 50-200 en fonction de la tension d'actuation appliquée (la ligne en pointillé constitue juste un «guide pour les yeux »).

La réalisation de ces mesures préliminaires sur des structures aussi complexes et conçues pour peu se déformer (moteur de contraintes) est une prouesse. Elles nous permettent de valider le concept de moteur de contraintes de type « push-pull » imaginé au départ et d'en identifier les points faibles. A ce stade, les analyses restent purement qualitatives.

Des mesures systématiques en fonction de la géométrie des structures et de l'empilement technologique associées à de la retro-simulation sur COMSOL vont être entreprises pour pouvoir quantifier les performances mécaniques de nos dispositifs.

## 7.5 Caractérisation magnétique

Dans cette partie, nous allons nous intéresser à l'évolution de la structure en domaines magnétiques du noyau en FeCoB après la fabrication des dispositifs. En effet, la configuration en domaines nous renseigne par une autre voie sur l'état de contrainte résiduelle des dispositifs. L'étude a été, d'abord, réalisée en statique (état rémanent des domaines après une désaimantation) et, ensuite, sous actionnement piézoélectrique. Le microscope Kerr présenté dans le chapitre 6 a été utilisé pour l'ensemble des caractérisations magnétiques des dispositifs finaux. Pour les besoins de cette étude, la direction de l'anisotropie induite du noyau magnétique est dirigée perpendiculairement à l'axe de la poutre pour favoriser une structure transverse composées de domaines principaux séparées par des parois à  $180^\circ$  et terminés par des domaines de fermeture à parois à  $90^\circ$ . Dans le cas des dispositifs réels l'excitation électromagnétique des lignes RF imposent un axe d'anisotropie parallèle à l'axe des poutres, ce qui réduit considérablement le nombre de domaines observables.

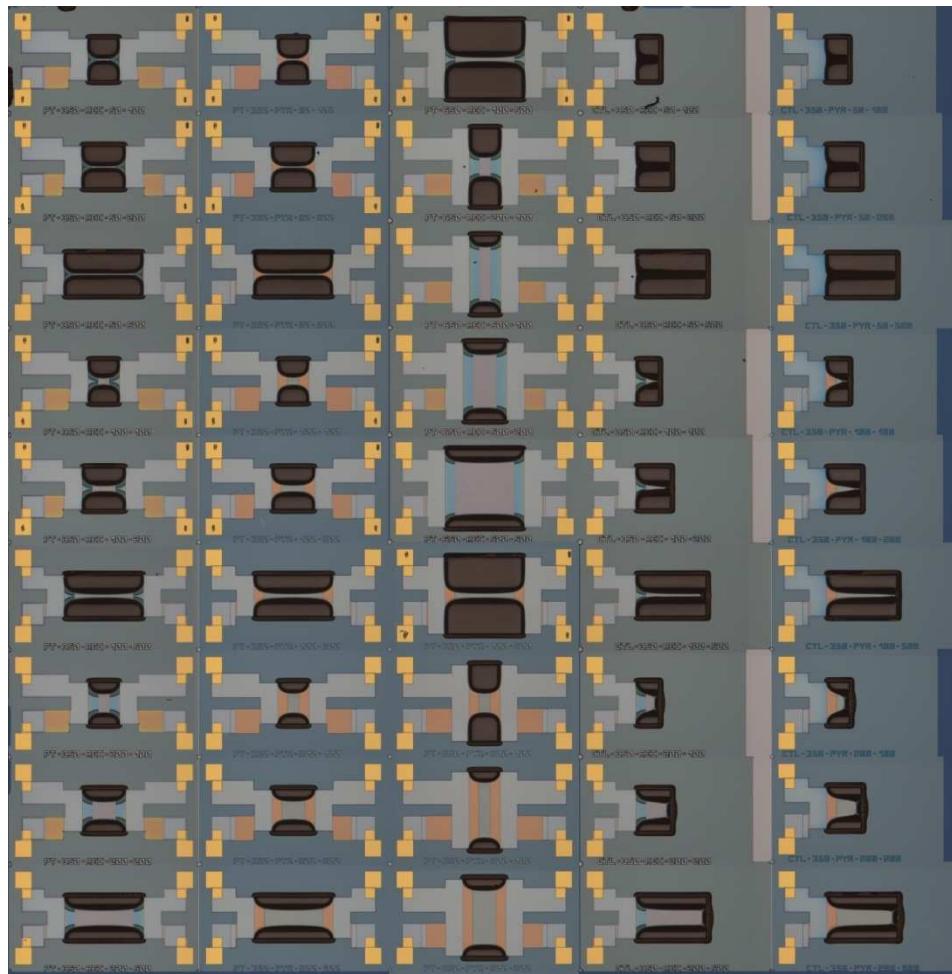
### 7.5.1 La structure en domaines statiques

Figure 87 montre la photo d'une puce dédiée à la caractérisation magnétique. Tous les dispositifs ont été testés un par un pour déterminer l'impact de la géométrie et de la libération sur la structure en domaines magnétiques. Pour des mesures sous tension électrique les dispositifs ont été découpés et ensuite connectés individuellement sur un port échantillon adapté.

#### a. Structure de référence

La structure en domaines après le dépôt a été déterminée en utilisant des motifs de référence qui sont réalisés en même temps que le noyau magnétique mais

« à plat » et sans libération. Un exemple de la structure en domaines obtenue sur un motif de référence est présenté sur la Figure 88. Une répartition de domaine caractéristique à une anisotropie uniaxiale bien définie est mise en évidence. On peut noter que l'axe facile induit correspond parfaitement à la direction du champ appliqué au cours de dépôt. Il est possible d'estimer le champ d'anisotropie uniaxial à partir de la largeur des domaines principaux (équation 6.1). La valeur obtenue  $H_k = 30-35$  Oe est très proche de celle mesurée sur les dépôts pleine tranche au VSM. Egalemente, on retrouve un cycle d'hystérésis magnétique bien carré avec un champ coercitif de 15-17 Oe, ce qui est une valeur représentative après gravure. Tout cela confirme une excellente résistance du matériau magnétique aux étapes de fabrication, avant libération.



*Figure 87. Une puce de la plaque P09. Le procédé de la fabrication a été arrêté au niveau de la couche magnétique. Cette plaque a été réalisée sans ligne RF (le niveau d'or est conservé uniquement pour la réalisation des contacts de soudure) pour pouvoir faire des tests magnétiques.*

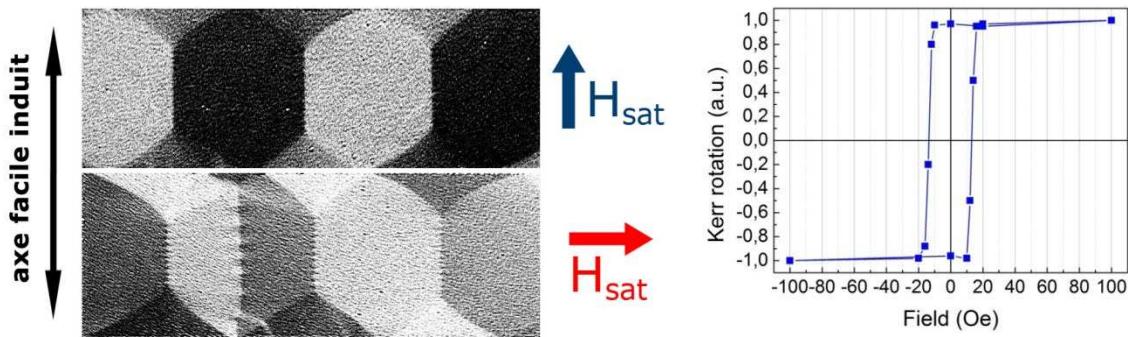


Figure 88. Structure en domaines magnétiques de référence (dépôt sur silicium oxydé) en fonction de la direction du champ magnétique appliquée pour une bande magnétique de FeCoB de référence (à gauche). Cycle d'hystérésis magnétique mesuré le long de l'axe facile induit (à droite).

### b. Structures libérées

Après avoir défini l'état magnétique initial de la couche de FeCoB, nous allons nous intéresser à l'impact de la libération sur la structure en domaines. Deux cas de figure seront examinés : les motifs complètement libérés (avec une largeur intérieure à 100 micron) et les motifs partiellement libérés (avec une largeur supérieure à 100 micron). Figure 89 montre la structure en domaines pour les dispositifs REC et PYR 50-100 qui sont entièrement libérés au niveau de la zone active.

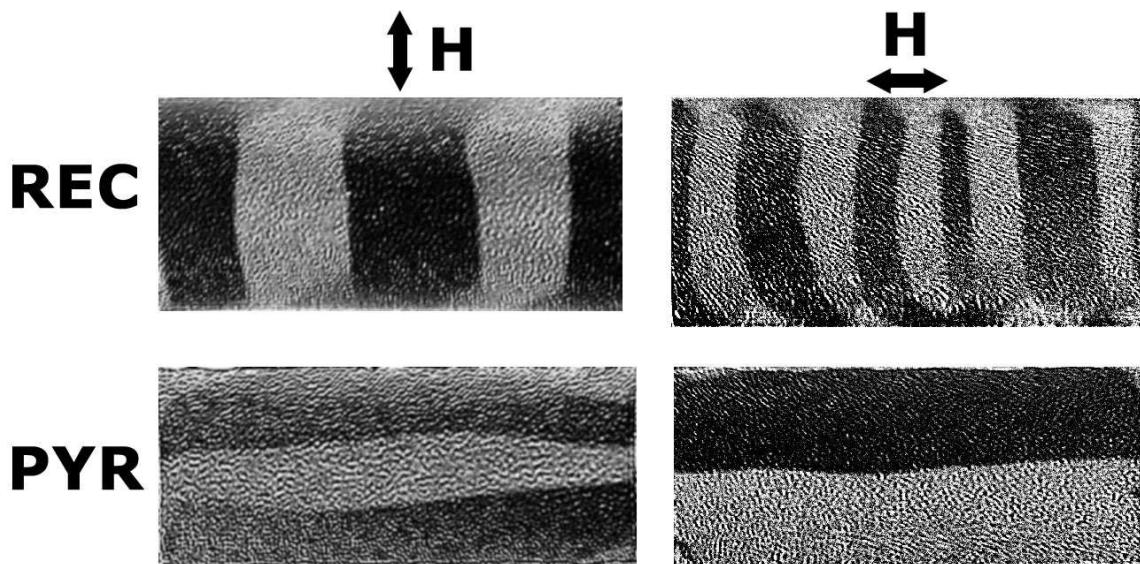


Figure 89. Structure en domaines magnétiques des motifs REC et PYR-50-100 pour différentes directions du champ appliqué.

Le premier constat que nous faisons est que les directions de l'anisotropie dans les deux dispositifs sont désormais opposées. Le motif REC présente une structure en

domaine relativement proche de celle de la référence. La direction de l'axe facile est conservée. Les domaines principaux sont plus étroits ce qui indique une constante d'anisotropie plus élevée. Le champ d'anisotropie peut être estimé autour de 70 Oe. Cette augmentation est dans les proportions théoriques estimées à partir des contraintes résiduelles du PZT établies précédemment. En revanche, dans le cas du motif PYR l'axe facile est retourné de 90° sous l'action d'une forte contrainte de tension dans l'axe de la poutre. Ceci est dû à la présence du Pt sous la poutre. Le calcul du champ d'anisotropie donne une valeur entre -140 et -160 Oe. Le signe moins indique que l'axe facile a subi une rotation de 90°. On peut associer ce changement d'anisotropie aux fortes contraintes résiduelles du Pt dans la proportion de 1 GPa évaluée précédemment.

### c. Structures partiellement libérées

Regardons maintenant le cas des structures partiellement libérées. Le procédé de libération est actuellement limité à typiquement 100 microns de largeur, les motifs ayant la largeur de 200 microns ne seront libérés qu'à moitié. La partie centrale reste solidaire d'un mur de silicium. La Figure 90 montre la structure en domaine des motifs REC et PYR 200-100. Les parties libérées sont indiquées par un cadre rouge. L'intérêt de ce cas est qu'on peut comparer les structures en domaines correspondant aux zones libérées et non libérées sur une même poutre

Comme on peut voir sur la figure qui suit, la différence de l'anisotropie en passant par la frontière de la libération est très nette pour les deux dispositifs.

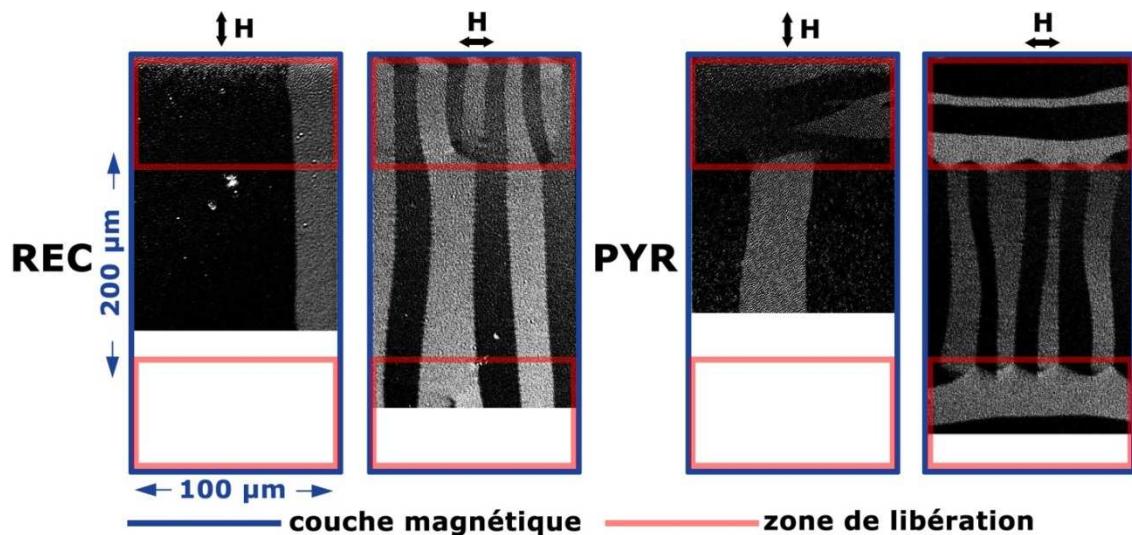


Figure 90. Structure en domaines magnétique des motifs REC et PYR-200-100 partiellement libérés pour différentes directions du champ appliqué.

Pour le motif REC l'augmentation du nombre de domaines aux bords de la couche par rapport au centre indique un renforcement de l'anisotropie que nous

avons constaté sur les motifs entièrement libérés. Effectivement, le cycle magnétique mesuré sur toute la couche et correspondant à l'axe difficile (Figure 91) manifeste un champ d'anisotropie intermédiaire entre la  $H_k^0$  (l'anisotropie induite au cours de dépôt) et  $H_k^{\text{libé}}$  (la somme d'anisotropie induite et magnétoélastique due à la libération). En outre, il faut noter la continuité remarquable des parois de domaines au niveau du passage entre les zones de l'anisotropie différentes.

La variation de l'anisotropie sur le motif PYR est encore plus flagrante. La zone centrale garde toujours l'anisotropie initiale parallèle au côté long de la structure tandis que la zone libérée possède une anisotropie retournée de  $90^\circ$ . On voit que les domaines de fermeture sont quasi-absents ce qui confirme une forte valeur de cette anisotrope magnétoélastique. Si on regarde le processus de retournement suivant l'axe facile initial on peut distinguer deux phénomènes (Figure 92). Le premier est la rotation progressive de l'aimantation dans la zone libérée. Le deuxième est le basculement rapide de l'aimantation dans la partie centrale. Le champ d'anisotropie estimée à partir de cette courbe pour la zone libérée est de 150 Oe. Cette valeur est en accord avec celle calculée en se basant sur la largeur des domaines précédemment.

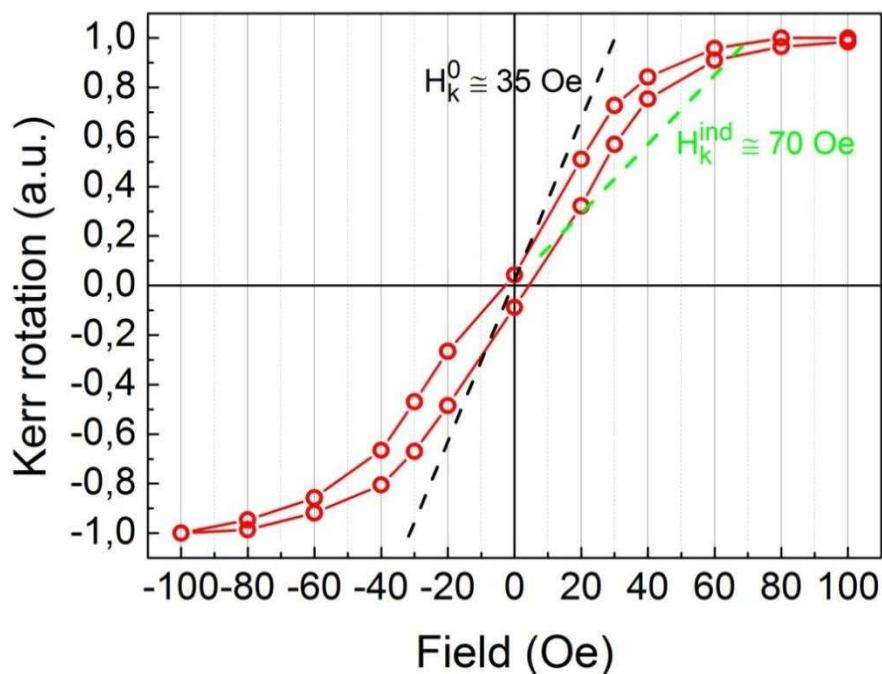


Figure 91. Cycle d'hystérésis mesuré le long de l'axe de la poutre pour le motif REC (axe difficile).

Bien évidemment toutes ces modifications de l'anisotropie magnétique après libération sont un risque important de non fonctionnalité des dispositifs ou de décalage du point de fonctionnement. Ceci montre, que l'utilisation contrôlée de l'effet magnétoélastique avec des matériaux doux fortement magnétostrictifs est très exigeante au niveau du contrôle des contraintes résiduelles de fabrication.

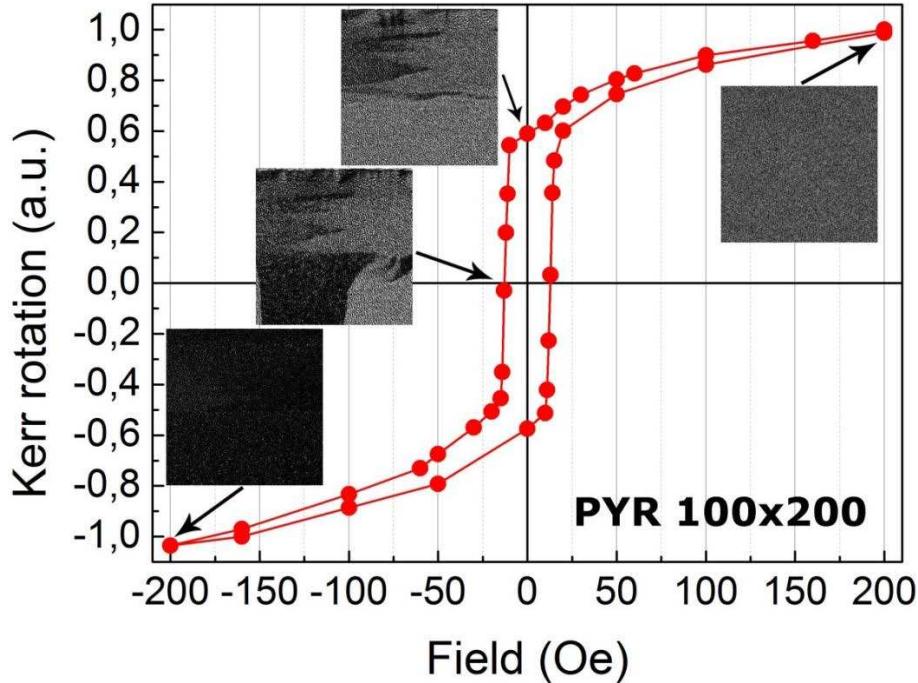


Figure 92. Cycle d'hystérésis magnétique mesuré perpendiculairement à l'axe de la poutre pour le motif PYR (axe facile).

### 7.5.2 Influence de l'actionnement piézoélectrique

Pour répondre à l'objectif de ce travail, une validation fonctionnelle partielle passe par la visualisation des domaines magnétiques en actionnant le moteur de contrainte piézoélectrique en tension. Pour réaliser ces tests les dispositifs ont été découpés individuellement et connectés par microsoudure sur un porte échantillon adapté. Une image MEB d'un dispositif découpée et connectée est présentée sur la Figure 93.

Malheureusement, nous n'avons pas pu observer d'effet magnétoélectrique à champ magnétique nul (comme nous l'avons fait dans le chapitre 6). Visiblement l'effet des contrainte résiduelles qui diminuent fortement les performances mécaniques de notre système (-70%) et l'impédance mécanique qui n'est pas optimale (l'épaisseur du PZT est relativement faible par rapport à l'épaisseur totale de la poutre) font que les contraintes générées par la tension électrique appliquée aux capacités PZT sont trop faibles pour changer de façon perceptible à l'effet Kerr l'anisotropie de la couche magnétique. Néanmoins, en se plaçant à proximité du champ coercitif (ou le matériau magnétique est le plus sensible aux changements d'anisotropie) en appliquant un champ de polarisation magnétique (champ de bias) nous avons observé un effet magnétoélectrique non-négligeable (Figure 94). L'application de la tensions électrique change l'état d'anisotropie magnétique et fait propager les domaines déjà générés.

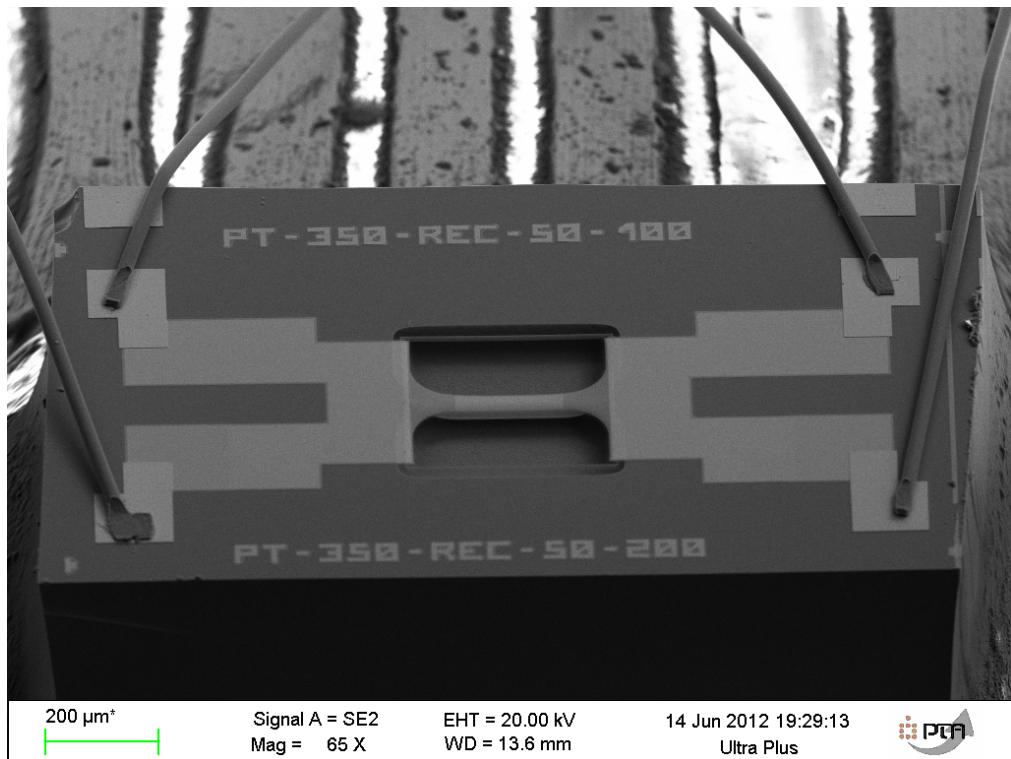


Figure 93. Image MEB d'un dispositif REC 50-200 avec des connections électriques réalisées par microsoudure.

L'effet qu'on mesure correspond à un changement d'anisotropie de 3-5 Oe, ce qui correspond à quelques 2-4 MPa de contrainte générée ici avec une dizaine de volts. Bien que ce résultat soit loin de notre objectif, c'est la première démonstration directe de l'effet magnétoélectrique dans un composite multiferroïque intégrés en technologie silicium.

## PYR 50-200 $\longleftrightarrow$ H = 15 Oe

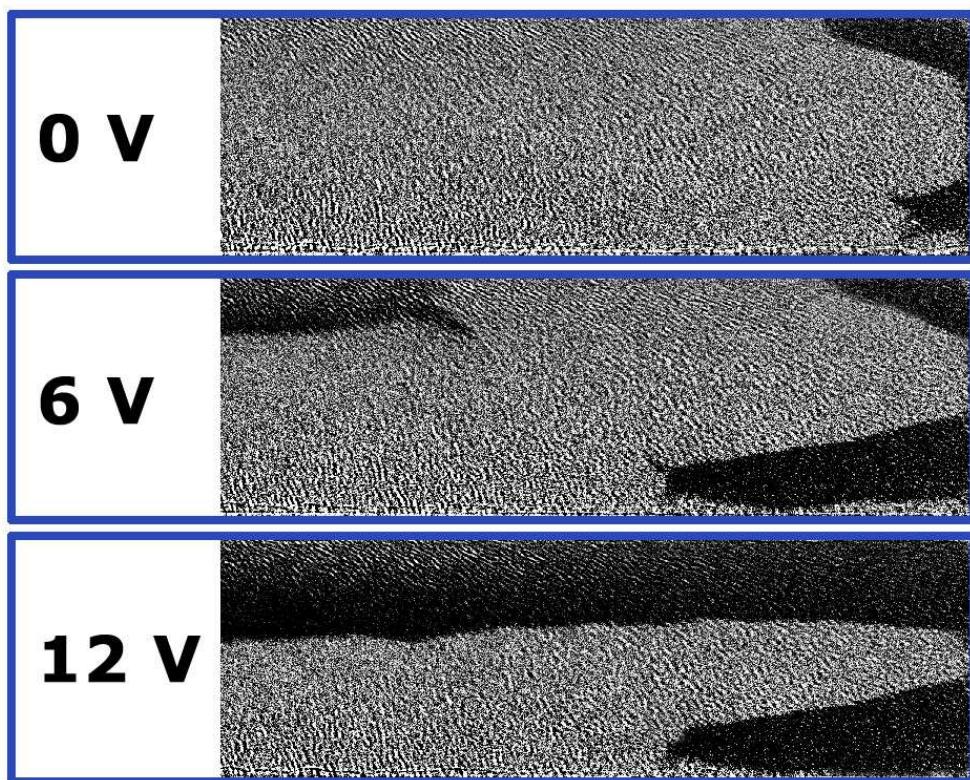


Figure 94. Formation de domaines sous actionnement piézoélectrique dans un champ magnétique de polarisation statique appliquée de 15 Oe.

## 7.6 Caractérisation RF

Finalement, nous présentons ici les résultats également préliminaires des mesures RF. Tout d'abord, nous nous intéressons à la réponse fréquentielle de nos dispositifs sans actuation. La Figure 95 montre les réponses en fréquence typiques de l'inductance, de la résistance et du facteur de qualité obtenues sur les motifs REC et PYR. Ces mesures sont comparées à celles obtenues sur des structures RF dites « référence ». Ces structures consistent en deux derniers niveaux technologiques, c'est-à-dire la couche magnétique en FeCoB, la couche d'isolation en SiO<sub>2</sub> et le niveau d'or, réalisés directement sur Si/SiO<sub>2</sub>. Les structures de référence RF s'affranchissent des niveaux inférieurs dédiés à l'actuation.

Le premier constat que l'on peut faire en comparant les réponses est que la résonance des inductances des dispositifs finaux est repoussée vers les basses fréquences. Cela est directement imputable à la proximité des plots RF avec les zones d'actuation, ce qui n'a pas été optimisé au départ, entraînant l'apparition de fortes capacités parasites en parallèle. De plus, globalement, les réponses en fréquence sont

similaires pour les motifs REC et PYR, le pseudo plan de masse (potentiel flottant) correspondant à la couche de platine sous la poutre ayant finalement peu d'impact sur la réponse des composants PYR. Les valeurs de l'inductance et du facteur de qualité répondent au cahier des charges établi, dans une plage de fréquence légèrement dégradée ici (1-2.5 GHz).

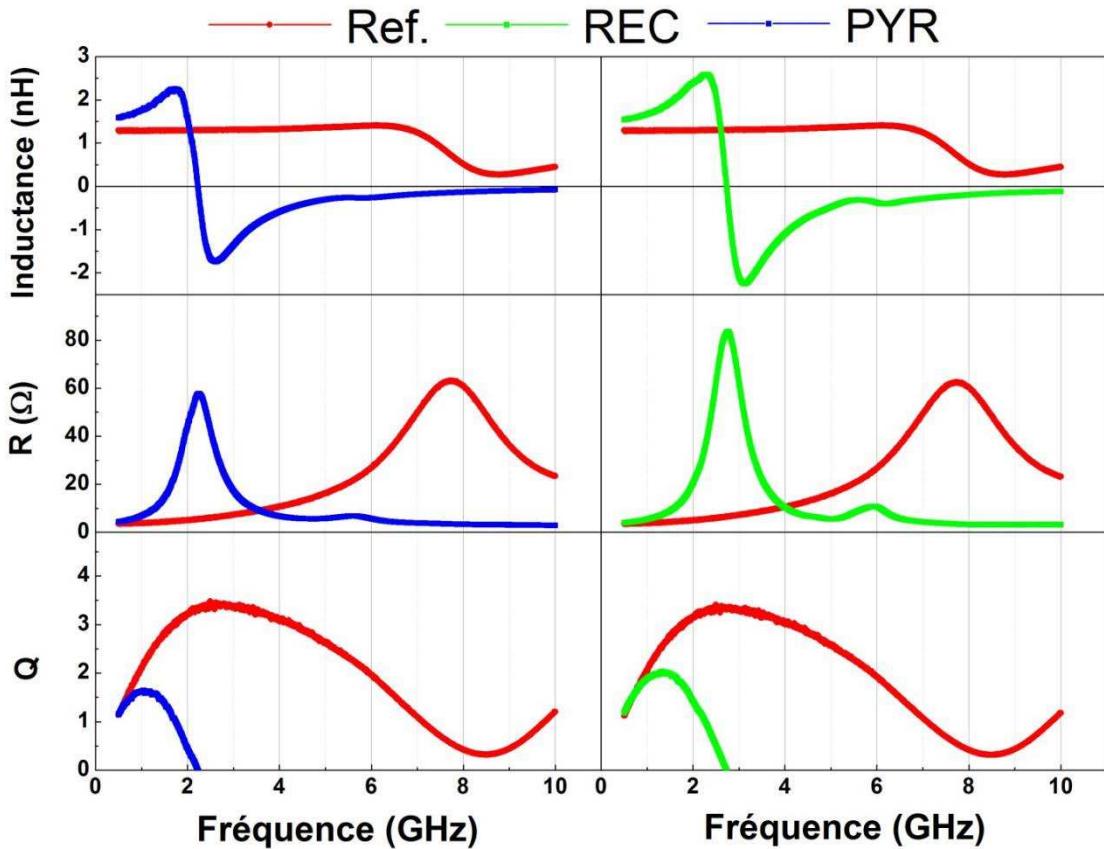


Figure 95. Réponses en fréquence de l'inductance, de la résistance et du facteur de qualité pour les motifs REC et PYR 100-500 en comparaison avec les motifs de référence (sans actionnement).

Nous nous intéressons maintenant à l'effet d'actuation sur la réponse inductive des composants, ce qui est un des objectifs applicatifs. La Figure 96 présente la variation de l'inductance et de la résistance basse -fréquence ( $f = 35$  MHz) d'un motif PYR 100-200 en fonction de la tension d'actuation piézoélectrique. Le choix limité au type PYR est motivé par une tension de claquage plus grande que le type REC et offrant une plage de travail plus confortable. Les mesures sont effectuées ici à basse fréquence pour des questions de rapport signal à bruit (le bruit RF est en effet trop élevé pour extraire de faibles variations représentatives sur L). L'origine de ce bruit est principalement lié au découplage des masses DC et RF sur les dispositifs et à la trop grande proximité des pointes DC et des pointes RF pendant le test. Ceci sera amélioré plus tard par une modification de design.

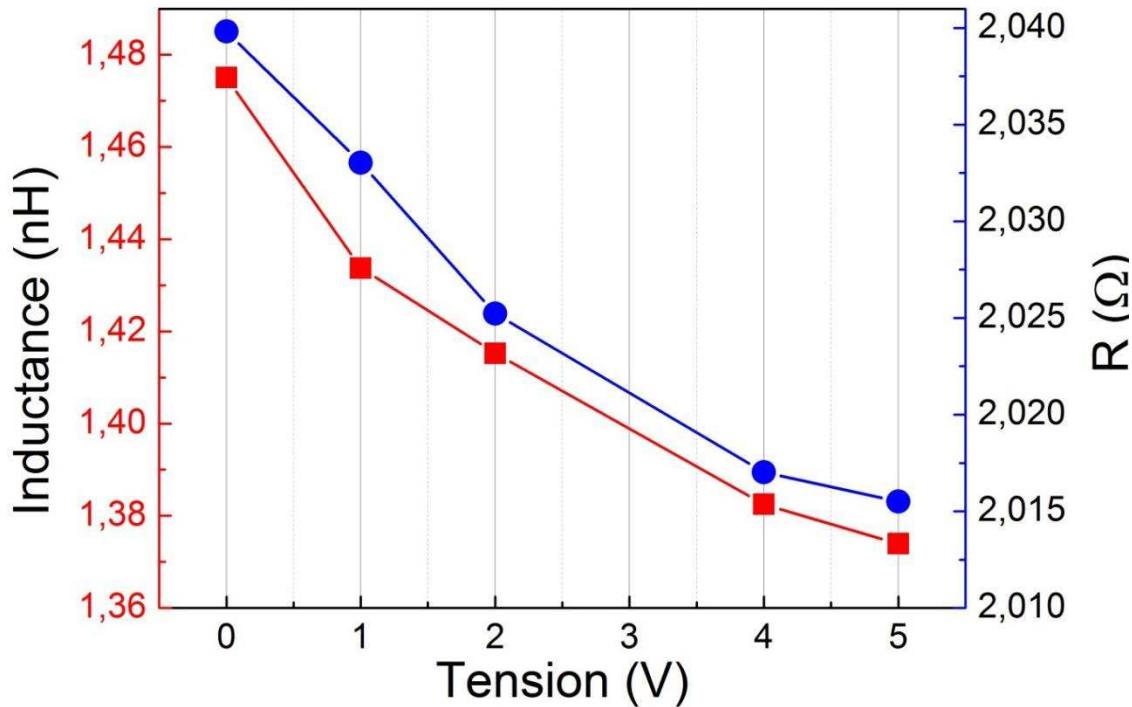


Figure 96. Variation de l'inductance et de la résistance en fonction de la tension électrique appliquée pour le motif PYR 100-200 ( $f = 35 \text{ MHz}$ ).

En premier lieu, on observe une diminution continue de l'inductance avec l'augmentation de tension appliquée, ce qui est le comportement attendu : augmentation de contrainte uniaxiale en tension, augmentation de l'anisotropie magnétique, diminution de la partie réelle de la perméabilité ( $\mu'$ ) et donc de l'inductance. Le comportement expérimental de la résistance série est également cohérent, dans la mesure où ici à basse fréquence elle traduit essentiellement la contribution des pertes magnétiques. La fréquence de résonance ferromagnétique augmente effectivement avec l'apport de l'énergie magnétoélastique et contribue à réduire la partie imaginaire de la perméabilité ( $\mu''$ ).

En second lieu, on constate que la variation maximale de la valeur d'inductance (et de résistance) n'est que 7.5% pour 5 V. Ce résultat est considérablement inférieur aux valeurs obtenues dans les simulations initiales. Ramené au rendement mécanique effectif des structures et, notamment, au cas PYR qui présente la valeur la plus faible ( $\sim 0.1 \text{ MPa/V}$ ), le calcul de l'énergie magnétoélastique à 5 V (chapitre 2) indique un potentiel de variation sur  $\mu$  de 10-15%, ce qui est cohérent. C'est donc bien la faible force motrice due à une libération incomplète des électrodes et aux contraintes résiduelles trop élevées (cas PYR), qui limitent grandement la performance de l'inductance variable. Le cas des structures REC est mécaniquement plus favorable (0.2 MPa/V) mais c'est ici la tenue au claquage qui est rédhibitoire.

Enfin, en extrapolant par simulation (structure REC 200-100 du chapitre 4) le rendement mécanique correspondant à une structure parfaitement libérée au niveau

des électrodes (ce qui n'est qu'une adaptation du process) mais avec les contraintes résiduelles représentatives de la technologie, on arrive à une estimation réaliste de la variation de l'inductance de 150-200 %. Les voies d'optimisation sont désormais clairement identifiées : libérer des structures au facteur de forme  $L/W < 1$  pour maximiser le rendement mécanique, supprimer les effets de pointes de la zone d'enrage pour une meilleure libération des capacités PZT (jusqu'à 75%) et réduire les contraintes résiduelles en optimisant la technologie PZT sans platine.

## 7.7 Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté le procédé de fabrication du premier dispositif composite magnétoélectrique intégré en technologie silicium sur des substrats 200 mm ainsi que les caractérisations exhaustives de ce dispositif brique technologique après brique technologique.

La quasi-intégralité des étapes de fabrication est aujourd'hui maîtrisée. Certaines d'entre elles doivent être encore optimisées des points de vue contrôle des procédés et d'adaptation du design à la technologie. Mais, cette réalisation électriquement fonctionnelle, menée dans son intégralité, constitue un résultat important. Seule l'étape de cristallisation du PZT reste le point le plus critique du procédé. Des améliorations du design et l'optimisation d'une technologie PZT sans platine (template  $ZrO_2$ ) sont les solutions envisagées pour maîtriser cette étape importante en termes de fonctionnalité piézoélectrique et mécanique. Du point de vue technologique, il est envisageable pour pouvoir atteindre les performances définies dans le cahier de charges. Elles seront évoquées dans la partie suivante concernant les perspectives.

L'étude systématique de cantilevers (simple encrage) au côté des dispositifs complets (double encrage) a permis d'identifier les contributeurs principaux aux contraintes résiduelles (en particulier le platine) qui sont d'autant plus importants ici qu'il s'agit d'un procédé technologique à très fort bilan thermique. Les modèles analytiques et numériques ont permis de quantifier ces valeurs matériau par matériaux et d'extraire des ordres de grandeurs de rendement piézo-mécanique réaliste (quelques MPa/V).

Des mesures originales de vibrométrie ont confirmé pour la première fois la présence d'un couplage piezo-mécanique expérimental dans la partie active des dispositifs et ainsi validé qualitativement le concept de ce moteur de contraintes hybride de type « push-pull ».

Les premiers résultats RF obtenus sur les prototypes complets d'inductances RF variables sont remarquables mais décevants. Remarquables, parce qu'ils valident, de manière encore très préliminaire, ce concept d'inductance variable MEMS unique en son genre. Décevants, parce que les performances ne sont pas au rendez-vous. Mais, il est rare qu'un premier flow technologique aussi complexe soit performant d'entrée. Les pistes d'amélioration aux niveaux du design, des procédés et des enchainements d'étapes sont identifiées et les perspectives de réussite d'un deuxième flow très encourageantes.

# Conclusions et perspectives

Le but de cette thèse était de développer de nouveaux composites magnétoélectriques pour les composants RF accordables intégrés. Nous nous sommes, tout d'abord, intéressés à des composites macroscopiques afin de déterminer les facteurs clés qui permettent d'obtenir un fort couplage magnétoélectrique. Des modélisations analytiques ont montré les effets attendus dans des composites laminaires. Des résultats expérimentaux remarquables d'un effet magnétoélectrique inverse, en bon accord avec la théorie, ont été obtenus dans des composites laminaires de type F/PE et AF/F/PE. Conformément à la théorie, la composition  $\text{Co}_{43}\text{Fe}_{43}\text{B}_{14}$  présentant le rapport  $\lambda_s/M_s$  le plus élevé a montré la valeur du coefficient magnétoélectrique  $M_{EH}$  de  $250 \text{ V}\cdot\text{cm}^{-1}\text{Oe}^{-1}$  la plus élevée. Cette valeur est comparable aux meilleurs résultats de l'état de l'art.

L'étude de ces composites nous a également permis de mettre en évidence différents modes de contrôle d'aimantation dans des composites magnétoélectriques de type F/PE et AF/F/PE. La possibilité de basculer l'axe facile d'aimantation (sous une contrainte de quelques dizaines de MPa) de manière abrupte ou graduelle montre un intérêt pour les applications du type interrupteur ou contrôle vectoriel d'aimantation. Une rotation de l'aimantation pouvant aller jusqu'à  $180^\circ$  dans les composites AF/F/PE a été démontrée pour la première fois expérimentalement. Par ailleurs, le développement d'un banc de mesure unique d'un microscope Kerr a rendu possible la visualisation directe des domaines magnétiques dans les composites magnétoélectriques microstructurés, sous l'action d'une tension électrique. L'observation directe de la rotation de l'axe facile d'aimantation dans ces types de dispositifs est inédite.

L'importance de l'uniaxialité des contraintes appliquées par le matériau piézoélectrique, nécessaire à l'obtention d'un effet magnétoélectrique important, demande le développement de nouveaux moteurs de contrainte intégrés. A cet égard, un moteur de contrainte MEMS de type « push-pull », réalisé à partir de piézoélectrique en couche mince, a été proposé et simulé. Ces simulations ont montré la possibilité de générer des contraintes uniaxiales dans la partie active du MEMS allant jusqu'à une centaine de MPa sous l'effet d'une tension électrique modérée (une dizaine de V). En parallèle, nous avons effectué des caractérisations microstructurales des couches minces mises en jeu dans le dispositif MEMS final. Ces caractérisations nous ont permis non seulement de déterminer les propriétés mécaniques des couches minces des différents matériaux en vue d'ajuster les paramètres de simulations, mais également d'évaluer la qualité de cristallisation du PZT dans différentes conditions de fabrication.

Enfin, nous avons présenté le procédé de fabrication et la caractérisation fonctionnelle du MEMS proposé. La maîtrise des 100 étapes constituant ce procédé, sur des substrats de silicium 200 mm, est essentielle à l'obtention d'un dispositif fonctionnel. Aujourd'hui, après plusieurs ajustements, la quasi-totalité des étapes est maîtrisée. L'étape la plus critique s'est révélée être le recuit de cristallisation PZT et nécessite encore des améliorations. Les tests électriques et mécaniques ont validé le concept de moteur de contrainte MEMS de type « push-pull ». En revanche, les contraintes résiduelles dues aux traitements thermiques lors de la fabrication vus par les couches constituant le dispositif, altèrent fortement les performances mécaniques de notre système. Par conséquent, les variations de l'inductance mesurées (aujourd'hui de 7%) sont loin d'égaler les variations attendues.

Pour atteindre les performances désirées, deux voies sont possibles :

La première consiste à conserver le moteur de contrainte élaboré lors de cette thèse, et à modifier le procédé de fabrication actuel, notamment l'étape de libération qui doit être mieux maîtrisée pour pouvoir dégager les électrodes au maximum et ainsi augmenter la génération de contraintes. Pour cela le volume de libération doit être prédéfini en créant des zones sacrificielles sous la structure à libérer. Par ailleurs, l'épaisseur de PZT doit être augmentée. Ceci entraînera une augmentation de la tension d'actionnement mais permettra d'améliorer les performances mécaniques. Enfin, la présence d'une seule structure PYR ou REC sur un substrat permettra un recuit rapide plus homogène et donc une meilleure cristallisation du PZT.

La deuxième voie envisageable est d'élaborer d'autres moteurs de contrainte tels que des « MFC intégrés » ou des alliages à mémoire de forme dans lesquels il est possible d'atteindre des contraintes mécaniques d'un ordre de grandeur supérieur à ceux présents dans les piézoélectriques. Les « MFC intégrés » présentent l'avantage d'avoir un actionnement direct (à l'inverse du concept proposé dans cette thèse) et d'exploiter le mode d33 du matériau piézoélectrique. Le principal challenge pour réaliser ce moteurs de contrainte consiste à développer un procédé de fabrication du PZT sur des sous-couches non-conductrices de type ZrO<sub>2</sub> et de réaliser des électrodes interdigitées de l'actionnement. Ce développement est prévu dans le cadre du projet Tours 2015 démarré récemment. Les matériaux à mémoire de forme possèdent des capacités d'actionnement très attractives pour les applications visées mais doivent être développés en couches minces. Ceci est l'objet de la thèse de Dmitry ZAKHAROV, débutée en janvier 2011.

# References

- Al-Shareef H.N., Auciello O. and Kingon A.I. "Electrical properties of ferroelectric thin-film capacitors with hybrid (Pt, RuO<sub>2</sub>) electrodes for nonvolatile memory applications" *J. Appl. Phys.* **77** (1995): 2146-2154.z
- Van Aken B. Bas, Palstra T. M. Thomas, Filippetti Alessio and Spaldin A. Nicola "The origin of ferroelectricity in magnetoelectric YMnO<sub>3</sub>" *Nature Mater.* **3** (2004): 164-170.
- Astrov N.D. "The magnetoelectric effect in antiferromagnetics" *Sov. Phys. JETP* **11** (1960): 708.
- Bacon G.E. "Neutron Diffraction" *Oxford University Press*, London (1975).
- Bao D., Wakiya N., Shinozaki K., Mizutani N. and Yao X. "Abnormal ferroelectric properties of compositionally graded Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> thin films with LaNiO<sub>3</sub> bottom electrodes" " *J. Appl. Phys.* **90** (2001): 506-508.
- Bibes Manuel and Barthélémy Agnès "Towards a magnetoelectric memory" *Nature Mater.* **7** (2008): 425-426.
- Bichurin M. I., Petrov V. M., Kiliba Yu. V and. Srinivasan G. "Magnetic and magnetoelectric susceptibilities of a ferroelectric/ferromagnetic composite at microwave frequencies" *Phys. Rev. B* **66** (2002): 134404.
- Binek Ch. and Doudin B. "Magnetoelectronics with magnetoelectrics" *J. Phys.: Condens. Matter* **17** (2005): L39-L44.
- Bitter F. "On inhomogeneities in the magnetization of ferromagnetic materials" *Phys. Rev.* **38** (1931): 1903-1905.
- Belik A. Alexei, Kamba Stanislav, Savinov Maxim, Nuzhnyy Dmitry, Tachibana Makoto, Takayama-Muromachi Eiji and Goian V. "Magnetic and dielectric properties of hexagonal InMnO<sub>3</sub>" *Phys. Rev. B* **79** (2009): 054411.
- Bouregba R., Poullain G., Vilquin B. and Phun G.L. "Asymmetrical leakage currents as a possible origin of the polarization offsets observed in compositionally graded ferroelectric films" *J. Appl. Phys.* **95** (2003): 5583.
- Bouyssou E., Jérision R., Cézac N., Leduc P., Guégan G. and Anceau C. "Wafer level reliability and leakage current modeling of PZT capacitors" *Mater. Sci. Eng.* **118** (2005): 28.

Cai Ning, Nan Ce-Wen, Zhai Junyi and Lin Yuanhua "Large high-frequency magnetoelectric response in laminated composites of piezoelectric ceramics, rare-earth iron alloys and polymer" *Appl. Phys. Lett.* **84** (2004): 3516.

Chen Yajie, Wang Jingmin, Liu Ming, Lou Jing, Sun X. Nian, Vittoria Carmine and Harris G. Vincent "Giant magnetoelectric coupling and E-field tunability in a laminated Ni<sub>2</sub>MnGa/lead-magnesium-niobate-lead titanate multiferroic heterostructure" *Appl. Phys. Lett.* **93** (2008): 112502.

Cheong Sang-Wook and Mostovoy Maxim "Multiferroics: a magnetic twist for ferroelectricity" *Nature Mater.* **6** (2007): 13-20.

Choi Y. J., Yi H. T., Lee S., Huang Q., Kiryukhin V. and Cheong S.-W. "Ferroelectricity in an Ising Chain Magnet" *Phys. Rev. Lett.* **100** (2008): 047601.

Cooke M.D., Wang L.-C., Watts R., Zuberek R., Heydon G., Rainforth W.M. and Gehring G.A. "The effect of thermal treatment, composition and substrate on the texture and magnetic properties of FeCo thin films" *J. Phys. D: Appl. Phys.* **33** (2000): 1450–1459.

Coquaz C. "Domaines magnétiques dans les couches minces de permalloy: observations, interprétations, application aux têtes d'enregistrement magnétique" *Thèse de doctorat*, Université Joseph Fourier - Grenoble I (1984)

Curie P. "Sur la symétrie dans les phénomènes physiques, symétrie d'un champ électrique et d'un champ magnétique" *J. Phys. Theor. Appl.* **3** (1894): 393-415.

Dae Ho Kim, Ho Nyung Lee, Michael D. Biegalski, and Hans M. Christen "Large ferroelectric polarization in antiferromagnetic BiFe<sub>0.5</sub>Cr<sub>0.5</sub>O<sub>3</sub> epitaxial films" *Appl. Phys. Lett.* **91** (2007): 042906.

Dai Xianzhi, Wena Yumei, Lia Ping, Yanga Jin, Lia Ming "Energy harvesting from mechanical vibrations using multiple magnetostrictive/piezoelectric composite transducers" *Sens. Actuators A* **166** (2011): 94-101.

Debye P. and Scherrer P. "Interferences in irregularly oriented particles in Rontgen light" *Physik Z* **17** (1916): 277-283.

Defaÿ Emmanuel "Intégration de matériaux pérovskites dans la technologie silicium" *Habilitation à Diriger les Recherches*, INPG (2007).

Deraemaeker A., Nasser H. and Preumont A. "Modélisation des composites a fibres piézoélectriques : calcul des coefficients homogénéisés" *Compte Rendu des JNC* **16** (2009).

Dai Xianzhi, Wena Yumei, Li Ping, Yang Jin and Zhang Gaoyong "Modeling, characterization and fabrication of vibration energy harvester using

Terfenol-D/PZT/Terfenol-D composite transducer" *Sens. Actuators A* **156** (2009): 350-358.

Dong Shuxiang, Zhai Junyi, Li Jiefang and Viehland D. "Near-ideal magnetoelectricity in high-permeability magnetostrictive/piezofiber laminates with a (2-1) connectivity" *Appl. Phys. Lett.* **89** (2006): 252904.

Dong S. X., Zhai J., Li J.-F. and Viehland D. "Small dc magnetic field response of magnetoelectric laminate composite" *Appl. Phys. Lett.* **88** (2006): 082907.

Dong S. X., Li J. F. and Viehland D. "Voltage gain effect in ring-type magnetoelectric composite" *Appl. Phys. Lett.* **84** (2004): 4188.

Dong S. X., Li J. F. and Viehland D. "A strong magnetoelectric voltage gain effect in magnetostrictive-piezoelectric composite" *Appl. Phys. Lett.* **85** (2004): 3534.

Dong Shuxiang, Zhai Junyi, Li J.F., Viehland D. and Bichurin M.I. "Magnetolectric gyration effect in  $Tb_{1-x}Dy_xFe_{2-y}/Pb(Zr,Ti)O_3$  laminated composites at the electromechanical resonance" *Appl. Phys. Lett.* **89** (2006): 243512.

Dong X.W., Wanf B., Wang K.F., Wan J.G. and Liu J.-M. "Ultra-sensitive detection of magnetic field and its direction using bilayer PVDF/Metglas laminate" *Sens. Actuators A* **153** (2009): 64-68.

Dorosinskii L.A., Indenbom M.V., Nikitenko V.I., Ossip'yan Yu.A., Polyanskii A.A. and Vlasko-Vlasov V.K. "Studies of HTSC crystal magnetization features using indicator magnetooptic films with in-plane anisotropy" *Physica C* **203** (1992): 149.

Eerenstein W., Mathur N.D. and Scott J.F. "Multiferroic and magnetoelectric materials" *Nature* **442** (2006): 759-765.

Efremov V. Dmitry, Van den Brink Jeroen and Khomskii I. Daniel "Bond- versus site-centered ordering and possible ferroelectricity in manganites" *Nature Mater.* **3** (2004): 853-856.

Fang D.-M., Yuan Q., Zhang H.-X. and Li X.-H. "Electrostatically driven tunable radio frequency inductor" *Microsystem Technologies* **16** (2010): 2119-2122.

Fang Z., Lu S. G., Li F., Datta S., Zhang Q. M. and Tahchi El M. "Enhancing the magnetoelectric response of Metglas/polyvinylidene fluoride laminates by exploiting the flux concentration effect" *Appl. Phys. Lett.* **95** (2009): 112903.

Faraday M. "On the magnetization of light and the illumination of magnetic lines of force" *The Royal Society* (1946).

Fetisov Y.K. and Srinivasan G. "Electric field tuning characteristics of a ferrite-piezoelectric microwave resonator" *Appl. Phys. Lett.* **88** (2006): 143503.

Fiebig Manfred "Revival of the magnetoelectric effect" *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38** (2005): R123.

Frederikse H.P.R. "Elastic constants of single crystals" *CRC Handbook of Chemistry and Physics* **87<sup>th</sup>** ed. (2006): 12.77 (version internet).

Garino T.J. and Harrington M. "Residual stress in PZT thin films and its effect on ferroelectric properties" *Proc. Mater. Res. Soc. (Ferroelectric Thin Films II)*, Boston, MA (1991): 341.

Glasmachers Stefan, Frommberger Michael, McCord Jeffrey and Quandt Eckhard "Influence of strain on the high-frequency magnetic properties of CoFeBSi thin films" *Phys. Stat. Sol.* **201** (2004): 3319–3324.

El Gmati I., Calmon P.F., Boukabache A., Pons P., Fulcand R., Pinon S., Boussetta H., Kallala M.A. and Besbes K. "Fabrication and evaluation of an on-chip liquid micro-variable inductor" *J. Micromech. Microeng.* **21** (2011): 025018.

Goodenough B. John and Stickler J. John "Theory of the Magnetic Properties of the Ilmenites  $M\text{TiO}_3$ " *Phys. Rev.* **104** (1967): 768-778.

Greve Henry, Woltermann Eric, Quenzer Hans-Joachim, Wagner Bernhard, and Quandt Eckhard "Giant magnetoelectric coefficients in  $(\text{Fe}_{90}\text{Co}_{10})_{78}\text{Si}_{12}\text{B}_{10}$ -AlN thin film composites" *Appl. Phys. Lett.* **96** (2010): 182501.

Grözing M., Moser D. and Berroth M. "Tuned active inductor and switched bandpass amplifier in CMOS technology" *GigaHertz 2003 Symposium*, Linköping, Sweden (2003).

Grutter P., Wadas A., Meyer E., Heunzeimann H., Hidber H.-R. and Guntherodt H.-J. "High resolution magnetic force microscopy" *J. Vac. Sci. Technol. A* **8** (1990): 406.

Haiding Mo, Christie S. Nelson, Leonard N. Bezmaternykh, and Temerov V. T. "Magnetic structure of the field-induced multiferroic  $\text{GdFe}_3(\text{BO}_3)_4$ " *Phys. Rev. B* **78** (2008): 214407

Herzer G. "Grain Size Dependence of Coercivity and Permeability in Nanocrystalline Ferromagnets" *IEEE Trans. Magn.* **26** (1990): 1397-1402.

Holtz A. "Etude de microsystèmes par interférométrie optique double faisceau" *Rapport de stage* (2012).

Hsueh C.-H. "Modeling of elastic deformation of multilayers due to residual stresses and external bending" *J. Appl. Phys.* **91** (2002): 9652.

Hsueh C.-H. "Thermal stresses in elastic multilayer systems" *Thin Solid Films* **418** (2002): 182-188.

Hsueh C.-H., Luttrell C.R. and Cui T. "Thermal stress analyses of multilayered films on substrates and cantilever beams for micro sensors and actuators" *J. Micromech. Microeng.* **16** (2006): 2509-2515.

Hu Jia-Mian, Li Zheng, Wang Jing and Nan C.-W. "Electric-field control of strain-mediated magnetoelectric random access memory" *J. Appl. Phys.* **107** (2010): 093912.

Huai Yiming "Spin-Transfer Torque MRAM (STT-MRAM): Challenges and Prospects" *AAPPS Bulletin* **18** (2008): 33-40.

Hubert A. and Schafer R. "Magnetic domains" *Springer*, Berlin (1998).

Hur N., Park S., Sharma P. A., Ahn J. S., Guha S. and Cheong S-W. "Electric polarization reversal and memory in a multiferroic material induced by magnetic fields" *Nature* **429** (2004): 392-395.

Ikeda Naoshi, Ohsumi Hiroyuki, Ohwada Kenji, Ishii Kenji, Inami Toshiya, Kakurai Kazuhisa, Murakami Youichi, Yoshii Kenji, Mori Shigeo, Horibe Yoichi and Kito Hijiri "Ferroelectricity from iron valence ordering in the charge-frustrated system LuFe<sub>2</sub>O<sub>4</sub>" *Nature* **436** (2005): 1136-1138.

Islam Adnan Rashed and Priya Shashank "Effect of piezoelectric grain size on magnetoelectric coefficient of Pb(Zr<sub>0.52</sub>Ti<sub>0.48</sub>)O<sub>3</sub>-Ni<sub>0.8</sub>Zn<sub>0.2</sub>Fe<sub>2</sub>O<sub>4</sub> particulate composites" *J. Mater. Sci.* **43** (2008): 3560-3568.

Islam A. Rashed, Ni Yong, Khachaturyan G. Armen and Priya Shashank "Giant magnetoelectric effect in sintered multilayered composite structures" *J. Appl. Phys.* **104** (2008): 044103

Israel Casey, Kar-Narayan Sohini and Mathur D. Neil "Eliminating the Temperature Dependence of the Response of Magnetoelectric Magnetic-Field Sensors" *IEEE Sens. J.* **10** (2010): 914-917.

Jeon Y.B., Sood R., Jeong J.-H. and Kim S.-G., "MEMS power generator with transverse mode thin film PZT" *Sens. Actuators A* **122** (2005): 16–22.

Jiles D.C. "The development of highly magnetostrictive rare earth-iron alloys" *J. Phys. D: Appl. Phys.* **27** (1994): 1-11

Jin Jiezh, Lu Sheng-Guo, Chanthad Chalathorn, Zhang Qiming, Haque M. A. and Wang Qing "Multiferroic Polymer Composites with Greatly Enhanced Magnetoelectric Effect under a Low Magnetic Bias" *Adv. Mater.* **23** (2011): 3853–3858.

Kant M. "Les ferrofluides" *Techniques de l'Ingénieur* (1981) : D369.

Katine J.A. and Fullerton E. Eric "Device implications of spin-transfer torques" *J. Magn. Magn. Mater.* **320** (2008): 1217-1226.

Kerr J. "On rotation of the plane of polarization by reflection from the pole of a magnet" *Phil. Mag.* (1877).

Khomskii D.I. "Multiferroics: Different ways to combine magnetism and ferroelectricity" *J. Magn. Magn. Mater.* **306** (2006): 1-8.

Lebeugle D., Colson D., Forget A. and Viret M. "Very large spontaneous electric polarization in BiFeO<sub>3</sub> single crystals at room temperature and its evolution under cycling fields" *Appl. Phys. Lett.* **91** (2007): 022907

Liu G., Cui X. and Dong S. "A tunable ring-type magnetoelectric inductor" *J. Appl. Phys.* **108** (2010): 094106.

Liu M., Obi O., Lou J., Cai Z. and Stoute S. "Giant electric field tuning of magnetic properties in multiferroic ferrite/ferroelectric heterostructures" *Adv. Funct. Mater.* **19** (2009): 1–6.

Lorenz B., Wang Y. Q., Sun Y. Y. and Chu C. W. "Large magnetodielectric effects in orthorhombic HoMnO<sub>3</sub> and YMnO<sub>3</sub>" *Phys. Rev. B* **70** (2004): 212412.

Lorenz B., Yen F., Gospodinov M. M. and Chu C. W. "Field-induced phases in HoMnO<sub>3</sub> at low temperatures" *Phys. Rev. B* **71** (2005): 014438.

Lou J., Reed D., Liu M. and Sun N.X. "Electrostatically tunable magnetoelectric inductors with large inductance tunability" *Appl. Phys. Lett.* **94** (2009): 112508.

Lubecke V., Barber B., Chan E., Lopez D., Gross M. and Gammel P. "Self-assembling MEMS variable and fixed RF Inductors" *IEEE Trans. Microw. Theory Tech.* **49** (2001): 2093-2098.

Ma Jing, Hu Jiamian, Li Zheng and Nan Ce-Wen "Recent Progress in Multiferroic Magnetoelectric Composites: from Bulk to Thin Films" *Adv. Mater.* **23** (2011): 1062–1087.

Ma Jing, Shi Zhan and Nan Ce-Wen "Magnetoelectric Properties of Composites of Single Pb(Zr,Ti)O<sub>3</sub> Rods and Terfenol-D/Epoxy with a Single-Period of 1-3-Type Structure" *Adv. Mater.* **19** (2007): 2571–2573.

Ma Jing, Shi Zhan and Nan C.-W. "Magnetic-field induced electric response of simple magnetoelectric composite rods" *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41** (2008): 155001.

McElhaney K.W., Vlassak J.J. and Nix W.D. "Determination of indenter tip geometry and indentation contact area for depth-sensing indentation experiments" *J. Mater. Res.* **13** (1998): 1300-1306.

McNelly J. "Ion Assisted Deposition" *Handbook of Plasma Processing Technology*, Noyes Pub., New Jersey (1990).

Middelhoek S. "Ferromagnetic domains in thin Ni-Fe films" *Drukkerij Wed*, Amsterdam (1961).

Mori Kiyotake and Wuttig Manfred "Magnetoelectric coupling in Terfenol-D/polyvinylidenedifluoride composites" *Appl. Phys. Lett.* **81** (2002): 100.

Nan Ce-Wen, Bichurin M.I., Dong Shuxiang and Srinivasan "Multiferroic magnetoelectric composites: Historical perspective, status, and future directions" *J. Appl. Phys.* **103** (2008): 031101.

Nan Ce-Wen, Li Ming and Huang H. Jin "Calculations of giant magnetoelectric effects in ferroic composites of rare-earth–iron alloys and ferroelectric polymers" *Phys. Rev. B* **63** (2001): 144415.

Navitar BrightLight (2011) technical data sheet, <http://www.navitar.com>.

Novosad V., Otani Y., Ohsawa A., Kim S. G., Fukamichi K., Koike J. and Maruyama K. "Novel magnetostrictive memory device" *J. Appl. Phys.* **87** (2000): 6400.

Okada K., Sugawara H., Ito H., Itoi K., Sato M., Abe H., Ito T., and Masu K. "On-Chip High-Q Variable Inductor Using Wafer-Level Chip-Scale Package Technology" *IEEE Trans. Electron Dev.* **53** (2006): 2401.

Oliver W.C. and Pharr G.M. "An improved technique for determining hardness and elastic modulus using load and displacement sensing indentation experiments" *J. Mater. Res.* **7** (1992): 1564-1583.

Oogarah T.B., Daneshmand M., Mansour R.R. and Chang S. "Low Temperature Variable Inductor Using Porous Anodic Alumina" *Proc. IET Microwaves, Antennas & Propagation* (2011): 1274-1279.

Pan D.A., Bai Y., Chu W.Y. and Qiao L.J. "Magnetoelectric effect in a Ni–PZT–Ni cylindrical layered composite synthesized by electro-deposition" *J. Phys. D: Appl. Phys.* **41** (2008): 022002.

Park Chee-Sung, Cho Kyung-Hoon, Arat Ali Mustafa, Evey Jeff and Priya Shashank "High magnetic field sensitivity in  $\text{Pb}(\text{Zr},\text{Ti})\text{O}_3$ – $\text{Pb}(\text{Mg}_{1/3}\text{Nb}_{2/3})\text{O}_3$  single crystal/Terfenol-D/Metglas magnetoelectric laminate composites" *J. Appl. Phys.* **107** (2010): 094109.

Park P., Kim C.S., Park M.Y., Kim S.D. and Yu H.K. "Variable Inductance Multilayer Inductor With MOSFET Switch Control" *IEEE Electron Device Lett.* **25** (2004): 144-146.

Pettiford C., Lou J., Russell L. and Sun N.X. "Strong magnetoelectric coupling at microwave frequencies in metallic magnetic film/lead zirconate titanate multiferroic composites" *Appl. Phys. Lett.* **92** (2008): 122506.

Rado G.T., and Folen V.J. "Observation of the magnetically induced magnetoelectric effect and evidence for antiferromagnetic domains" *Phys. Rev. Lett.* **7** (1961): 310-311.

Ramesh R., Spaldin A. Nicola "Multiferroics: progress and prospects in thin films" *Nature Mater.* **6** (2007): 21-29.

Ramesha K., Llobet A., Proffen Th., Serrao C.R. and Rao C.N.R. "Observation of local non-centrosymmetry in weakly biferroic  $\text{YCrO}_3$ " *J. Phys.: Condens. Matter* **19** (2007): 102202.

Rachid Hida. "Etude du comportement dynamique de la perméabilité magnétique de microstructures élémentaires et de circuits fermes réalisés à partir de couches ferromagnétiques minces" *Thèse de doctorat*, Université Claude Bernard – Lyon I (2004).

Re E. Mark and Kryder H. Mark. "Magneto-optic investigation of thin-film recording heads" *J. Appl. Phys.* **55** (1984): 2245.

Reimer L. "Transmission Electron Microscopy" *Springer*, Berlin (1993).

Rontgen W.C. "Ueber die durch Bewegung eines im homogenen electrischen Felde befindlichen Dielectricums hergerufene electrodynamische Kraft." *Ann. Phys.* **35** (1888): 264-270.

Van Run A. M. D. G., Terrell D. R. and Scholing D. H. "An in situ grown eutectic magnetoelectric composite material" *J. Mater. Sci.* **9** (1974): 1710-1714.

Ryu Jungho, Carazo Vazquez Alfredo, Uchino Kenji and Kim Hyoun-Ee "Magnetoelectric Properties in Piezoelectric and Magnetostrictive Laminate Composites" *Jpn. J. Appl. Phys.* **40** (2001): 4948-4951.

Sawyer C.B. and Tower C.H. "Rochelle salt as a dielectric" *Phys. Rev.* **35** (1930): 269-273.

Schiott Jakob, Di Tolla D. Francesco and Jacobsen W. Karsten "Softening of nanocrystalline metals at very small grain sizes" *Nature* **391** (1998): 561-563.

Scott J. F. "Multiferroics might hold the future for the ultimate memory device. The demonstration of a four-state resistive memory element in a tunnel junction with multiferroic barriers represents a major step in this direction" *Nature Mater.* **6** (2007): 256-257.

Shad Roundy "On the Effectiveness of Vibration-based Energy Harvesting" *J. Intell. Mater. Syst. Struct.* **16** (2005): 809-823.

Shin W.-P., Li Z., McCormick D.T., Tien N.C. and Hui C.Y. "Tunable solenoid microinductors utilizing permalloy electro-thermal vibromotors" *Proc. IEEE MEMS* (2004): 793-796.

Smart Material (2010) MFC technical data sheet, <http://www.smart-material.com>.

Son J. Y. and Shin Y.-H. "Multiferroic BiMnO<sub>3</sub> thin films with double SrTiO<sub>3</sub> buffer layers" *Appl. Phys. Lett.* **93** (2008): 062902

Song Y.Y., Das J., Krivosik P., Mo N. and Patton C.E. "Electric field tunable 60 GHz ferromagnetic resonance response in barium ferrite-barium strontium titanate multiferroic heterostructure" *Appl. Phys. Lett.* **94** (2009): 182505.

D'Souza Noel, Atulasimha Jayasimha and Bandyopadhyay Supriyo "Four-state nanomagnetic logic using multiferroics" *J. Phys. D: Appl. Phys.* **44** (2011): 265001.

Scheinfein M.R., Unguris J., Kelley M.H., Oierce D.T. and Celotta R.J. "Scanning electron microscopy with polarization analysis (SEMPA)" *Rev. Sci. Instrum.* **61** (1990): 2501.

Schlenker M. and Baruchel J. "X-ray diffraction topography", in *Handbook of Microscopy* (1997) Amelinckx S., van Dyck D., van Landuyt J. and van Tendeloo G. vol. I. VCN, Weinheim.

Spaldin A. Nicola, and Fiebig Manfred "The Renaissance of Magnetoelectric Multiferroics" *Science* **309** (2005): 391-392.

Srinivasan G. "Magnetolectric Composites" *Annu. Rev. Mater. Res.* **40** (2010): 153-178.

Stoney G.G. "The tension of metallic films deposited by electrolysis" *Proc. Roy. Soc. London A. Mater.* **82** (1909): 172-175.

Van Suchtelen J. "Product properties: a new application of composite materials" *Philips Res. Rep.* **27** (1972): 28.

Viala B. "Le ferromagnétisme pour les hyperfréquences" *Habilitation à Diriger les Recherches*, Université Joseph Fourier de Grenoble (2008).

Vroubel M., Zhuang Y., Rejaei B. and Burghartz J.N. "Integrated tunable magnetic RF inductor" *IEEE Electron Device Lett.* **25** (2004): 787.

Tassetti C.-M., Gäelle L. and Gilles J.-P. "New tunable RF MEMS microinductors design" *Micromech. Microeng.* **14** (2004): S17-S22.

- Tatarenko A.S., Gheavarughese V. and Srinivasan G. "A magnetoelectric microwave band-pass filter" *Electron. Lett.* **42** (2006): 540–41.
- Teague R. James, Gerson Robert and James W.J. "Dielectric hysteresis in single crystal BiFeO<sub>3</sub>" *Solid State Communications* **8** (1970): 1073-1074.
- Tehrani S., Slaughter J.M., Chen E., Durlam M., Shi J. and DeHerrera M. "Progress and Outlook for MRAM Technology" *IEEE Trans. Magn.* **35** (1999): 2814-2819.
- Tiercelin Nicolas, Dusch Yannick, Preobrazhensky Vladimir and Pernod Philippe "Magnetoelectric memory using orthogonal magnetization states and magnetoelastic switching" *Appl. Phys. Lett.* **109** (2011): 07D726.
- Tiercelin N., Preobrazhensky V., Mortet V., Talbi A., Soltani A., Haenen K., Pernod P. "Thin film magnetoelectric composites near spin reorientation transition" *J. Magn. Magn. Mater.* **321** (2009): 1803–1807.
- Tokunaga Yusuke, Lottermoser Thomas, Lee Yunsang, Kumai Reiji, Uchida Masaya, Arima Takahisa and Tokura Yoshinori "Rotation of orbital stripes and the consequent charge-polarized state in bilayer manganites" *Nature Mater.* **5** (2006): 937-941.
- Tokunaga Y., Iguchi S., Arima T. and Tokura Y. "Magnetic-Field-Induced Ferroelectric State in DyFeO<sub>3</sub>" *Phys. Rev. Lett.* **101** (2008): 097205.
- Tokura Yoshinori "Multiferroics as Quantum Electromagnets" *Science* **312** (2006): 1481-1482.
- Ustinov A.B., Tiberkevich V.S., Srinivasan G., Slavin A.N. and Semenov A.A. "Electric field tunable ferrite-ferroelectric hybrid wave microwave resonators: experiment and theory" *J. Appl. Phys.* **100** (2006): 093905
- Venevtsev N. Yu. and Gagulin V.V. "Search, design and investigation of seignettomagnetic oxides" *Ferroelectrics* **162** (1994): 23-31
- Wang J., Neaton J.B., Zheng H., Nagarajan V., Ogale S.B., Liu B., Viehland D., Vaithyanathan V., Schlom D.G., Waghmare U.V., Spaldin N.A., Rabe K.M., Wuttig M. and Ramesh R. "Epitaxial BiFeO<sub>3</sub> Multiferroic Thin Film Heterostructures" *Science* **299** (2003): 1719-1722.
- Wang K.F., Liu J.-M. and Y. Wang. *Chin. Sci. Bull.* **53** (2008): 1098.
- Wang Y. P., Zhou L., Zhang M. F., Chen X. Y., Liu J.-M. and Z. G. Liu "Room-temperature saturated ferroelectric polarization in BiFeO<sub>3</sub> ceramics synthesized by rapid liquid phase sintering" *Appl. Phys. Lett.* **84** (2004): 1731

Wang Yaojin, Or Wing Siu, Chan Lai Helen, Zhao Xiangyong Luo and Haosu  
“Enhanced magnetoelectric effect in longitudinal-transverse mode Terfenol-D/Pb(Mg<sub>1/3</sub>Nb<sub>2/3</sub>)O<sub>3</sub>–PbTiO<sub>3</sub> laminate composites with optimal crystal cut” *J. Appl. Phys.* **103** (2008): 124511.

Wilson A.H. “On the electric effect rotating a dielectric in a magnetic field” *Phil. Trans. R. Soc. A* **204** (1905): 121-137.

Wongdamnern N., Ngamjarurojana A., Laosiritaworn Y., Ananta S., and Yimnirun R. “Dynamic ferroelectric hysteresis scaling of BaTiO<sub>3</sub> single crystals” *J. Appl. Phys.* **105** (2009): 044109.

Wu Huaping, Wu Linzhi, Sun Qiu, Fei Weidong and Du Shanyi “Mechanical properties of sol–gel derived lead zirconate titanate thin films by nanoindentation” *Appl. Surf. Sci.* **254** (2008): 5492–5496.

Wu Tao, Bur Alexandre, Wong Kin, Zhao Ping, Lynch S. Christopher, Amiri Khalili Pedram, Wang L. Kang and Carman P. Gregory “Electrical control of reversible and permanent magnetization reorientation for magnetoelectric memory devices” *Appl. Phys. Lett.* **98** (2011): 262504.

Zhai Junyi, Xing Zengping, Dong Shuxiang, Li Jiefang and Viehland D. “Detection of pico-Tesla magnetic fields using magneto-electric sensors at room temperature” *Appl. Phys. Lett.* **88** (2006): 062510.

Zhang J. X., Dai J. Y., So L. C., Sun C. L., Lo C. Y., Or S. W. and Chanb H. L. W. “The effect of magnetic nanoparticles on the morphology, ferroelectric, and magnetoelectric behaviors of CFO/P(VDF-TrFE) 0–3 nanocomposites” *J. Appl. Phys.* **105** (2009): 054102.

Zhang Q.Q., Gross S.J., Tadigadapa S., Jackson T.N., Djuth F.T., Trolier-McKinstry S. “Lead zirconate titanate films for d<sub>33</sub> mode cantilever actuators” *Sens. Actuators A* **105** (2003): 91–97.

Zhang Yi, Liu Jing, Xiao X.H., Peng T.C., Jiang C.Z., Lin Y.H. and Nan C.-W. “Large reversible electric-voltage manipulation of magnetism in NiFe/BaTiO<sub>3</sub> heterostructures at room temperature” *J. Phys. D: Appl. Phys.* **43** (2010): 082002.

Zheng L., Lin C., Xu W.-P. and Okuyama M. “Vertical drift of P-E hysteresis loop in asymmetric ferroelectric capacitors” *J. Appl. Phys.* **79** (1996): 8634-8637.

Zhou S., Sun X.-Q. et Carr W. N. “A monolithic variable inductor network using microrelays with combined thermal and electrostatic actuation” *J. Micromech. Microeng.* **9** (1999): 45-50.

Zine-El-Abidine I. and Okoniewski M. “A tunable radio frequency MEMS inductor using Metal MUMPs” *J. Micromech. Microeng.* **17** (2007): 2280–2287.



# Production scientifique

L'auteur des présentations et posters est indiqué par un astérisque (\*)

## Brevets

- J. Delamare, O. Cugat, B. Viala, G. Lebedev. **Système de récupération d'énergie est circuit de commande associé utilisant des relais magnétiques**, en cours de dépôt DD13895CV
- J. Delamare, O. Cugat, B. Viala, G. Lebedev. **Système de récupération d'énergie est circuit de commande associé utilisant des relais mécaniques**, en cours de dépôt DD13896CV
- J. Delamare, O. Cugat, B. Viala, G. Lebedev. **Système de récupération d'énergie est circuit de commande associé utilisant des relais électrostatiques ou piézoélectriques**, en cours de dépôt DD13956CV
- D. Ettelt, G. Lebedev, B. Viala, J. Delamare, **Capteur vectoriel de champ magnétique**, Demande de brevet EN 1160325, 14 novembre 2011

## Publications

G.A. Lebedev, B. Viala, J. Delamare, O. Cugat, M. Audoin, **Direct observation of magnetic easy axis rotation in integrated magnetoelectric composites by Kerr microscopy**, Applied Physics Letters, submitted (2012)

Dmitry Zakharov, Gor Lebedev, Orphee Cugat, Jerome Delamare, Bernard Viala, Thomas Lafont, Leticia Gimeno and Alexander Shelyakov, **Thermal energy conversion by coupled shape memory and piezoelectric effects**, Journal Of Micromechanics And Microengineering **22**, accepted for publication (2012)

Thomas Lafont, L Gimeno, J Delamare, G A Lebedev, D I Zakharov, B Viala, O Cugat, N Galopin, L Garbuio and O Geoffroy, **Magnetostrictive-piezoelectric composite structures for energy harvesting**, Journal Of Micromechanics And Microengineering **22**, accepted for publication (2012)

G.A. Lebedev, B. Viala, T. Lafont, D.I. Zakharov, O. Cugat, and J. Delamare, **Converse magneto-electric effect dependence with CoFeB composition in ferromagnetic/piezoelectric composites**, Journal of Applied Physics **111**, 07C725 (2012)

G.A. Lebedev, B. Viala, T. Lafont, D.I. Zakharov, O. Cugat, and J. Delamare, ***Electric field controlled magnetization rotation in exchange biased antiferromagnetic / ferromagnetic / piezoelectric composites***, Applied Physics Letters **99**, 232502 (2011)

G.A. Lebedev, B. Viala, J. Delamare, O. Cugat, ***Voltage-Controlled Uniaxial Magnetic Anisotropy in Soft Magnetostrictive Ferromagnetic Thin Films***, IEEE Transactions on Magnetics, Vol. **47**, №. 10 (2011)

## Présentations invitées

**Joint European Magnetic Symposia JEMS**, Parma, Italy, September 2012

*Direct observation of magnetic easy axis rotation in integrated magnetoelectric composites by Kerr microscopy*

G.A. Lebedev\*, B. Viala, J. Delamare, O. Cugat, M. Audoin

## Communications orales

**11<sup>th</sup> International Workshop on Micro and Nanotechnology for Power generation and Energy Conversion Applications** PowerMEMS, Seoul, Korea, November 2011

*Thermal energy conversion by coupled shape memory and piezoelectric effects*

Dmitry Zakharov\*, Gor Lebedev, Orphee Cugat, Jerome Delamare, Bernard Viala, Thomas Lafont, Leticia Gimeno and Alexander Shelyakov

*Magnetostrictive-piezoelectric composite structures for energy harvesting*

Thomas Lafont\*, L Gimeno, J Delamare, G A Lebedev, D I Zakharov, B Viala, O Cugat, N Galopin, L Garbuio and O Geoffroy

**56<sup>th</sup> Conference on magnetism and Magnetic Materials** MMM, Scottsdale, Arizona, USA, November 2011

*Strain-mediated magnetization rotation in exchange biased antiferromagnetic / ferromagnetic / piezoelectric composites.*

G.A. Lebedev\*, B. Viala, T. Lafont, D.I. Zakharov, O. Cugat, and J. Delamare

*Converse magneto-electric effect dependence with CoFeB composition in ferromagnetic/piezoelectric composites*

G.A. Lebedev\*, B. Viala, T. Lafont, D.I. Zakharov, O. Cugat, and J. Delamare

**Asia International Magnetics Conference InterMag 2011**, Taipei, Taiwan, April 2011  
*Voltage-controlled magnetic anisotropy in soft magnetostrictive ferromagnetic thin films.*

G.A. Lebedev\*, B. Viala, J. Delamare, O. Cugat

## **Posters**

**Colloque National MECAMAT**, Aussois, France, January 2012

*Thermal energy conversion by coupled shape memory and piezoelectric effects*

Dmitry Zakharov\*, Gor Lebedev, Orphee Cugat, Jerome Delamare, Bernard Viala,  
Thomas Lafont

**16th International Conference on Solid State Sensors Actuators and Microsystems**

Transducers'11, Beijin, China, June 2011

*Thermal energy harvesting using shape memory/piezoelectric composites*

G.A. Lebedev\*; B.V. Gusalov; B. Viala; J. Delamare; O. Cugat; T. Lafont and D.I.  
Zakharov





## Résumé

---

Ce travail de thèse porte sur l'étude de composites magnétoélectriques laminaires dans le but de réaliser des dispositifs innovants intégrés sur silicium tel que l'inductance RF variable. Grâce au couplage mécanique entre des couches adjacentes magnétostrictive ultra douce et piézoélectrique, il est possible d'obtenir un couplage magnétoélectrique indirect qui est supérieur de plusieurs ordres de grandeur à celui des matériaux multiferroïques naturels. Dans un premier temps, nous avons utilisé l'approche phénoménologique basée sur les énergies pour décrire le panorama des effets attendus dans des composites magnétoélectriques laminaires (multicouches). Ensuite, des composites magnétoélectriques macroscopiques à base de substrats piézoélectriques de type MFC et de couches minces de FeCoB ont été réalisés. L'étude du couplage magnétoélectrique en fonction de la composition de FeCoB a permis de déterminer les propriétés clés des matériaux, notamment le rapport  $\lambda_s/M_s$ , qui sont essentielles pour obtenir un effet magnétoélectrique élevé. Un coefficient magnétoélectrique record de  $250 \text{ V}\cdot\text{cm}^{-1}\text{Oe}^{-1}$  a été obtenu. Par ailleurs, un microscope à effet Kerr a été spécialement développé pour pouvoir observer de manière quasi-instantanée la modification de la structure en domaines sous l'effet de la tension électrique dans ces composites. Pour la première fois, l'observation directe de la rotation de l'axe facile d'aimantation sous commande électrique a été réalisée. La deuxième partie de ce manuscrit est consacrée à la conception, simulation, fabrication et caractérisation d'un dispositif MEMS hybride d'inductance variable intégrée. Ce dispositif exploite l'effet magnétoélectrique indirect entre un élément moteur en PZT (sol gel) et un élément inductif à base de FeCoB. Etant donné le caractère multiphysique hors norme de ce dispositif, un ensemble de tests électriques, mécaniques, optiques et magnétiques a été déployé tout au long de la fabrication. Les résultats concluent à une preuve de concept partiellement fonctionnelle en raison principalement d'une mauvaise gestion des contraintes internes liées à la fabrication. Les pistes d'amélioration aux niveaux du design, des matériaux et des procédés sont identifiées.

## Abstract

---

This work is focused on the study of laminated magnetoelectric composites aiming at the realization of novel components integrated on silicon, such as variable inductors. Thanks to the mechanical coupling between two adjacent layers of ultra-soft magnetostrictive and piezoelectric materials it is possible to obtain an indirect magnetoelectric effect which is several orders of magnitude higher than in natural multiferroics. Firstly, we used an energy-based phenomenological approach to describe a range of expected effects in such laminated magnetoelectric composites. Thereupon, macroscopic magnetoelectric composites based on piezoelectric MFC substrates and magnetostrictive thin films of FeCoB were realized. The study of the magnetoelectric coupling vs. FeCoB composition leads to the identification of the key material parameters, such as  $\lambda_s/M_s$ , that are essential for high magnetoelectric effect. A record magnetoelectric coefficient of  $250 \text{ V}\cdot\text{cm}^{-1}\text{Oe}^{-1}$  is obtained. In parallel, a specific Kerr effect microscope devoted to live observation of the magnetic domains change vs. applied electrical field was developed. For the first time, direct observation of the magnetic easy-axis rotation with voltage in such composites is reported. The second part of this work concerns the design, simulation, fabrication and characterization of a hybrid MEMS variable inductor. This device exploits the indirect magnetoelectric effect between a PZT sol gel driving element and a FeCoB-based inductive element. The unusual multi-physics nature of the device prompted us to deploy a set of electrical, mechanical, optical and magnetic tests throughout the manufacturing. The results conclude with partially functional proof of concept, mainly due to the lack of management of internal stress during the fabrication. Areas for improvement of design, materials and process are identified.