

UNIVERSITÉ DE NANTES  
Ecole polytechnique de l'Université de Nantes

---

ÉCOLE DOCTORALE  
MATIERE, MOLECULES, MATERIAUX EN PAYS DE LA LOIRE

Année : 2013

N° attribué par la bibliothèque

--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--	--

# Nouveaux outils expérimentaux pour l'analyse des propriétés thermiques de nanostructures élaborées par procédés plasma

---

THÈSE DE DOCTORAT

Discipline : Sciences des Matériaux

Spécialité : Ingénierie des matériaux

*Présentée  
et soutenue publiquement par*

**Boubakeur Essedik BELKERK**

Le 12 Février 2013, devant le jury ci-dessous

Rapporteurs Bertrand Lenoir, *Professeur, IJL, université de Lorraine*  
Nadjib Semmar, *Professeur, GREMI, université d'Orléans*

Examineurs Michel Garcia, Docteur ingénieur, ALCATEL THALES III-V Lab  
Tayeb Mohammed-Brahim, *Professeur, IETR, Université de Rennes 1*  
Salah Sahli, *Professeur, LMI, Université de Constantine 1*  
Yves Scudeller, *Professeur, IMN, Université de Nantes*  
Mohamed Abdou Djouadi, *Professeur, IMN, Université de Nantes*  
Michèle Carette, Maître de conférence, IMN, Université de Nantes

*Directeur de thèse : Yves SCUDELLER, IMN, Université de Nantes*

*Encadrants : Michèle CARETTE et Mohamed-Abdou DJOUADI, IMN, Université de Nantes*

## **Résumé et mots-clés**

### **Nouveaux outils expérimentaux pour l'analyse des propriétés thermiques de nanostructures élaborées par procédés plasma**

Ce travail de thèse vise le développement de nouveaux outils expérimentaux pour l'analyse des propriétés thermiques des couches minces. Des sondes thermiques originales ont été mises en point. Ces sondes permettent d'analyser des évolutions de température sur des échelles de temps courtes [100 ns – 10 µs]. Des modèles de diffusion thermique ont été élaborés pour analyser les signaux de température et estimer les propriétés thermiques des matériaux. Des études expérimentales ont été menées sur des films de nitrure d'aluminium et des nanoparois de carbone élaborés par procédés plasmas. Les propriétés thermiques de ces matériaux sont en bon accord avec leurs caractéristiques structurales déterminées par diffraction aux rayons-X, microscopie électronique à balayage et à transmission.

**Mots-clés:** Propriétés thermiques, Matériaux en couches minces, Procédés plasmas, Nitrure d'aluminium, Nanoparois de carbone, Technique transitoire à ruban chaud.

## **Abstract and keywords**

### **New experimental techniques for measuring thermal properties of thin-films and nanostructures produced by plasma deposition**

New experimental techniques for measuring thermal properties of thin films and nanostructures are presented. Probes have been designed and fabricated for detecting ultra-fast transient temperature responses in the time window [100 ns - 10 µs] subsequent to electrical or optical pulses. Thermal transient models have been developed for estimating the thermal properties of materials by fitting the temperature signals. Experimental studies were carried on aluminum nitride and carbon nanowalls produced by plasma techniques. The thermal properties of those materials were found well correlated with the structural features of the films analyzed by X-ray diffraction, scanning electron microscopy and transmission electron microscopy.

**Keywords:** thermal properties, thin film materials, plasma techniques, Aluminum nitride, carbon nanowalls, transient hot strip technique.

*A mes parents,*

*Mes frères,*

*Mes sœurs.*

# *Remerciements*

Ce travail de thèse a été réalisé au sein de l'équipe Ingénierie des Matériaux et Métallurgie (ID2M) de l'institut des matériaux Jean Rouxel (IMN). Je tiens tout d'abord à remercier le directeur de l'IMN monsieur Guy Ouvrard et l'ensemble de l'équipe pour son accueil.

Je remercie le gouvernement algérien pour le support financier de mes études en France et le gouvernement français pour l'accueil au sein de l'un de plus grand laboratoire de recherche.

Je commencerai naturellement mon directeur de thèse Yves Scudeller, Professeur de l'Université de Nantes. Je le remercie pour sa grande disponibilité et pour la qualité de ses conseils scientifiques qui m'ont à chaque fois apporté la base et la motivation nécessaire à l'avancement de mes travaux de recherche.

Je remercie de la même façon mes deux encadrants de thèse ; Mohammed-Abdou Djoudi, Professeur de l'Université de Nantes, et Michèle Carette, Maître de Conférence de l'Université de Nantes, pour le suivi de mon travail et pour leurs conseils et critiques sur mon travail.

Je remercie Tayeb Mohammed-Brahim, Professeur de l'Université de Rennes 1, de m'avoir fait l'honneur de présider mon jury de thèse.

Je remercie Bertrand Lenoir et Nadjib Semmar d'avoir accepté d'être les rapporteurs de ce manuscrit ainsi que pour leurs conseils judicieux.

Je remercie Michel Garcia Docteur Ingerieur ALCATEL THALES III-V Lab, et Salah Sahli Professeur de l'Université de Constantine 1, d'avoir accepté d'être dans mon jury de thèse et pour l'intérêt porté à mes travaux de thèse.

Je tiens aussi à remercier toutes les personnes qui m'ont aidé pour les différentes caractérisations et réalisations lors de ce travail de thèse :

🚧 Pour les analyses MEB : Yann Borjon-Piron, que je remercie tout particulièrement pour sa disponibilité et son aide précieuse.

✚ Pour l'usinage du système de mesure, masi également pour sa bonne humeur : Fanch Guillou.

✚ Pour La réalisation en salle Blanche et pour le système de commutation : toute l'equipe IETR, en particulier, Sabrina Pavy, François Poulain, Marque Brunet, et Guillaume Lirzin.

Je remercie aussi tous mes potes, tous les thésards, les post-docs et les permanents de l'IMN que j'ai eu l'occasion de côtoyer lors de ces années de thèse et qui participent à l'ambiance générale du labo, qui se veut très conviviale et sympathique.

Enfin, je reviens à la source, mes parents « *Les Auteurs de l'Auteur* ». Aucune formulation et aucun mot ne pourraient exprimer l'étendue de la gratitude que j'ai envers eux. Rien ne me permettra de vous rendre tout ce que vous m'avez donné. J'espère uniquement vous procurer un peu de fierté et de satisfaction. Merci de m'avoir donnés l'importance de l'éducation et du savoir.



# Table des matières

Introduction générale.....	1
1. Chapitre 1 : Contexte et généralités.....	5
1.1. INTRODUCTION.....	5
1.2. CONTEXTE DE L'ÉTUDE.....	5
1.3. MECANISMES DE TRANSPORT DE CHALEUR DANS LES MATERIAUX.....	9
1.4. MESURE DES PROPRIETES THERMIQUES DES COUCHES MINCES.....	18
1.4.1. Techniques optiques.....	21
1.4.2. Techniques électriques.....	22
1.4.3. Techniques hybrides.....	25
1.5. REFERENCES.....	28
2. Chapitre 2 : Sondes thermiques et modèles physiques associés.....	33
2.1. INTRODUCTION.....	33
2.2. PRESENTATION DES SONDAS THERMIQUES.....	33
2.2.1. Principe de la mesure.....	33
2.2.2. Description des sondes.....	36
2.3. ETUDE NUMERIQUE DES SONDAS THERMIQUES.....	42
2.3.1. Description du modèle électrothermique.....	42
2.3.2. Résultats.....	43
2.4. DESCRIPTION DES MODELES PHYSIQUES.....	52
2.4.1. Structure des échantillons.....	52
2.4.2. Description des modèles.....	54
2.4.3. Réduction des modèles.....	62
2.5. ANALYSE DE SENSIBILITE DE LA MESURE.....	64
2.6. CONCLUSION.....	70
2.7. REFERENCES.....	71
3. Chapitre 3 : Dispositifs expérimentaux et tests de validation.....	75
3.1. INTRODUCTION.....	75
3.2. FABRICATION DES SONDAS THERMIQUES.....	76
3.3. DESCRIPTION DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX.....	78
3.3.1. Système de protection électromagnétique et thermique.....	79
3.3.2. Système électronique de commutation rapide.....	80
3.3.3. Dispositif expérimental électro-optique.....	81
3.4. OPTIMISATION DES DISPOSITIFS EXPERIMENTAUX.....	82
3.4.1. Étalonnage.....	83

3.4.2.	Détermination de la tension de déséquilibre initial .....	84
3.4.3.	Optimisation du système de commutation rapide.....	86
3.5.	TESTS DE VALIDATION.....	89
3.5.1.	Tests avec sondes 20 µm x 200 µm .....	89
3.5.2.	Tests avec sondes miniaturisées .....	92
3.5.3.	Tests sous environnement à température variable .....	94
3.5.4.	Tests électro-optiques.....	95
3.6.	CONCLUSION.....	97
3.7.	REFERENCE .....	98
4.	Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas.....	101
4.1.	INTRODUCTION.....	101
4.2.	PROPRIETES THERMIQUES DU NITRURE D'ALUMINIUM ELABORE PAR PULVERISATION MAGNETRON .....	102
4.2.1.	Effet des conditions d'élaboration .....	103
4.2.2.	Effet de la nature du substrat.....	110
4.2.3.	Analyse comparative des résultats.....	117
4.3.	ETUDE DES PROPRIETES THERMIQUES DE NANOSTRUCTURES DE CARBONE .....	122
4.3.1.	Mise au point de la technique de mesure .....	122
4.3.2.	Principe de la technique .....	123
4.3.3.	Caractérisation thermique de nanotubes de carbone .....	128
4.3.4.	Caractérisation thermique de parois nanométriques de carbone .....	130
4.4.	CONCLUSION.....	137
4.5.	REFERENCES.....	138
5.	Conclusion et perspectives.....	143
6.	Annexes .....	149
6.1.	ANNEXE I : TECHNIQUE DE CARACTERISATION STRUCTURALE .....	150
6.1.1.	Microscope électronique à balayage (MEB).....	150
6.1.2.	Microscope électronique à transmission (MET).....	150
6.1.3.	Diffraction des rayons X (DRX).....	151
6.2.	ANNEXE II : THEORIE ASSOCIEE AU PONT DE WHEATSTONE.....	154
6.2.1.	Coefficients de température des résistances métalliques en couches minces .....	154
6.2.2.	Théorie du pont de Wheatstone .....	156
6.2.3.	Méthode de quadripôle thermique.....	158
6.2.4.	Transformée de Fourier finie.....	164
6.2.5.	Calcul numérique de la transformée inverse de Laplace .....	165
6.2.6.	Modèle simplifié pour un substrat semi infini.....	166
6.2.7.	Référence II : .....	170



6.3.	ANNEXE III : REALISATION DES MICRO-SONDES .....	171
6.3.1.	La lithographie.....	171
6.3.2.	THALES fabrication du microcapteur.....	175
6.3.3.	Les différentes générations des masques .....	177
6.4.	ANNEXE IV : INFLUENCE DE STRUCTURE DE L'ALN ET DE NANOSTRUCTURES DE CARBONE SUR LES MESURES.....	179
6.4.1.	Validité de la notion de $k_i$ pour un film de structure hétérogène .....	179
6.4.2.	Calcul de la résistance thermique de constriction entre nanostructure et substrat.....	184
6.4.3.	Référence IV : .....	185

## Liste des figures

Figure 1- 1. Conductivité thermique de différents matériaux semi-conducteurs utilisés en électronique de puissance.....	8
Figure 1- 2. Gestion thermique des Transistors à Haute Mobilité Electronique (source Alcatel-Thales III-V lab). L'évacuation de chaleur se fait vers le substrat, entre le canal et la source froide du transistor et au travers des couches de passivation primaire et secondaire (figure de droite). .....	9
Figure 1- 3. Courbe de dispersion des phonons dans la variété Wurtzite du GaN. Les modes optiques, actifs en Raman sont marqués [10]......	12
Figure 1- 4. Mécanisme de collision des phonons .....	14
Figure 1- 5. Dépendance théorique de la conductivité thermique d'AlN à la séparation d'interface (par exemple, la taille des grains ou de l'épaisseur du film) [13]......	15
Figure 1- 6. Effet du taux d'impuretés sur la conductivité thermique de l'AlN massif [13]......	16
Figure 1- 7. Principe général d'une mesure de conductivité thermique d'une couche mince dans les directions perpendiculaire et parallèle au plan du substrat.....	19
Figure 1- 8. Stratégies de mesure de la conductivité thermique ou de la diffusivité thermique des couches minces (a) dans la direction transversale au plan. (b) parallèlement au plan.....	20
Figure 1- 9. Schéma de la technique de photoréflexion. Les changements de température à la surface sont mesurés par la variation du coefficient de réflexion mesuré par le laser [29]. .....	21
Figure 1- 10. (a) Technique pyrométrie infrarouge rapide et (b) Exemple de signal de mesure obtenu avec des nanotubes de carbone [25-28].....	22

Figure 1- 11. Géométrie de la méthode  $3\omega$  à quatre contacts (a), deux contacts (b), le système de mesure (c), et un exemple de mesure sur 500 nm  $\text{SiO}_2$  (d). Une bande métallique, ici en noir, sert à la fois d'élément chauffant et de thermomètre..... 23

Figure 1- 12. Phase et amplitude du signal normalisé obtenu avec la technique calorimétrie et modulé en fonction du déplacement relatif de la source optique par rapport au thermocouple, pour un superréseau GaAs/AlAs [32]. ..... 26

Figure 1- 13. (a) Représentation de la technique photo-thermique et (b) un exemple de signal de mesure sur l'oxyde de zirconium ( $\text{ZrO}_2$ ) [35]. ..... 26

Figure 1- 14. (a) Représentation de la technique hybride  $3\omega$  et imagerie de thermo-réflexion, et (b) Exemple de signal obtenu sur InGaAs [38]. ..... 27

Figure 2- 1. Principe de la technique de mesure des propriétés thermiques des couches minces. .... 34

Figure 2- 2. Schéma des sondes thermiques constituées de quatre résistances thermoélectriques déposées en couches minces (résistances métalliques) sur l'échantillon et configurées en pont de Wheatstone. Une tension d'alimentation  $U$  est appliquée entre C et D. L'échauffement des résistances du pont consécutif à l'application de  $U$  est à l'origine du signal de sortie entre A-B. .... 35

Figure 2- 3. Schéma d'une sonde thermique à pont chaud reportée sur un film déposé sur un substrat. La sonde est constituée de quatre résistances électriques thermosensibles déposées en couches minces de quelques 10 nm d'épaisseur, et configurées en pont de Wheatstone..... 37

Figure 2- 4. Différents types de sondes thermiques à pont intégré. (a) sonde avec une micro-résistance et trois macro-résistances. (b) Sonde avec deux micro-résistances et deux macro-résistances. (c) Sonde avec trois micro-résistances et une macro-résistance. L'aire de la surface des macro-résistances a été choisie 100 fois supérieure à celle des micro-résistances (Rapport longueur/largeur des microrésistance : 10). Le signal d'entrée est appliqué entre les bornes C et D. Le signal de sortie est détecté entre les bornes A et B..... 38

Figure 2- 5. Représentation schématique des différents types de sondes thermiques à pont intégré (a) sonde avec une micro-résistance et trois macro-résistances. (b) Sonde avec deux micro-résistances et deux macro-résistances. (c) Sonde avec trois micro-résistances et une macro-résistance..... 39

Figure 2- 6. Valeurs du coefficient  $\tau$  en fonction de l'échauffement  $\Delta T_m$  des micro-résistances pour les trois types de sondes représentées sur la Figure 2-4. On a considéré un coefficient de température des résistances égal à  $2 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  et un échauffement des macro-résistances égal à  $\Delta T_M = 1 \text{ }^\circ\text{C}$ . La courbe continue noire correspond à une sonde avec une micro-résistance et trois macro-résistances (Figure 2-4a, la gris clair à une sonde avec deux micro-résistances et (Figure 2-4b) et la gris foncé à une sonde avec trois micro-résistances (Figure 2-4c). ..... 41

Figure 2- 7. Maillages utilisés pour la simulation électrothermique des sondes avec une (a), deux (b) et trois micro-résistances (c). Les maillages 2D situés à gauche ont été utilisés pour le calcul des champs de potentiel électrique. Les maillages 3D situés à droite ont été utilisés pour le calcul des champs de température dans le système sonde-échantillon..... 44

Figure 2- 8. Résultats de simulation électrothermique par les éléments finis des sondes à une (a), deux (b) et trois micro-résistances (c). Les figures de gauche donnent les champs de potentiel électrique. Les figures de droite donnent les champs de température ..... 45

Figure 2- 9. Densité volumique de puissance et distribution de température dans une micro-résistance (a) distribution de puissance (b) distribution de température..... 46

Figure 2- 10. Distributions spatio-temporelles de température calculées pour une micro-résistance de  $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$  et une macro-résistance de  $200 \mu\text{m} \times 2000 \mu\text{m}$  déposées sur silicium et dissipant une puissance de  $0,35\text{W}$  par résistance. (a) Evolution temporelle de la température de la micro-résistance (courbe continue noire) et de la macro-résistance (courbe continue rouge). (b) Distribution de température selon la largeur des résistances à l'instant  $t = 40 \mu\text{s}$ . La courbe continue noire est relative à la micro-résistance. Celle en bleue est relative à la macro-résistance..... 46

**Figure 2- 11. Champ de température autour d'une micro-résistance de  $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$  entre  $100 \text{ ns}$  et  $40 \mu\text{s}$ . ..... 47**

Figure 2- 12. Evolution de la température moyenne d'une micro-résistance calculée sans tenir compte de l'ensemble du motif de la sonde (courbe continue rouge) et par le modèle électrothermique avec une description fine de la sonde (courbe continue noire). Les petites différences sont liées à l'existence de concentration du courant aux extrémités de la micro-résistance. .... 47

Figure 2- 13. Signal de température de sonde consécutive à une brusque alimentation électrique sur différentes structures film-substrat, (a) Film de  $1\mu\text{m}$  d'épaisseur de conductivité thermique égale à  $10\text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  déposé sur des substrats de silicium (courbe noire), de saphir (courbe rouge), et de silice (courbe bleue). (b) Films de  $1\mu\text{m}$  d'épaisseur de différentes conductivités thermiques déposés sur du silicium. .... 48

Figure 2- 14. Comparaison entre la tension de sortie du pont simple pour (1) une grande taille (avec microruban de  $20\mu\text{m} \times 200\mu\text{m}$ ) et (2) une petite taille (avec microruban de  $2\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$ ). Avec (a) la distribution 3D de la température, (b) la distribution 2D de la température et (c) la densité de puissance générée par effet Joule et la densité de courant électrique. .... 50

Figure 2- 15. Signaux de sortie d'une sonde thermique avec une micro-résistance de différentes dimensions. La courbe continue noire est relative à une micro-résistance de  $20\mu\text{m} \times 200\mu\text{m}$ . La courbe continue grise est relative à une micro-résistance de  $2\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$ . .. 51

Figure 2- 16. Signaux de sortie d'une sonde thermique avec une micro-résistance reportée sur un matériau isotrope (courbes continues grises) et anisotrope (courbes continues noires). (a) micro-résistance  $20\mu\text{m} \times 200\mu\text{m}$ . (b) micro-résistance  $2\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$ . .... 51

Figure 2- 17. Caractéristiques géométriques d'une structure sonde-substrat. .... 53

Figure 2- 18. Structures prises en compte dans les modèles physiques correspondantes à différentes implantations de sonde, (a) sonde sur substrat (b) sonde sur une couche mince de matériau déposée sur substrat, (c) sonde sur plusieurs couches minces déposées sur substrat, (d) sonde enterrée dans une structure multi-couches déposées sur substrat. .... 53

Figure 2- 19. Modèle de sonde enterrée. La structure multicouche est subdivisée en deux sous-structures, l'une correspondant à l'ensemble des couches situées au dessus de la sonde et l'autre à l'ensemble des couches sous la sonde ..... 59

Figure 2- 20. Modèle de diffusion thermique 1D, 2D et 3D par éléments finis (COMSOL) ..... 61

Figure 2- 21. Comparaison entre l'évolution de la température moyenne pour un microruban ( $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$ ) sur un substrat  $\text{SiO}_2$ , avec les modèles semi-analytiques proposés et celle obtenue avec les éléments finis pour les modèles de diffusion thermiques 1D, 2D et 3D. .... 61

Figure 2- 22. Signaux de température calculés pour une micro-résistance de  $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$  avec les modèles 2D, 3D, et film 1D pour des structures constituées d'un film de  $1\ \mu\text{m}$  déposé sur du silicium. La densité de puissance appliquée sur la résistance est  $2 \times 10^8\ \text{W.m}^{-2}$  (puissance 0,8 W). (a) film amorphe de conductivité thermique de  $1\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et (b) film cristallin de conductivité thermique de  $100\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  ..... 63

Figure 2- 23. (a) Evolution de la température de la sonde lorsque le film est déposé sur du silicium (courbe noire) et un substrat infiniment conducteur (courbe rouge). La courbe rouge décrit l'évolution de la température de surface du film par rapport au substrat. (b) Différence des évolutions de température de surface avec et sans film. Cette différence est appelée contraste thermique..... 66

Figure 2- 24. Evolution des coefficients de sensibilité à différents paramètres pour une micro-résistance de  $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$  sur couche mince anisotrope de  $1\ \mu\text{m}$  (conductivité selon z :  $10\ \text{W. m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  selon x et y:  $8\ \text{W. m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , capacité calorifique de  $2,7 \times 10^6\ \text{J. K}^{-1}\ \text{m}^{-3}$ ) déposée sur silicium (a) entre  $10^{-9}$  et  $10^{-3}$  seconde (b) pour les temps jusque  $10\ \mu\text{s}$ .  $k_z^f$  : conductivité du film suivant (oz),  $k_x^f$  : conductivité du film suivant (ox),  $C_p.\rho^f$  la capacité calorifique du film,  $e^f$  épaisseur du film,  $k^s$  conductivité thermique du silicium, et  $C_p.\rho^s$  la capacité calorifique du silicium ..... 67

Figure 2- 25. Effet de la taille des micro-résistances sur les coefficients de sensibilités.  $k_z^f$  est la conductivité du film suivant (oz),  $k_x^f$  est la conductivité du film suivant (ox), et  $C_p.\rho$  la capacité calorifique du film ..... 68

Figure 2- 26. Effet de la miniaturisation des sondes thermiques sur le rapport 'impédance thermique totale/ impédance du substrat ..... 69

Figure 2- 27. Effet de la miniaturisation des sondes thermiques sur l'impédance thermique ..... 69

Figure 3- 1. Principe de la photolithographie sur une résine positive.....	77
Figure 3- 2. Déroulement d'une photolithogravure .....	77
Figure 3- 3. Déroulement d'un lift off .....	77
Figure 3- 4. Vue de dessus d'une micro-résistance de 5 $\mu\text{m}$ x 50 $\mu\text{m}$ réalisée par photo-lithogravure. A noter : non-homogénéité de la micro-résistance au niveau des deux plots de contact .....	78
Figure 3- 5. Fissuration de la micro-résistance après alimentation électrique liée à des concentrations de courant autour de défauts .....	78
Figure 3- 6. Vue de dessus d'une micro-résistance de 2 $\mu\text{m}$ x 20 $\mu\text{m}$ réalisée par Lift-off.....	78
Figure 3- 7. Dispositif expérimental du système de mesures, avec deux types d'excitation (1) électrique en utilisant une forte densité de courant au niveau de la micro-résistance et (2) optique en utilisant une faible densité de courant au niveau de la micro-résistance.....	79
Figure 3- 8. (a) Schéma du boîtier isotherme et du système de stabilisation thermique développé et (b) réalisation du dispositif expérimental sur lequel l'échantillon est monté .....	80
Figure 3- 9. Signal de température de la résistance électrique thermosensible consécutif à l'absorption d'une impulsion laser (largeur à mi-hauteur 15 ns, énergie de l'impulsion ajustable entre 0 et 0,4 $\text{J}\cdot\text{cm}^{-2}$ ). La sonde est alimentée de manière continue avec une tension U constante .....	81
Figure 3- 10. Dispositif expérimental en mode électro-optique (a) Boîtier de protection électromagnétique isotherme incluant une macro-résistance déposée sur un échantillon et associée à des résistances à faibles coefficients de température fonctionnant jusqu'à des fréquences de 400 MHz. (b) Masque métallique utilisé pour le dépôt des macro-résistances métalliques .....	82

Figure 3- 11. Courbe d'étalonnage d'une sonde à micro-résistance en Cr/Au de 20 $\mu\text{m}$ x 200 $\mu\text{m}$ entre 25 $^{\circ}\text{C}$ et 40 $^{\circ}\text{C}$ . Le coefficient de température de la résistance est de $2 \times 10^{-3} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ .....	83
Figure 3- 12. Signal thermique d'un pont initialement déséquilibré avec (a) $V_0$ négatif et (b) $V_0$ positif.....	85
Figure 3- 13. Résistances électriques apparentes $R_a, R_b, R_c, R_d$ mesurées entre les bornes d'une sonde à une micro-résistance afin de déterminer les valeurs des résistances $R_1, R_2, R_3, R_4$ .....	85
Figure 3- 14. Exemple de signaux expérimentaux illustrant l'effet du système de commutation rapide pour une durée d'impulsion de 5 $\mu\text{s}$ . Courbes noires : signal d'entrée U ; courbes bleues : signal de sortie V. (a) Signaux U et V sur une fenêtre de temps de 12 $\mu\text{s}$ (b) Détail des signaux U et V pour la première microseconde mettant en évidence la composante non-thermique du signal. Celle-ci est une oscillation amortie.....	86
Figure 3- 15. Signal d'entrée U(t) issus des cartes de commutation rapide de première (courbe noire), deuxième (courbe rouge) et troisième génération(courbe bleue) développées pour l'alimentation des sondes thermiques.....	87
Figure 3- 16. Système de commutation rapide de deuxième génération utilisant un driver type TC4426A [2] commandé par un générateur d'impulsion et pilotant un transistor monté en push-pull type IRF7389 [3].....	88
Figure 3- 17. Système de commutation rapide de troisième génération utilisant un composant DEIC 420 constitué d'un driver et un transistor monté en push-pull.....	88
Figure 3- 18. Evolution du signal de sortie entre 0-10 $\mu\text{s}$ mesuré avec une sonde Cr/Au de 20 $\mu\text{m}$ x 200 $\mu\text{m}$ déposée sur silicium (courbe noire) et calculé avec $k = 145 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ (courbe rouge). En encart : écart entre le signal mesuré et le signal calculé .....	90
Figure 3- 19. (a) Evolution du signal de sortie entre 0-10 $\mu\text{s}$ mesuré avec une sonde Cr/Au de 20 $\mu\text{m}$ x 200 $\mu\text{m}$ déposée sur 500 nm de $\text{SiO}_2 / \text{Si}$ (courbe noire) et calculé avec $k = 1,28 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ , et $C_p \cdot \rho = 1,58 \times 10^6 \text{ J}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$ , (courbe rouge) (b) courbe d'étalonnage de la micro-résistance, coefficient de température $\beta = 2.2 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ , et (c) Evolution des coefficients de sensibilité à k (courbe noire) et $C_p \cdot \rho$ (courbe rouge). .....	91



Figure 3- 20. (a) Evolution du signal de sortie entre 0-10  $\mu\text{s}$  mesuré avec une sonde Cr/Au à deux micro-résistances de  $10\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$  déposée sur 1200 nm de  $\text{SiO}_2 / \text{Si}$  (courbe noire) et calculé avec  $k = 1,3\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , et  $\text{Cp}.\rho = 1.6 \times 10^6\ \text{J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  (courbe rouge). (b) Forme de la micro-sonde utilisée. (c) Courbe d'étalonnage résistance-température de la sonde ..... 92

Figure 3- 21. (a) Signal mesuré avec une micro-résistance Au-Cr de  $3\ \mu\text{m} \times 30\ \mu\text{m}$  sur 1200 nm de  $\text{SiO}_2$  sur Si entre 200 ns et 10  $\mu\text{s}$  (courbe noire) et signal calculé avec  $k_x \approx 1,32\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $k_z = 1,3\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $\text{Cp}.\rho = 1,6 \times 10^6\ \text{J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ .(courbe rouge). (b) Coefficients de sensibilité aux conductivités thermiques selon x et z (k) et de la capacité calorifique ( $\text{Cp}.\rho$ ) ..... 93

Figure 3- 22. Signal de sortie V mesuré avec une sonde à deux micro-résistances Cr-Au de  $10\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$  reportée sur 1200 nm - $\text{SiO}_2/\text{Si}$  à 300, 353, 383, 423, et 443 K. Toutes les mesures sont effectuées à la même tension d'entrée U. La largeur d'impulsions est de 5  $\mu\text{s}$  ..... 94

Figure 3- 23. Propriétés thermiques mesurées sur 1200 nm de  $\text{SiO}_2$  thermique en fonction de la température. (a) comparaison des valeurs expérimentales avec celles de la littérature. (b) variation de la conductivité thermique et de la capacité calorifique en fonction de la température..... 95

Figure 3- 24. Signal de température mesuré sur un film de 2,4  $\mu\text{m}$  de polyimide sur inox 304L avec un macro-ruban en or de 20 mm de longueur, 0,5 mm de largeur, et 100 nm d'épaisseur entre 50 ns et 10  $\mu\text{s}$  (courbe noire) et signal calculé avec  $k=0,21\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $\text{Cp}.\rho = 1,3.10^6\ \text{J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  (courbe rouge)..... 96

Figure 4- 1. Conductivité thermique effective des films AlN I-II-III déposés par pulvérisation magnétron réactive sur Si (100) selon différentes épaisseurs ..... 105

Figure 4- 2. Propriétés structurales des trois groupes d'AlN. (a) structure de l'AlN, (b) observation MEB des faces clivées et (c) observations TEM de l'interface AlN/Si ..... 107

Figure 4- 3. (a) Résistances thermiques d'interface  $G^{-1}$  (résistance totale),  $G^{-1}_a$  (résistance couche amorphe),  $G^{-1}_t$  (résistance couche de transition) en fonction de

l'épaisseur de la couche amorphe des films AlN I, II, III. (b) Conductivité thermique de volume (conductivité intrinsèque) en fonction de la taille des grains pour les films AlN I, II, et III..... 110

Figure 4- 4. Structures utilisées pour étudier l'effet du substrat sur les propriétés thermiques de l'AlN..... 111

Figure 4- 5. (a) Signal de température en fonction du temps et (b) l'intensité du pic (002) en fonction de l'angle Theta, pour 900 nm de l'AlN déposé avec les conditions du groupe III sur Si et SiN/Si..... 113

Figure 4- 6. (a) Conductivité thermique effective et (b) largeur à mi-hauteur du rocking-curve de films AlN déposés avec les conditions III sur silicium (100) et sur le matériau amorphe a-M (SiN-SiO<sub>2</sub>) en fonction de l'épaisseur..... 113

Figure 4- 7. (a) Images MEB, (b) clichés de diffraction d'électrons et (c) images TEM, pour la région massive pour les deux types de substrats ..... 115

Figure 4- 8. Mesures thermiques sur AlN pour un substrat de Si et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> avec la technique optique..... 116

Figure 4- 9. Intensité du signal DRX I(θ-θ) du film AlN déposé sur Silicium (figure de gauche) et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (figure de droite) ..... 116

Figure 4- 10. Variation de la conductivité thermique de la partie massive d'un film d'AlN, (a) en fonction de la taille des grains pour différents taux d'oxygène, (b) en fonction du taux d'oxygène pour différentes valeurs de taille des grains, et (c) en fonction de la taille des grains pour différents taux d'oxygène ..... 119

Figure 4- 11. Variation de la conductivité thermique de l'AlN en fonction de la température ..... 120

Figure 4- 12. Les différentes étapes de fabrication de la structure intégrant le capteur de température Cr/Ti (a) dépôt des films Cr/Ti par pulvérisation cathodique sur substrat de quartz (b) dépôt du film AlN par pulvérisation magnétron (c) croissance des nanostructures de carbone..... 123

Figure 4- 13. (a) Principe de la technique de mesure des propriétés thermiques de nanostructures de carbone utilisant comme source d'excitation une impulsion laser YAG-Nd de 10 ns. Le capteur, Cr/Ti ou Cr/Pt, est déposé sur un substrat de quartz, transparent au laser, puis recouvert d'un film de 200 nm d'AlN avant dépôt des nanostructures de carbone. (b) Exemple de signal de température ..... 124

Figure 4- 14. (a) Vérification de la faisabilité du modèle effectif en simulation par éléments finis, (b) Echantillon sans film de carbone, (c) Echantillon avec nanostructures de carbone (structure réelle) et (d) Echantillon avec nanostructures de carbone (milieu homogène équivalent)..... 127

Figure 4- 15. Signal de température de la structure SiO<sub>2</sub>/Ti/AlN sans les nanostructures de carbone..... 128

Figure 4- 16. Mesures thermiques sur CNTs pour un substrat de AlN/Ti/Si avec (a) le signal thermique et (b) image MEB de la structure ..... 129

Figure 4- 17. Mesure sur un film de CNWs de 8,2 μm d'épaisseur. Les valeurs mesurées:  $k = 47 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $C_p.\rho = 130000 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  ..... 131

Figure 4- 18. Mesure sur un film de CNWs de 14 μm d'épaisseur. Les valeurs mesurées:  $k = 47 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $C_p.\rho = 360000 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  ..... 131

Figure 4- 19. Images MEB des nanoparois de carbone (a) vue de la tranche et (b) vue de dessus ..... 131

Figure 4- 20. Conductivité effective et résistance thermique des films CNWs déposés sur AlN / Ti / SiO<sub>2</sub>. En rouge, les valeurs de conductivité thermique du film poreux et en bleu, celles des parois de carbone (a) Résistance thermique et (b) conductivité thermique en fonction de l'épaisseur..... 132

Figure 4- 21. Représentation schématique d'un film composite formé à partir de nano-parois de carbone et d'une encapsulation avec du nitrure d'aluminium..... 134

Figure 4- 22. Image MEB en coupe d'un film composite carbone/AlN de 1, 5 μm élaboré sur silicium ..... 134

Figure 4- 23. Mesure sur CNWs peu denses encapsulées par l'AlN avec des CNWs (a) signal de mesure (b) coefficient de sensibilité. Valeurs mesurées:  $k = 20 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , et  $C_p.\rho = 1 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  ..... 135

Figure 4- 24. Mesure sur CNWs plus denses encapsulées par l'AlN (a) signal de mesure (b) coefficient de sensibilité. Valeurs mesurées :  $k = 80 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $C_p.\rho = 2,67 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  ..... 135

Figure 4- 25. Comparaison entre les valeurs estimées de la conductivité thermique de CNWs encapsulés par AlN et des CNWs seuls ..... 136

## Liste des tableaux

Tableau 1- 1. Principales caractéristiques physiques des semi-conducteurs utilisés en électronique de puissance .....	7
Tableau 1- 2. Propriétés thermophysiques de différents matériaux.....	18
Tableau 1- 3. Récapitulatif des techniques de mesure de la conductivité thermique des couches minces, classées en fonction du type d'excitation et de détection de température [27-30].....	20
Tableau 2- 1. Paramètres mesurables selon les fenêtres de temps pour une micro-résistance de $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$ .....	67
Tableau 2- 2. Paramètres mesurables selon les fenêtres de temps pour une micro-résistance de $2\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ .....	68
Tableau 3- 1. Propriétés thermiques mesurées par la technique électrique à $20\ ^\circ\text{C}$ de différents matériaux : Si, $\text{SiO}_2/\text{Si}$ , $\text{SiN}/\text{Si}$ et $\text{SiOC}/\text{Si}$ .....	90
Tableau 3- 2. Résultat des tests réalisés sur $1200\text{nm-SiO}_2/\text{Si}$ avec des micro-résistances de différentes dimensions de $2\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ à $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$ .....	93
.....	
Tableau 4- 1. Paramètres de dépôt des trois groupes de films AlN microcristallins déposés à basse température par pulvérisation magnétron réactif DC. ....	104
Tableau 4- 2. Conductivité thermique de volume $k_i$ , résistance thermique d'interface $G^{-1}$ , de la couche amorphe $G^{-1}_a$ et de la couche de transition $G^{-1}_t$ estimées pour les films AlN I, II et III.....	109

Tableau 4- 3. Valeurs de conductivité thermique effective et de Rocking-Curve pour différentes épaisseurs d'AlN déposé avec les conditions III sur Si et SiN/Si.....	114
Tableau 4- 4. Conductivité thermique effective de couches minces de nitrure d'aluminium déposé sur silicium avec différentes techniques et conditions d'élaboration...	121
Tableau 4- 5. Propriétés thermiques des couches constitutives de la structure supportant les nanostructures de carbone .....	128
Tableau 4- 6. Propriétés thermiques des parois de carbone pour une épaisseur inférieur à 4 $\mu\text{m}$ . .....	132
Tableau 4- 7. Les propriétés thermiques calculées et estimées pour les films de CNWs. ....	133



# Introduction générale

Au cours des deux dernières décennies, on observe une augmentation considérable de l'utilisation de couches minces et de matériaux nano-structurés dans les domaines de la microélectronique, de l'optique et de la mécanique. L'élaboration de nouveaux matériaux performants et la connaissance fine de leurs propriétés physiques, et en particulier thermiques, est indispensable au développement de nouvelles applications.

La miniaturisation et l'augmentation de puissance des systèmes électroniques font que la thermique joue un rôle considérable pour la fiabilité et la sécurité. La thermique doit être prise en compte dès la phase de conception de ces systèmes en élaborant des structures et des matériaux performants permettant d'évacuer efficacement la chaleur, d'éviter la création de points chauds et de limiter les contraintes mécaniques induites par la température. Aujourd'hui, il existe un besoin considérable dans le développement de nouveaux matériaux conducteurs de chaleur susceptibles d'être incorporés au plus près des sources de chaleur pour réduire les températures de fonctionnement et accroître ainsi les performances des systèmes. L'utilisation de couches minces de nitrure d'aluminium, de nitrure de bore, de diamant, et de nanostructures et nano-composites à base de nanotubes de carbone, de nitrure de bore, ou de feuillets de graphène, est aujourd'hui envisagée dans de nombreux systèmes de puissance tels que les transistors hyperfréquences, les lasers semi-conducteurs, et les diodes électroluminescentes. La connaissance des propriétés thermiques de ces matériaux élaborés en couches minces est indispensable. Cette connaissance permet d'optimiser la structure de ces matériaux et de trouver les meilleures conditions d'élaboration. On sait en effet que la qualité cristalline des couches minces et des nanostructures, la qualité des interfaces entre les matériaux, jouent un rôle capital sur la grandeur de la conductivité thermique. L'expérience montre des écarts de plusieurs ordres de grandeur entre les matériaux massifs et ceux déposés en couches minces. Il existe un besoin important de disposer de techniques de mesure de conductivité thermique performantes, capables de caractériser des couches minces conductrices de la chaleur citées précédemment. Les vingt dernières années ont vu des développements significatifs des techniques de mesure des propriétés thermiques des couches minces. Cependant des avancées sont nécessaires afin de caractériser de faibles résistances



thermiques, les interfaces entre matériaux, l'anisotropie des films et de mieux comprendre le rôle de la microstructure et du procédé d'élaboration sur ces propriétés. C'est dans ce cadre général que se situe ce travail de thèse.

Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre du projet NanothermIC (Nanostructures orientées pour la gestion thermique haute performance des systèmes de communication intégrés) du programme Nanotechnologies-Nanosciences-Nanosystèmes de l'Agence Nationale de la Recherche (2009-2012). Ce projet, coordonné par l'Institut des Matériaux Jean Rouxel, a été mené en collaboration avec la société Alcatel-Thales III-V lab et le laboratoire GREMI de l'université d'Orléans. Ce projet visait à développer des nanostructures orientées formées à partir de nanotubes-nanofils de carbone encapsulés dans une matrice de nitrure d'aluminium de haute qualité cristalline synthétisée par des méthodes plasma type PVD-PECVD, en vue de la gestion thermique des lasers à cascades quantiques (QCL) et des transistors GaN à haute mobilité (HEMT-GaN).

Le travail de thèse avait pour objectif de développer de nouveaux outils pour la caractérisation des propriétés thermiques de couches minces à haute conductivité, type nitrure d'aluminium et nanostructures de carbone, élaborées par les procédés plasmas. Ces outils devaient permettre de mettre en évidence l'effet des conditions d'élaboration et de la microstructure des matériaux sur leurs propriétés thermiques.

Ce mémoire de thèse s'organise en quatre chapitres :

Le chapitre 1 présente le contexte général de l'étude et des généralités sur les mécanismes de transport à l'origine des propriétés de conduction thermique des matériaux. Il décrit ensuite les principales techniques de caractérisation thermique des couches minces.

Le chapitre 2 est consacré à la description des sondes thermiques et des modèles physiques associés aux techniques de mesure. Ce chapitre montre que la conception des sondes est originale et qu'elle permet de mesurer les propriétés thermiques de couches minces très conductrices de la chaleur avec une bonne précision. Le chapitre donne des résultats de

simulation mettant en évidence les performances des sondes et les fenêtres de temps à considérer dans la mesure. Le chapitre décrit ensuite les modèles physiques nécessaires à la détermination des propriétés thermiques. Ces modèles font appel à la résolution de l'équation de la chaleur par la technique des transformations intégrales.

Le chapitre 3 décrit le procédé de fabrication des sondes et les dispositifs expérimentaux intégrant un système de commutation rapide performant, spécifiquement développé pour générer des impulsions de courant ultra-courtes (largeur entre 50 ns et 100  $\mu$ s, durée de montée de quelques 10 ns). Le chapitre présente également les différentes étapes qui ont permis d'optimiser la mesure. Une alternative de mesure intéressante est décrite, consistant à produire une impulsion laser nanoseconde sur l'élément thermosensible alimentée en courant continu. Le chapitre 3 présente ensuite les résultats de tests de plusieurs types de sondes réalisés sur différents matériaux de référence. L'étude met en évidence que la miniaturisation des sondes accroît la sensibilité de la mesure et permet de déterminer les propriétés de films anisotropes selon deux directions.

Le chapitre 4 présente les résultats des mesures des propriétés thermiques de films de nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborées par des procédés plasmas. Le chapitre présente tout d'abord les résultats mettant en évidence l'effet des conditions de dépôt et de la nature du substrat sur la conductivité thermique et la microstructure du nitrure d'aluminium déposées par pulvérisation magnétron. Le chapitre présente ensuite les résultats obtenus sur des tapis de nanotubes et des nano-parois de carbone déposés par procédés plasmas. Ces mesures ont nécessité la mise au point d'une technique originale utilisant un des dispositifs expérimentaux décrit dans le chapitre 3. Le chapitre 4 présente enfin les résultats obtenus sur des composites formés de nano-parois de carbone encapsulées dans du nitrure d'aluminium.



# 1. Chapitre 1 : Contexte et généralités

## 1.1. Introduction

La température est un des facteurs limitant la performance et la fiabilité des systèmes électroniques. Il est nécessaire de prendre en compte la thermique dès la phase de conception de ces systèmes en élaborant des structures et des matériaux performants capables d'évacuer efficacement la chaleur. Dans ce contexte, la connaissance des propriétés thermiques des matériaux en couches minces et de nanostructures est essentielle. Cette connaissance permet d'optimiser la structure des matériaux et les conditions d'élaboration. On sait en effet que la qualité cristalline des matériaux et des interfaces joue en effet un rôle capital sur la conductivité thermique. L'expérience montre des écarts de plusieurs ordres de grandeur entre les matériaux massifs et ceux déposés en couches minces.

Ce chapitre présente le contexte général de l'étude et des généralités sur les mécanismes de transport à l'origine des propriétés de conduction thermique des matériaux. Il fait ensuite le point sur les principales techniques de caractérisation thermique des couches minces.

## 1.2. Contexte de l'étude

Un composant électronique peut être caractérisé par ses performances en fonctionnement. Celles-ci peuvent être quantifiées par le rendement global du dispositif, lui-même lié aux caractéristiques des différents éléments constitutifs. La performance d'un élément semi-conducteur peut être mesurée par le facteur mixte de Mérite (CFOM : *Combined Figure of Merit, Equation 1-1*), obtenu à partir du facteur de mérite de Johnson [1], du facteur de mérite de Keyes' [2] et du facteur de mérite de Baliga [3]. Le facteur CFOM est donné par :

$$CFOM = \frac{k \cdot \epsilon_0 \cdot \mu \cdot v_s \cdot E_B^2}{(k \cdot \epsilon_0 \cdot \mu \cdot v_s \cdot E_B^2)_{Si}}$$

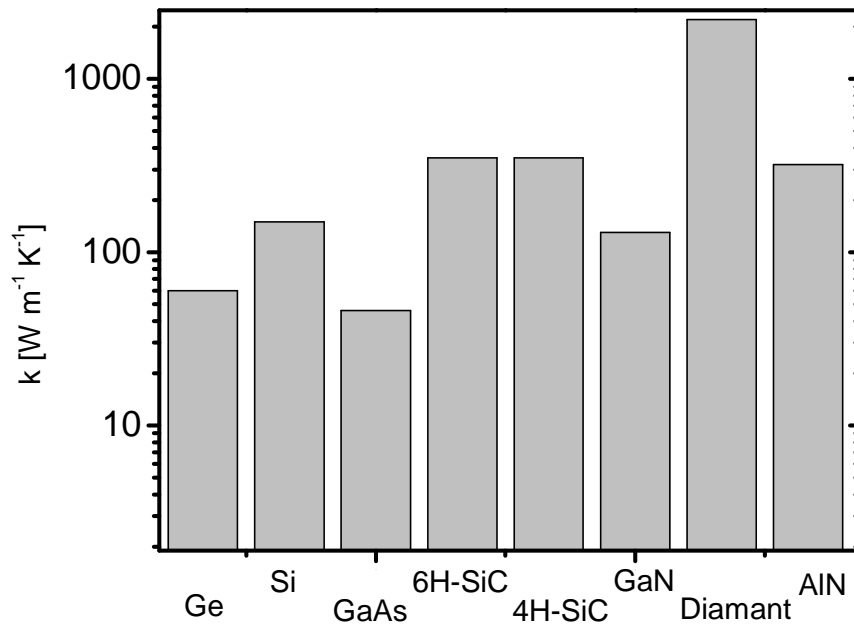
*Equation 1- 1*

$\mu$  est la mobilité à faible champ,  $k$  est la conductivité thermique,  $v_s$  est la vitesse de saturation,  $\epsilon_0$  est la constante diélectrique et  $E_B$  est le champ de claquage. Le Tableau 1- 1 résume les principaux paramètres d'intérêt des semi-conducteurs utilisés au sein des dispositifs électroniques de puissance. Pour obtenir de bonnes performances, il est nécessaire d'avoir un CFOM élevé. Le tableau 1-1 montre que les valeurs calculées de CFOM pour le diamant et l'AlN sont les plus grandes, ce qui indique que les semi-conducteurs à large bande interdite ( $E_i \gg 1$  eV) sont adaptés aux applications de forte puissance à haute fréquence.

**Tableau 1- 1. Principales caractéristiques physiques des semi-conducteurs utilisés en électronique de puissance**

<i>propriétés</i>	<i>Ge</i>	<i>Si</i>	<i>GaAs</i>	<i>6H-SiC</i>	<i>4H-SiC</i>	<i>GaN</i>	<i>Diamant</i>	<i>AlN</i>
<i>Bande interdite [eV]</i>	0.67	1.11	1.43	3.0	3.2	3.45	5.45	6.2
<i>Constant diélectrique</i>	16	11.9	13.1	9.7	10.1	9	5.5	8.6
<i>Champ de claquage [V/cm]</i>	3. $10^5$	3. $10^5$	$4 \cdot 10^5$	25. $10^5$	22. $10^5$	20. $10^5$	$100 \cdot 10^5$	$30 \cdot 10^5$
<i>Vitesse de saturation <math>10^7</math>[cm/s]</i>	0.7	1	2	2	2	2.2	2.7	1.6
<i>Mobilité électrons [cm<sup>2</sup>/Vs]</i>	3900	1350	8500	380	800	1200	2200	3300
<i>Mobilité trous [cm<sup>2</sup>/Vs]</i>	1900	450	400	95	120	850	850	460
<i>Conductivité thermique [W/cmK]</i>	0.6	1.5	0.46	3.5	3.5	1.3	22	3.2
<i>Point de fusion [°C]</i>	938	1420	1240	2830	2830	2500	4000	3200
<i>CFOM</i>	1.08	1	7.55	74.3 8	126. 26	57	33152.21	603.20

La Figure 1- 1 présente un histogramme des conductivités thermiques de quelques matériaux diélectriques couramment utilisés en électronique pour leur conductivité thermique élevée. L'AlN monocristallin possède une conductivité de l'ordre de  $300 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , à 300 K. Il apparaît comme un candidat de choix pour des applications nécessitant une bonne évacuation de la chaleur.

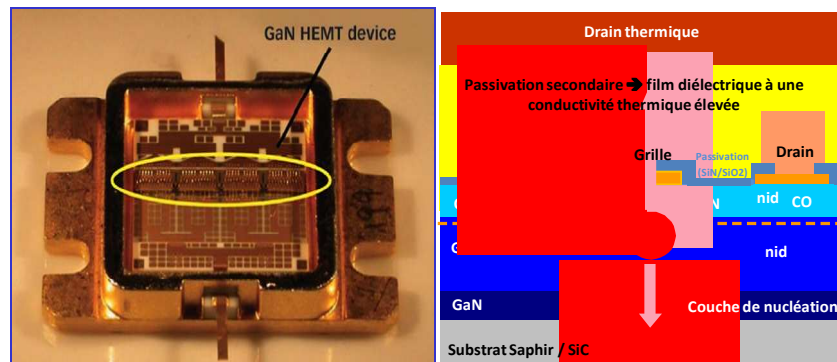


*Figure 1- 1. Conductivité thermique de différents matériaux semi-conducteurs utilisés en électronique de puissance.*

Pour réduire les températures de fonctionnement, on peut intégrer des matériaux bons conducteurs de chaleur au plus proche des zones actives des composants qui constituent des sources de chaleur. Ceci permet d'évacuer efficacement la chaleur, d'éviter la création de points chauds et de réduire les contraintes thermomécaniques. L'utilisation de couches minces de nitrure d'aluminium, de nitrure de bore, de diamant, et des nanostructures et nanocomposites à base de carbone peut être envisagée dans les systèmes de puissance telles que les transistors hyperfréquences ou les lasers semi-conducteurs.

Les méthodes plasmas PVD-PECVD permettent de synthétiser de tels matériaux à basse température en obtenant une bonne qualité cristalline. L'incorporation du nitrure d'aluminium élaboré par procédé magnétron est particulièrement intéressante pour la gestion thermique des lasers à cascades quantiques (QCL) et des transistors GaN à haute mobilité (HEMT-GaN). Dans les transistors HEMT par exemple, la performance en puissance est

limitée par la température. Un transistor HEMT est représenté sur la Figure 1- 2 (source Alcatel-Thales III-V lab). Dans ce transistor l'évacuation de chaleur se fait vers le substrat, entre le canal et la source froide du transistor et au travers des couches de passivation primaire et secondaire. Pour réduire les températures des zones actives du transistor, il est particulièrement intéressant de remplacer les couches de passivation actuelles (SiO<sub>2</sub>, polymère BCB) par du nitrure d'aluminium. Ces couches de nitrure doivent être optimisées en conductivité thermique. Pour cette optimisation, il est important de disposer d'outils de caractérisation thermique. Le développement de ces outils est l'objet de ce travail de thèse.



*Figure 1- 2. Gestion thermique des Transistors à Haute Mobilité Electronique (source Alcatel-Thales III-V lab). L'évacuation de chaleur se fait vers le substrat, entre le canal et la source froide du transistor et au travers des couches de passivation primaire et secondaire (figure de droite).*

### 1.3. Mécanismes de transport de chaleur dans les matériaux

Le transport de chaleur dans les matériaux diélectriques est assuré par les vibrations élastiques du réseau cristallin dont l'amplitude augmente avec la température [4]. La chaleur se transmet de proche en proche dans la direction du gradient de température par propagation des vibrations du réseau [5]. On peut associer cette propagation à un transfert de phonons par paquets d'énergie se déplaçant à travers le matériau. Chaque atome du réseau cristallin est un oscillateur harmonique dont les vibrations peuvent être décrites comme celles d'une onde plane progressive transportant de l'énergie. Pour une chaîne monoatomique, le déplacement de chaque atome par rapport à sa position initiale d'équilibre, est donné par :

$$u = u_0 \cdot \exp(i \cdot \vec{q} \cdot \vec{r} - i \cdot \omega \cdot t) \quad \text{Equation 1- 2}$$

Où  $u_0$  est l'amplitude maximale des vibrations,  $\vec{q}$  est le vecteur d'onde avec  $|q| = 2\pi / \lambda$ ,  $\lambda$  est la longueur d'onde de vibrations,  $\vec{r}$  est le vecteur position d'un atome dans



le réseau atomique, et  $\omega$  la pulsation [6]. L'amplitude, la vitesse, la fréquence et le temps entre les événements de diffusion contribuent au transfert d'énergie par phonons et ainsi à la grandeur de la conductivité thermique du réseau. Des modèles de transport de phonons considérant l'échelle du réseau cristallin ont été développés afin de comprendre les différents mécanismes à l'origine du transfert de chaleur et de la conductivité thermique.

L'énergie de tous les phonons à une température donnée peut être décrite par l'Equation 1-3 :

$$U = \sum_k \sum_p \langle n_{k,p} \rangle \hbar \omega_{k,p} \quad \text{Equation 1-3}$$

$\mathbf{k}$  est le vecteur d'onde et  $\mathbf{p}$  est l'indice de polarisation ; il y a deux modes transverses possibles ainsi qu'un mode longitudinal. Les phonons, ont un spin nul et par conséquent le nombre moyen de phonons dans un état d'énergie est donné par la distribution de Planck,  $\langle n_{k,p} \rangle$ , équation 1-4.

$$\langle n_{k,p} \rangle = \frac{1}{\exp\left(\frac{\hbar \omega_{k,p}}{k_B T}\right) - 1} \quad \text{Equation 1-4}$$

Si l'énergie interne peut être calculée par l'équation 1-3, il est cependant très difficile d'utiliser cette expression car elle nécessite de connaître toutes les polarisations de tous les vecteurs d'onde. Par conséquent, plusieurs hypothèses simplificatrices sont usuellement employées. Elles consistent à remplacer la sommation de tous les vecteurs d'onde par une intégrale, grâce à la définition de la densité d'états  $D(\omega) \cdot d\omega$ . Lors de la substitution, l'expression de l'énergie interne se transforme en l'Equation 1-5.

$$U = \sum_p \int \frac{D(\omega) \cdot \hbar \omega}{\exp\left(\frac{\hbar \omega}{k_B T}\right) - 1} d\omega \quad \text{Equation 1-5}$$

Il existe plusieurs modèles pour l'expression de la densité d'états mais le plus populaire a été développé par Debye [7]. Dans le modèle de Debye, la relation entre la fréquence et le vecteur d'onde est linéaire  $\omega = \nu \cdot k$ ,  $\nu$  est la vitesse de phase. La densité d'états peut être exprimée par l'Equation 1-6 :

$$D(\omega) = \frac{dN}{d\omega} = \frac{V \cdot \omega^2}{2 \cdot \pi^2 v^3} \quad \text{Equation 1- 6}$$

Ici  $V$  est le volume de l'échantillon et  $N$  le nombre de modes de vibration présents. S'il y a  $N$  cellules dans un cristal, le nombre total de modes est aussi représenté par  $N$ . Il existe un point de coupure du vecteur d'onde (Equation 1-7) situé au bord de la zone dite de Brillouin. En considérant le cas général d'une propagation selon trois dimensions, où Debye suppose une zone de Brillouin sphérique dans l'espace des fréquences.

$$K_D = \frac{\omega_D}{v} = \left( \frac{6 \cdot \pi^2 N}{V} \right)^{1/3} \quad \text{Equation 1- 7}$$

L'approximation de Debye donne des résultats en bon accord avec les données expérimentales. En appliquant l'approximation de Debye, l'énergie interne du cristal peut être simplifiée par l'Equation 1-8.

$$U = \sum_p \int_0^{\omega_p} \frac{V}{2 \cdot \pi^3 \cdot v_p^3} \cdot \frac{\hbar \cdot \omega^3}{\exp(\hbar \omega / k_B T) - 1} \cdot d\omega \quad \text{Equation 1- 8}$$

Cette expression qui donne l'énergie interne des mouvements de réseau permet d'établir une expression de la conductivité thermique à partir de la théorie cinétique des gaz sous la forme familière de l'Equation 1-9.

$$k = \frac{1}{3} C_V l \quad \text{Equation 1- 9}$$

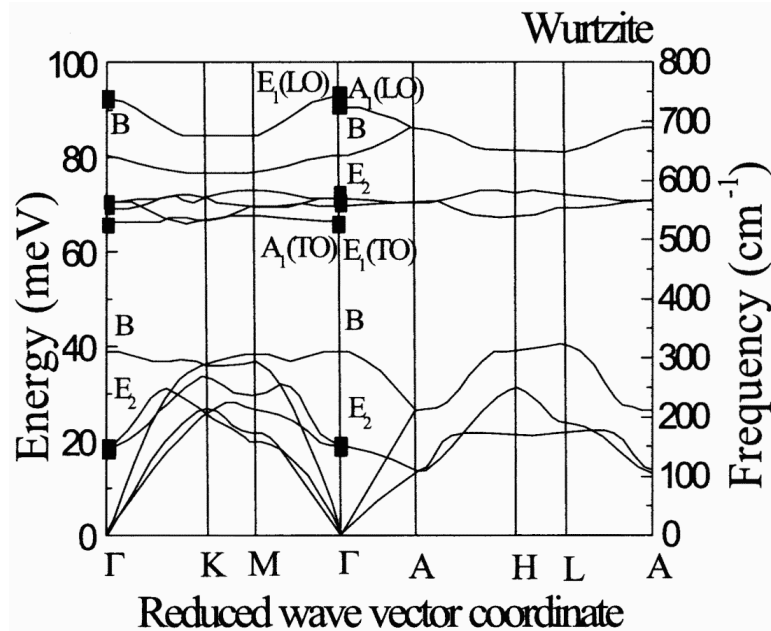
$C_V$  est la chaleur spécifique et  $l = v \cdot \tau$  le libre parcours moyen, où  $\tau$  est le temps entre deux collisions ou temps de relaxation. La définition thermodynamique de la chaleur spécifique,  $C_V$  donne :

$$C_V = \left( \frac{\partial U}{\partial T} \right)_V = \sum_p \frac{V \cdot \hbar^2}{2 \cdot \pi^2 \cdot v_p^3 \cdot k_B \cdot T^2} \int_0^{\omega_p} \frac{\omega^4 \cdot \exp(\hbar \omega / k_B T)}{\left( \exp(\hbar \omega / k_B T) - 1 \right)^2} \cdot d\omega \quad \text{Equation 1- 10}$$

En combinant les Equations 1-9 et 1-10, on établit une expression de la conductivité thermique de réseau, Equation 1-11.

$$k = \frac{1}{3} \sum_p \frac{V \cdot \hbar^2}{2 \cdot \pi^2 \cdot v_p^2 \cdot k_B \cdot T^2} \int_0^{\omega_D} \tau_p(\omega, T) \frac{\omega^4 \cdot \exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right)}{\left(\exp\left(\frac{\hbar\omega}{k_B T}\right) - 1\right)^2} \cdot d\omega \quad \text{Equation 1- 11}$$

Pour déterminer la conductivité thermique, il convient d'estimer le temps de relaxation qui dépend de la température et de la fréquence. Plusieurs méthodes ont été proposées afin de simplifier le modèle. Le modèle Callaway ne tient compte que du transport par des phonons acoustiques [8]. Cette hypothèse peut être justifiée en observant la courbe de dispersion des phonons pour la forme wurtzite du *GaN*, présentée dans la Figure 1- 3. Sachant que la vitesse de groupe des phonons est  $v_g = d\omega/dk$ , il apparaît que seuls les phonons acoustiques peuvent transporter de l'énergie, les phonons optiques, avec une vitesse de groupe proche de zéro, représentent une onde permanente du réseau.



*Figure 1- 3. Courbe de dispersion des phonons dans la variété Wurtzite du GaN. Les modes optiques, actifs en, Raman sont marqués [10].*

Callaway fait également des hypothèses simplificatrices sur la vitesse des phonons, en introduisant une vitesse moyenne des phonons reliant les trois modes de polarisation (deux modes transverses, indicé  $t_1$  et  $t_2$ , un mode longitudinal, indicé  $l$ ), Equation 1-12 [9].

$$\nu = \left[ \frac{1}{3} \left( \frac{1}{\nu_l} + \frac{1}{\nu_{l1}} + \frac{1}{\nu_{l2}} \right) \right]^{-1} \quad \text{Equation 1- 12}$$

En utilisant cette équation et en posant  $x = \hbar.\omega/k_B T$ , l'expression de la conductivité thermique peut s'écrire sous la forme de l'Equation 1-13 [9].

$$k = \left( \frac{k_B}{\hbar} \right)^3 \cdot \frac{k_B \cdot T^3}{2 \cdot \pi^2 \cdot \nu_{ave}} \int_0^{\theta_D/T} \tau_c(x, T) \frac{x^4 \cdot \exp(x)}{(\exp(x) - 1)^2} \cdot dx \quad \text{Equation 1- 13}$$

$\theta_D$  est la température de Debye,  $\tau_c$  est le temps de relaxation associé à l'ensemble des processus de diffusion des phonons, donné par la loi de Mattheissen.

$$\frac{1}{\tau_c} = \sum_i \frac{1}{\tau_i} \quad \text{Equation 1- 14}$$

L'Equation 1-14 met en évidence que la conductivité thermique peut être affectée par la limitation du libre parcours moyen des phonons.

**Processus de diffusion des phonons dans un solide-** On peut classer les processus de diffusion limitant le libre parcours moyen des phonons en deux catégories : ceux liés aux interactions phonon-phonon [11], ceux liés aux interactions phonon-défaut, réduisant la conductivité du réseau.

L'interaction phonon-phonon met en jeu trois phonons : à partir de deux phonons, un troisième est créé ou un phonon donne naissance à deux autres (Figure 1- 4). Le flux d'énergie peut être dirigé dans la même direction que le flux incident ou dans la direction opposée. Dans le premier cas, on parle de *processus normaux* ou *processus N* ; dans le second cas, de processus *Umklapp* ou *processus U*. Les processus *N*, ne contribuant pas directement à la résistance thermique d'un solide, seuls les processus *U* sont à prendre en compte pour le calcul de la conductivité thermique. Selon Klemens et Parrott [12], le temps de relaxation associé est donné par :

$$\tau_U^{-1} = \frac{\hbar T \omega^2}{4M\nu^2 \theta_D} \cdot \exp\left(\frac{-\theta_D}{3T}\right) \quad \text{Equation 1- 15}$$

M est la masse atomique moyenne.

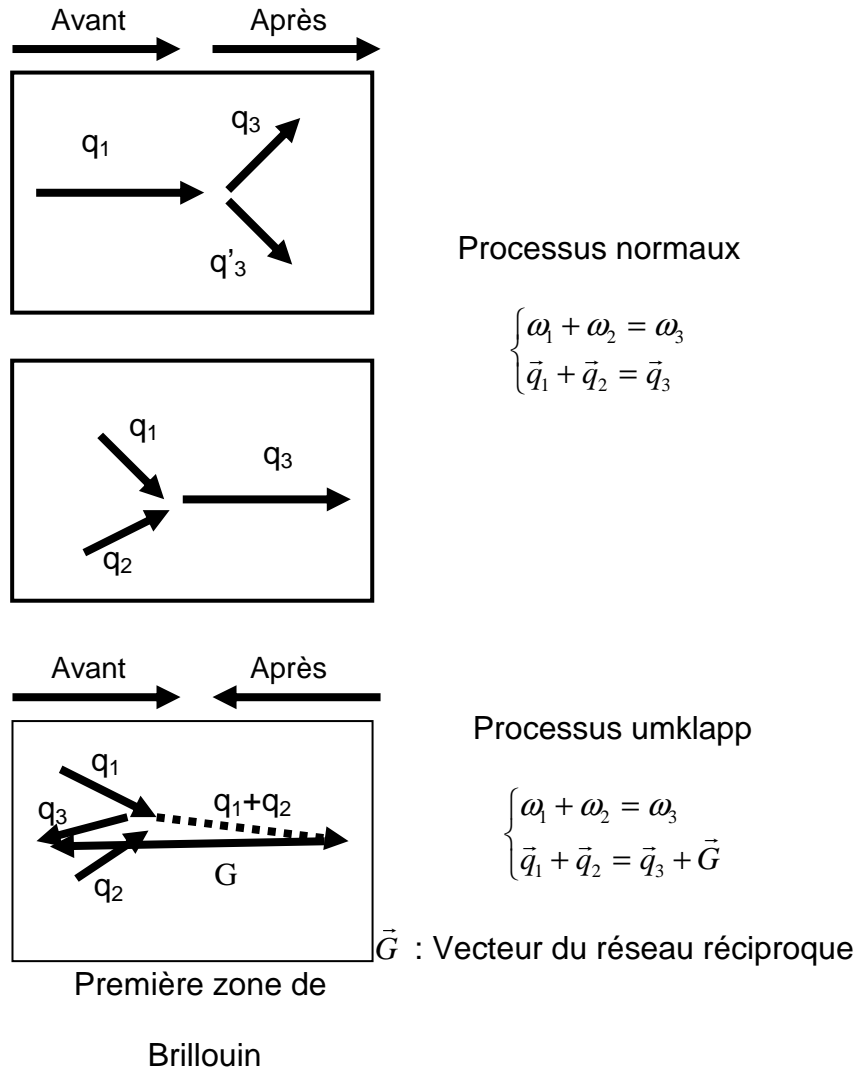


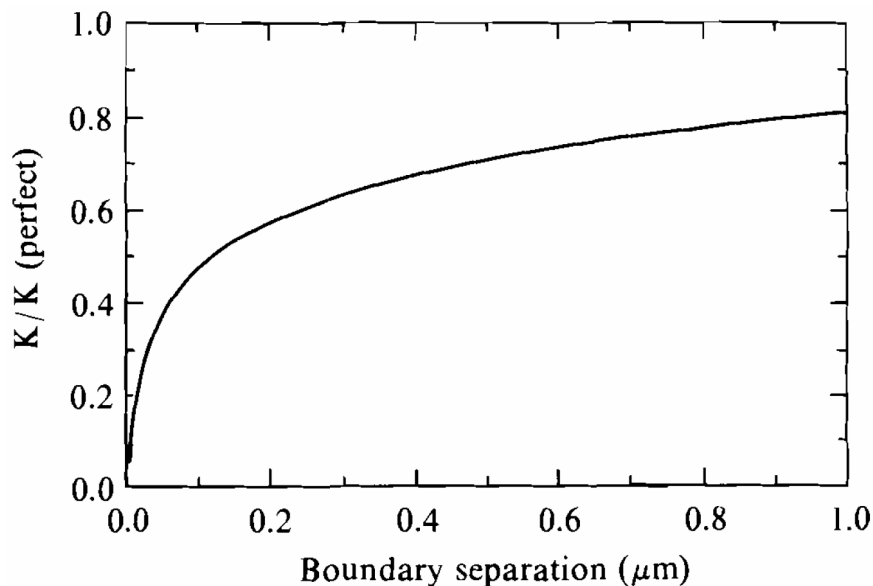
Figure 1- 4. Mécanisme de collision des phonons

Lorsque la température diminue, les processus Umklapp deviennent moins probables. Pour un monocristal parfait et infini, le libre parcours moyen des phonons, augmente rapidement lorsque la température baisse pour tendre vers l'infini au zéro absolu. Lorsque le libre parcours moyen du phonon est du même ordre de grandeur que la dimension du cristal, il y a diffusion des phonons aux frontières du cristal, ce qui a pour effet de réduire la conductivité thermique [13]. Pour un monocristal de dimension  $d$ , le temps de relaxation associé est donné par :

$$\tau_b^{-1} = \frac{v}{d}$$

Equation 1- 16

Lambropoulos *et al.* [13], ont calculé la conductivité thermique de l'AlN à la température ambiante en utilisant l'Equation 1-13, cette conductivité a été comparée avec celle du matériau massif ( $k = 320 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $\theta_D = 950 \text{ K}$ ). La conductivité thermique d'un matériau massif est calculée par le temps de relaxation  $\tau_U$  des processus  $U$  donné par l'Equation 1-15. Dans ce cas, les constantes sont évaluées à  $\frac{\hbar T \omega^2}{4Mv^2\theta_D} = 10 \text{ s}^{-1}.\text{K}^{-4}$  et  $T = 150 \text{ K}$ . Dans le cas d'AlN en couche mince, Lambropoulos a supposé que sa conductivité thermique dépendait des temps de relaxation des processus  $U$  et de l'effet de la taille, déterminé par l'Equation 1-15 (interaction phonon-défaut), dans laquelle  $d$  est l'épaisseur du film. La Figure 1-5 présente la variation du rapport de conductivité apparente et massive en fonction de la taille des grains.



*Figure 1- 5. Dépendance théorique de la conductivité thermique d'AlN à la séparation d'interface (par exemple, la taille des grains ou de l'épaisseur du film) [13].*

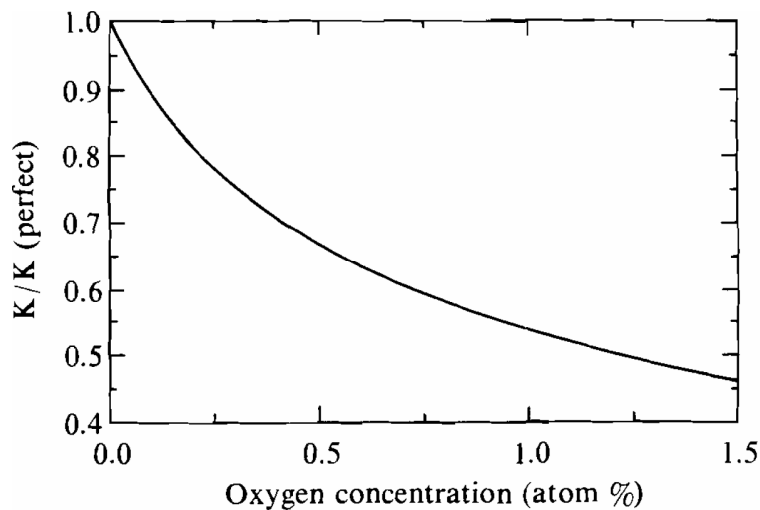
La conductivité thermique peut être fortement affectée par les interactions phonon-défauts. Les défauts ponctuels sont liés à la présence d'atomes étrangers de substitution ou d'insertion et de lacunes [13]. Généralement, un atome étranger possède une masse différente de celle des atomes du réseau et induit une modification des forces inter atomiques au voisinage de ce défaut, ce qui influe sur la diffusion des phonons. Le temps caractéristique correspondant à des concentrations faibles de défauts ponctuels est donné par :

$$\tau_i^{-1} = \frac{\delta^3 \omega^4}{4\pi V^3} \Gamma$$

*Equation 1- 17*

Avec  $\Gamma = \Gamma_{imp} + \Gamma_{alliage}$  ;  $\Gamma_{imp}$  et  $\Gamma_{alliage}$  sont la contribution des impuretés (pour l'AlN  $3,2 \times 10^{-4}$ ) et la contribution dû au désordre des alliages, respectivement. Cette contribution due au désordre de l'alliage est donnée par  $\Gamma_{alliage} = \sum_i x_i \cdot \left\{ \left[ \frac{(M_i - M)}{M} \right]^2 + 39 \cdot \left[ \frac{(\delta_i - \delta)}{\delta} \right]^2 \right\}$ .

Dans cette équation l'indice  $i$  représente les différentes combinaisons qui peuvent exister dans le film. Dans le cas de l'AlN, Dinwiddie et Onn [14] ont montré que la conductivité thermique massive diminuait énormément si un très faible nombre d'atomes d'oxygène se substituaient aux atomes d'azote dans la structure cristalline de l'AlN (Figure 1- 6). Cette diminution de la conductivité thermique sous l'effet de la contamination en oxygène, est due au changement dans la chaîne atomique du réseau cristallin de l'AlN et par conséquent une réduction du libre parcours moyen des phonons.



*Figure 1- 6. Effet du taux d'impuretés sur la conductivité thermique de l'AlN massif [13].*

La structure cristalline et la morphologie des interfaces jouent un rôle capital sur la conductivité thermique des couches minces, de quelques centaines à plusieurs milliers de nanomètres d'épaisseur. L'expérience montre des écarts de conductivité de plusieurs ordres de grandeur entre les matériaux massifs et ceux déposés en couches minces. La microstructure des couches minces explique ces écarts. Les couches minces sont généralement poly-cristallines, le plus souvent organisées en colonnes dont la morphologie dépend des conditions de dépôt [15]. Les grains colonnaires sont séparés par des joints de

grains plus ou moins parallèles et perpendiculaires à la surface du substrat. Les joints entre cristallites séparent les régions d'orientations cristallographiques différentes. Ils sont le lieu privilégié de la ségrégation de défauts. Les mécanismes de croissance du dépôt conduisent généralement à la formation d'une zone intrinsèque dans le volume et d'une zone de transition située près de la surface du substrat. La zone de transition présente une structure désordonnée avec des défauts (dislocations, vides...).

**Equation de transport de la chaleur en régime diffusif-** L'équation macroscopique de transport de chaleur par conduction est obtenue à partir de la loi de Fourier,  $\vec{\nabla} \cdot \vec{Q}_A = \vec{\nabla} \cdot (-k \cdot \vec{\nabla} T)$  en exprimant la conservation de l'énergie en tout points  $(x, y, z)$  du milieu, en prenant en compte les variations locales de l'énergie interne  $(-C_p \rho \cdot \partial T / \partial t)$ . Dans le cas d'un transfert monodirectionnel dans un milieu homogène isotrope sans source volumique de chaleur, l'équation de conduction de la chaleur s'écrit [16] :

$$C_p \rho \frac{\partial T}{\partial t} = k \cdot \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \quad \text{Equation 1- 18}$$

$\rho$  est la masse volumique exprimée en  $kg.m^{-3}$ ,  $C_p$  est la chaleur spécifique en  $J.kg^{-1}.K^{-1}$ ,  $k$  est la conductivité thermique en  $W.m^{-1}.K^{-1}$ , et  $D = k/C_p \rho$  est la diffusivité en  $m^2.s^{-1}$ . Le Tableau 1- 2 donne les valeurs de  $k$ ,  $C_p$ ,  $\rho$ ,  $D$  pour quelques semi-conducteurs et métaux.



*Tableau 1- 2. Propriétés thermophysiques de différents matériaux.*

<i>Matériaux</i>	$\rho$ [Kg.cm <sup>-3</sup> ]	$C_p$ [J.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> ]	$k$ [W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]
<i>SiO2</i>	2220	745	1.38
<i>Sapphire</i>	3970	765	36
<i>Silicium</i>	2330	703	150
<i>GaN</i>	6150	490	130
<i>6H-SiC</i>	3200	640	350
<i>Diamant</i>	3500	509	2300
<i>Aluminium</i>	2700	888	236
<i>AlN</i>	3230	836	320

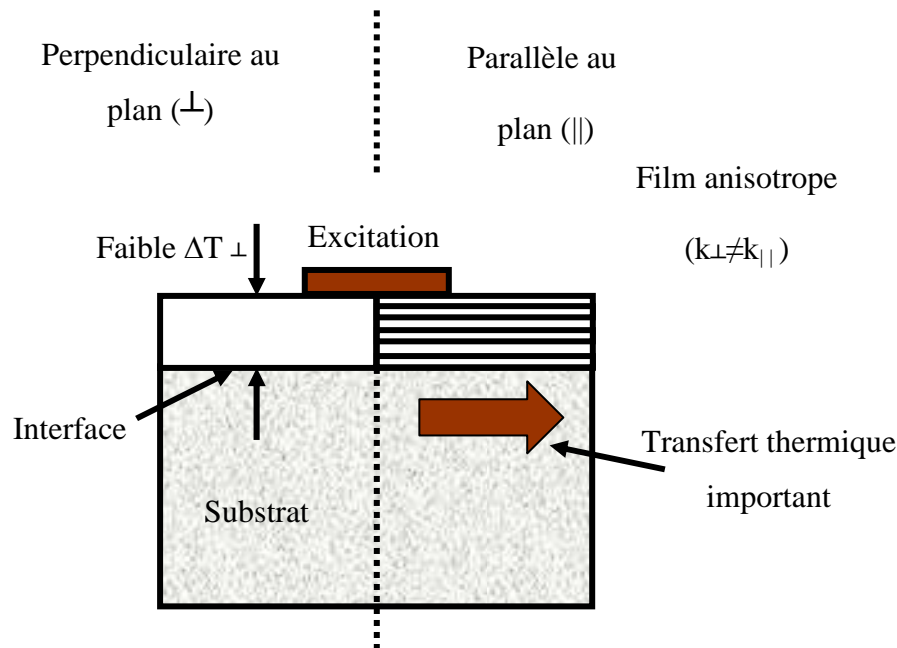
#### 1.4. Mesure des propriétés thermiques des couches minces

Différentes techniques permettent de mesurer la conductivité thermique de couches minces. Elles reposent sur l'analyse de l'amplitude et de la forme du signal de température de film consécutive à une excitation thermique qui peut être une impulsion, un signal périodique ou un échelon. La mesure de température peut s'effectuer en régime stationnaire ou non stationnaire. Les techniques diffèrent selon la nature de l'excitation thermique et de la détection de température. Ainsi ces techniques peuvent être regroupées en trois grandes familles

- Les techniques utilisant une excitation et une détection optiques, que l'on peut qualifier de techniques optiques. L'excitation peut être réalisée avec un laser à impulsions picosecondes ou nanosecondes [17], et la détection par réflectométrie ou mesure de l'émission thermique dans l'infrarouge.
- Les techniques utilisant une excitation et une détection électriques, que l'on peut qualifier de techniques électriques [18].

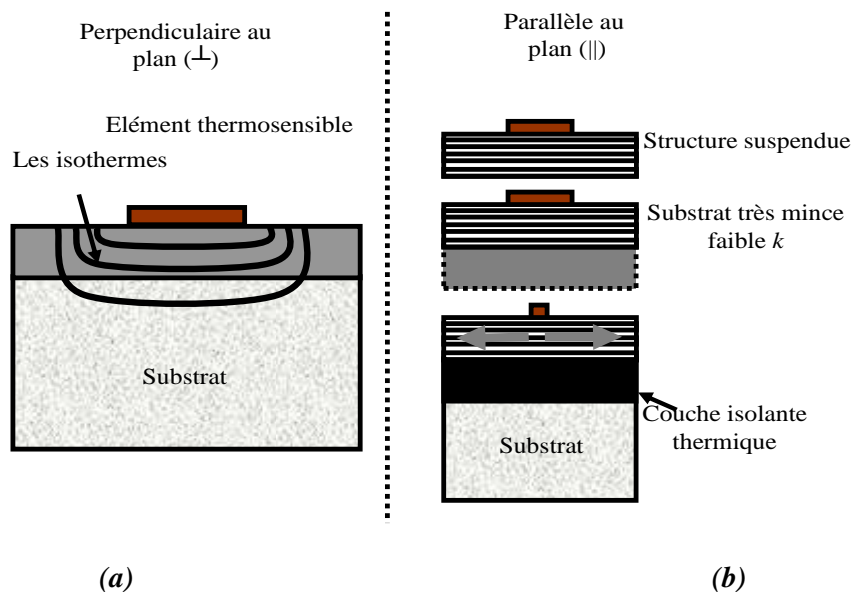
- Les techniques utilisant une excitation optique et une détection électrique, ou inversement une excitation électrique et une détection optique. On peut qualifier ces techniques d'hybrides [19,20].

La mesure de la conductivité thermique des couches minces est difficile car l'analyse de température doit s'effectuer sur de petites échelles de temps et d'espace. Pour cela, il est nécessaire de développer des techniques spécifiques. La Figure 1- 7 illustre le principe d'une mesure de conductivité thermique d'une couche mince sur substrat mettant en œuvre une excitation thermique et une détection de température. La structure des films est généralement anisotrope de sorte qu'il est nécessaire de distinguer la conductivité du film dans la direction parallèle  $k_{//}$  et perpendiculaire  $k_{\perp}$  à la surface du substrat. Pour mesurer  $k_{//}$  il convient de trouver les conditions permettant d'établir un transfert de chaleur le long du film. Plusieurs stratégies ont été développées, telles que l'utilisation de films et/ou substrats de faibles conductivité thermique, l'utilisation d'une structure suspendue du film en supprimant (gravant) le substrat, l'utilisation d'éléments chauffants et de capteurs de température judicieusement positionnés. Le Tableau 1- 3 résume les techniques les plus utilisées pour la mesure de  $k_{//}$  et  $k_{\perp}$ . Dans ce qui ce suit, nous décrivons de manière plus détaillée les techniques les plus répandues.



**Figure 1- 7. Principe général d'une mesure de conductivité thermique d'une couche mince dans les directions perpendiculaire et parallèle au plan du substrat.**

## Stratégie de mesure des propriétés thermiques



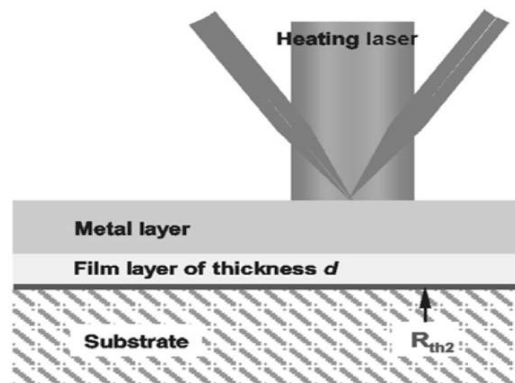
**Figure 1- 8.** *Stratégies de mesure de la conductivité thermique ou de la diffusivité thermique des couches minces (a) dans la direction transversale au plan. (b) parallèlement au plan.*

**Tableau 1- 3.** *Récapitulatif des techniques de mesure de la conductivité thermique des couches minces, classées en fonction du type d'excitation et de détection de température [27-30].*

Techniques électriques	Techniques optiques	Techniques hybrides
$3\omega$ ⊥	<b>Domaine temporel</b>	Calorimétrie AC ⊥
$3\omega$ avec 2 rubans ⊥		Photo-réflectance ⊥
Stationnaire avec 2 rubans	<b>Domaine fréquentiel</b>	Photo-thermo-électrique ⊥
Membrane		Photo-réflectance ⊥
Structure suspendue	Photo-acoustique ⊥	Electro-réflectance ⊥
	Photo-déflexion ⊥	

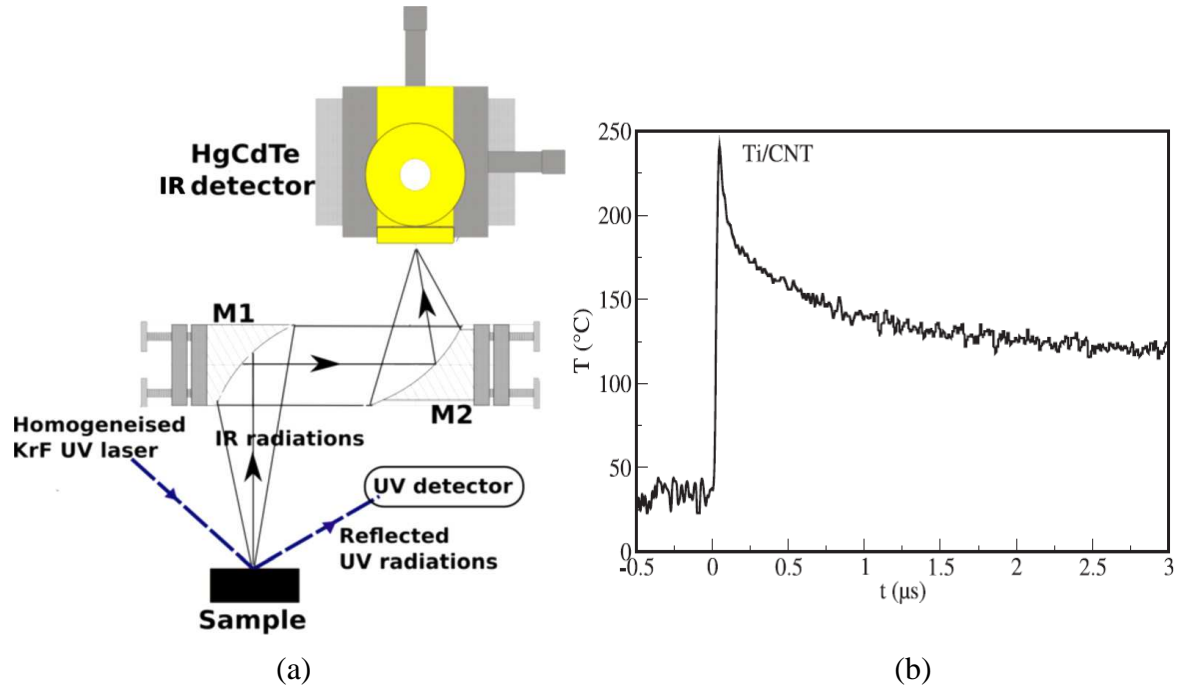
### 1.4.1. Techniques optiques

Parmi les techniques optiques on peut distinguer la technique par photo-réflexion, également appelée reflectométrie ou thermoréfectance [21-24]. La photo-réflexion est une méthode très utilisée pour mesurer les propriétés thermiques des couches minces. Cette technique est illustrée dans la Figure 1- 9. L'évolution de la température est mesurée consécutivement à son excitation par une impulsion laser nanoseconde ou picoseconde, un laser modulé en intensité, ou un échauffement transitoire avec une sonde optique suite à un échauffement optique local ultrarapide (entre quelques picosecondes et quelques nanosecondes) à la surface d'échantillon à caractériser. Cet échauffement est produit par l'absorption d'un flux de lumière dans l'infrarouge (*IR*) issu d'un laser *YAG* (laser pompe) et dépend des propriétés thermiques et des propriétés optiques de l'échantillon (coefficient de réflexion et d'absorption). La détection de l'élévation de température est réalisée en utilisant une autre sonde laser qui donne la variation du coefficient de réflexion de la surface, coefficient qui dépend de la température. En pratique, une couche mince métallique est déposée à la surface de l'échantillon. La technique peut être utilisée pour déterminer la résistance thermique d'interface et la conductivité thermique de couches minces. Selon l'emplacement de la sonde de mesure par rapport au faisceau d'excitation, il est possible de déterminer la conductivité thermique normale et parallèle à la surface. En effet, lorsque la mesure est faite au point d'impact du laser pompe, la mesure permet d'extraire la conductivité thermique perpendiculaire à la surface ( $k_{\perp}$ ). Lorsque la mesure est effectuée à une certaine distance du point d'impact, il est possible de déterminer la conductivité thermique parallèle à la surface ( $k_{//}$ ).



*Figure 1- 9. Schéma de la technique de photoréflexion. Les changements de température à la surface sont mesurés par la variation du coefficient de réflexion mesuré par le laser [29].*

Il existe une autre technique optique utilisant la pyrométrie infrarouge [25-28]. Cette technique est basée sur la détection du rayonnement thermique émis par la surface de l'échantillon consécutif à une excitation laser nanoseconde dans l'ultraviolet. La détection de la température se fait à l'aide d'un détecteur infrarouge type HgCdTe. Un schéma de la technique et un exemple de signal de mesure sont donnés sur la Figure 1- 10.



*Figure 1- 10. (a) Technique pyrométrie infrarouge rapide et (b) Exemple de signal de mesure obtenu avec des nanotubes de carbone [25-28]*

### 1.4.2. Techniques électriques

La méthode  $3\omega$  développée par Cahill [31], permet de mesurer la conductivité thermique de substrats massifs et des films minces. Cette technique consiste à injecter un courant périodique  $I(t)$  à une fréquence  $\omega$  dans un ruban métallique déposé à la surface de l'échantillon (figure 1-11).

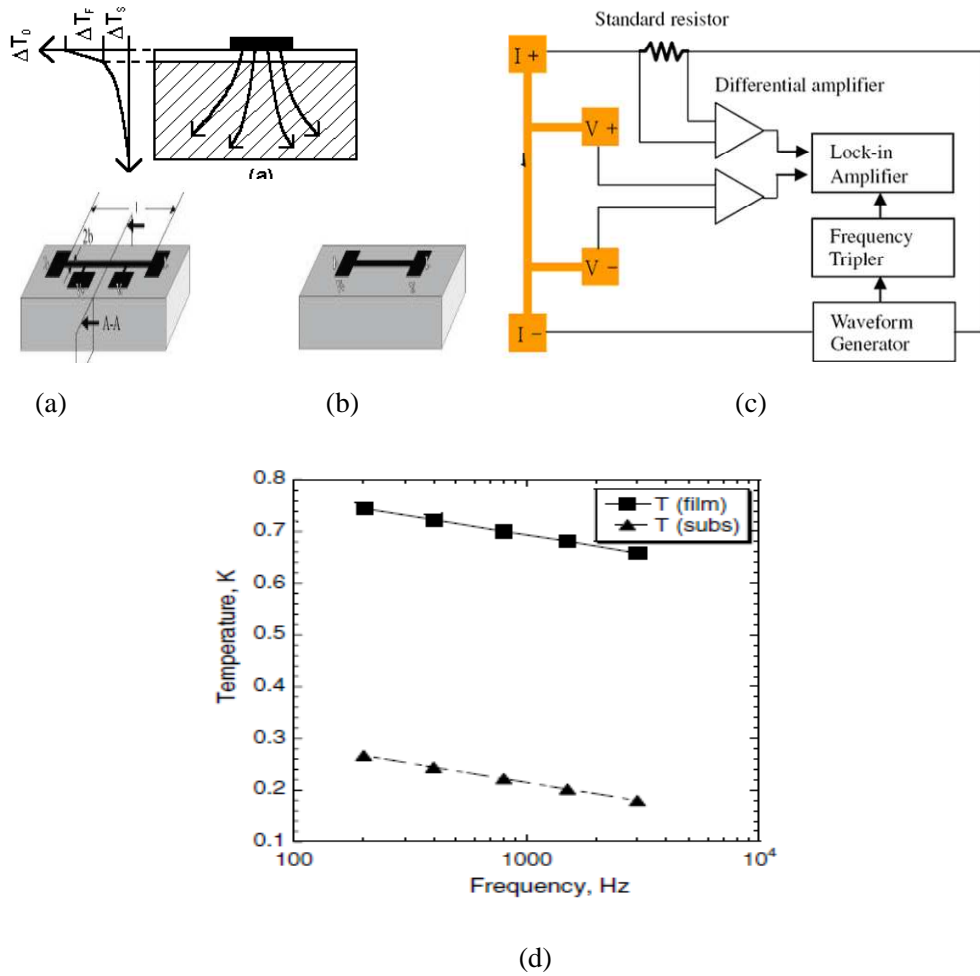


Figure 1- 11. Géométrie de la méthode  $3\omega$  à quatre contacts (a), deux contacts (b), le système de mesure (c), et un exemple de mesure sur 500 nm  $\text{SiO}_2$  (d). Une bande métallique, ici en noir, sert à la fois d'élément chauffant et de thermomètre.

Le courant est donné par :

$$I(t) = I_0 \cos(\omega t)$$

Equation 1- 19

Cette excitation produit un échauffement continu (DC) et une oscillation de température (AC) dont l'amplitude dépend de la conductivité thermique de l'échantillon. La puissance dissipée est donnée par :

$$P(t) = R_0 \cdot I^2(t) = R_0 \cdot I_0^2 \cos^2(\omega t) = \frac{R_0 \cdot I_0^2}{2} (1 + \cos(2\omega t)) \quad \text{Equation 1- 20}$$

$R_0$  est la résistance de l'élément thermosensible. Du fait de la linéarité de l'équation de conduction de la chaleur, l'élévation de température comprend une composante continue  $\Delta T_{DC}$  et une composante oscillante, oscillant à la fréquence  $2\omega$ , d'amplitude  $\Delta T_{AC}$  :

$$T(t) = \Delta T_{DC} + \Delta T_{AC} \cdot \cos(2\omega t + \Omega) \quad \text{Equation 1- 21}$$

$\Omega$  est le déphasage entre le courant et la température. L'échauffement introduit une variation de la résistance de la ligne métallique qui s'écrit :

$$R(t) = R_0 [1 + \beta_T \Delta T_{DC} + \beta_T \Delta T_{AC} \cos(2\omega t + \Omega)] \quad \text{Equation 1- 22}$$

$\beta_T$  est le coefficient de température. Ainsi, la tension aux bornes de la résistance est donnée par :

$$V(t) = R(t) \cdot I(t) = R_0 I_0 \cos(\omega t) [1 + \beta_T \Delta T_{DC} + \beta_T \Delta T_{AC} \cos(2\omega t + \Omega)] \quad \text{Equation 1- 23}$$

En utilisant les formules trigonométriques, on montre que la tension se décompose en la somme de trois termes oscillants aux fréquences  $\omega$ ,  $2\omega$ ,  $3\omega$  :

$$V(t) = R_0 I_0 (1 + \beta_T \Delta T_{DC}) \cdot \cos(\omega t) + \frac{R_0 I_0 \beta_T \Delta T_{AC}}{2} \cdot \cos(2\omega t + \Omega) + \frac{R_0 I_0 \beta_T \Delta T_{AC}}{2} \cdot \cos(3\omega t + \Omega) \quad \text{Equation 1- 24}$$

La composante  $3\omega$  est proportionnelle à l'amplitude de température AC. Cette composante est détectée avec un amplificateur à détection synchrone. Dans le cas d'un film sur un substrat, l'amplitude  $\Delta T$  est la somme de l'amplitude introduite par le substrat  $\Delta T_s$ , et de celle introduite par le film,  $\Delta T_f$  :

$$\Delta T = \Delta T_s + \Delta T_f \quad \text{Equation 1- 25}$$

Avec

$$\Delta T_s = \frac{P}{\pi.L.k_s} \left[ -1/2.\ln\left(\frac{k_s}{C_p.\rho.b^2}\right) + 0,92 + i.\pi/4 \right] \quad \text{Equation 1- 26}$$

Et

$$\Delta T_f = \frac{P.e_f}{2b.L.k_f} \quad \text{Equation 1- 27}$$

$i$ ,  $k_f$ ,  $k_s$ ,  $C_p$ ,  $\rho$  et  $P$  sont respectivement, l'opérateur de la variable complexe, la conductivité thermique du film, la conductivité thermique du substrat, la chaleur spécifique, la masse volumique du substrat et la puissance dissipée.

### 1.4.3. Techniques hybrides

Une méthode bien développée est la méthode de calorimétrie AC, dans laquelle un faisceau modulé laser est utilisée pour chauffer l'échantillon et la détection se fait par voie électrique en utilisant par exemple des thermocouples ou des résistances électriques, déposées en couche mince à la surface de l'échantillon. La distance entre le laser et le capteur est variable. La diffusivité thermique du film peut être déterminée à partir des données de phase ou d'amplitude du signal. La Figure 1- 12 donne un exemple des données de phase pour des super-réseaux GaAs /AlAs [32]. Une autre technique utilise une impulsion laser nanoseconde ultracourte et une résistance métallique thermosensible [33-35]. Cette technique est représentée sur la Figure 1- 13. A l'opposé, l'échantillon peut être chauffé électriquement et le signal de température peut être détecté par réflectivité de la surface [36] ou par mesure du rayonnement thermique émis par l'échantillon [37,38]. L'un des avantages du chauffage électrique réside dans la connaissance précise de la puissance injectée. Une détection optique ne permet pas de tirer parti de cet avantage. Un exemple de technique hybride méthode  $3\omega$ -imagerie par thermo-réflexion est donné sur la Figure 1- 14.



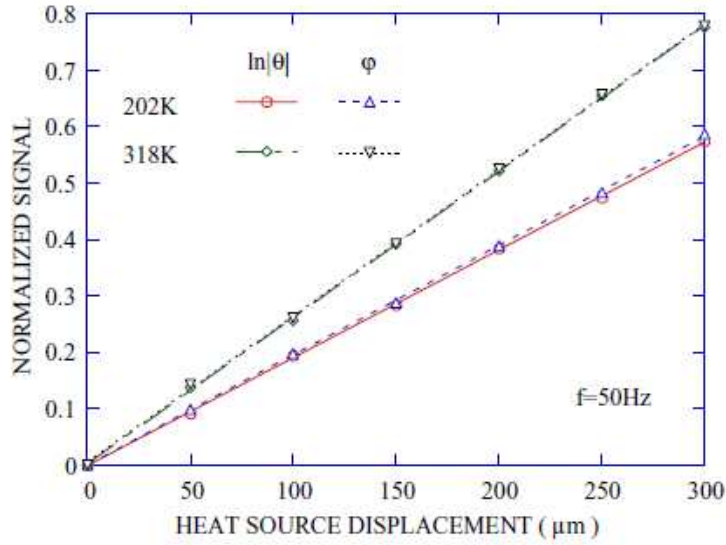


Figure 1- 12. Phase et amplitude du signal normalisé obtenu avec la technique calorimétrie et modulé en fonction du déplacement relatif de la source optique par rapport au thermocouple, pour un superréseau GaAs/AlAs [32].

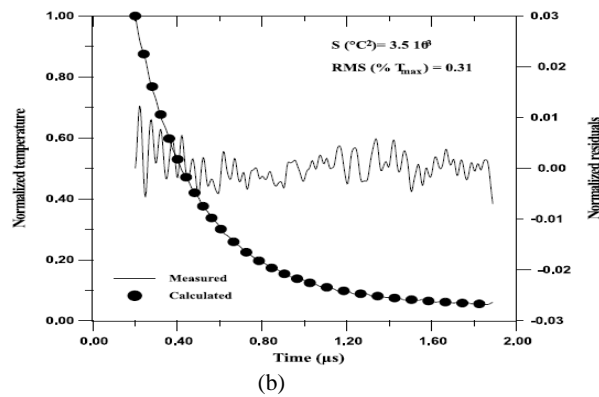
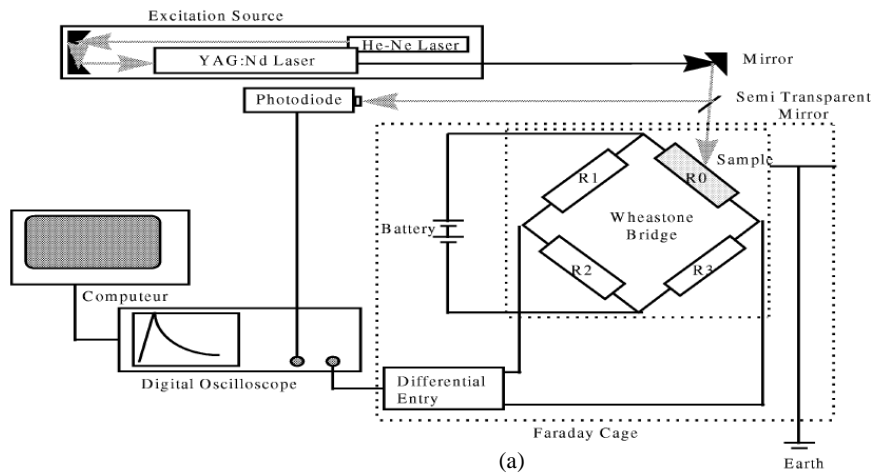
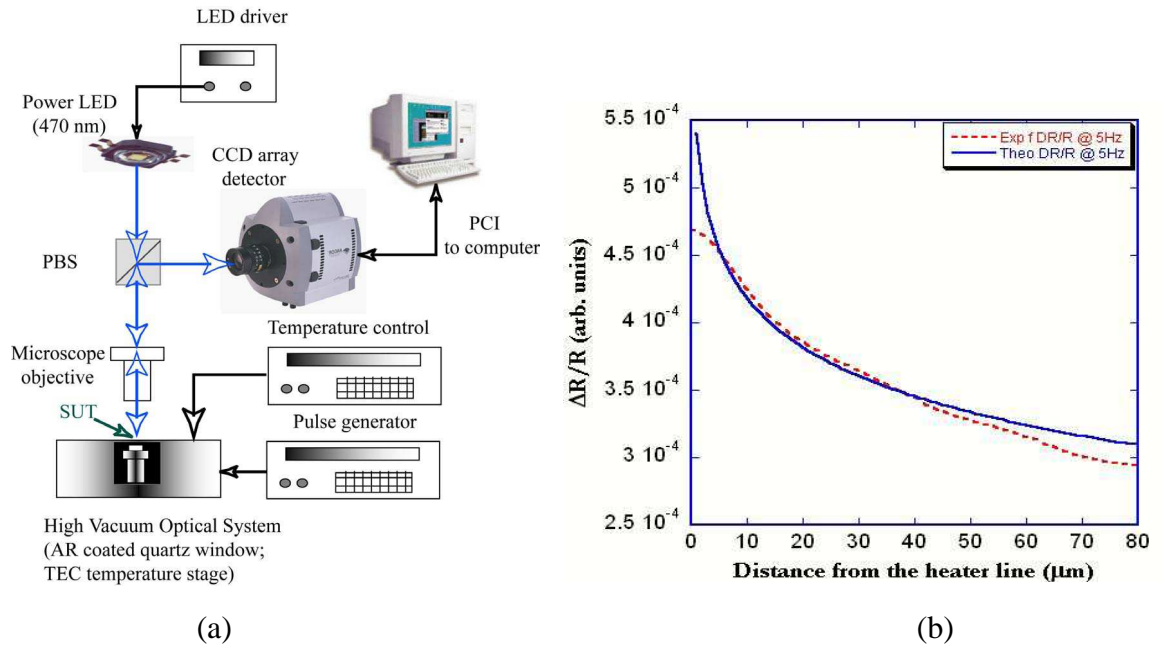


Figure 1- 13. (a) Représentation de la technique photo-thermique et (b) un exemple de signal de mesure sur l'oxyde de zirconium ( $\text{ZrO}_2$ ) [35].



Figure

1- 14. (a) Représentation de la technique hybride  $3 \omega$  et imagerie de thermo-réflexion, et (b) Exemple de signal obtenu sur InGaAs [38].

## 1.5. Références

- [1]: E. O. Johnson, "Physical limitations on frequency and power parameters of transistors", (1965). *RCA Review* **26**, 163-177.
- [2]: R. W. Keyes, "Figure of merit for IC packaging", (1978). *IEEE Journal of Solid-State* **SC-13**, 265-266.
- [3]: B. J. Baliga, "Power Semiconductor-Device Figure of Merit for High-Frequency Applications", (1989). *IEEE Electron Device Letters* **10**, 455-457.
- [4]: W. X. Li, K. Q. Chen, W. Duan, J. Wu , et B. L. Gu, "Phonon transport and thermal conductivity in dielectric quantum wire", (2003). *Journal of Physics D: Applied Physics* **36**, 3027–3033.
- [5]: M. Gerl, E.J.P.I., "Traité des matériaux - Volume 8 - Physique des matériaux", (1997).
- [6]: C. Kittel, "Introduction a la physique de l'etat solide", (1958).
- [7]: C. Kittel, "Introduction to Solid State Physics", (1996).
- [8]: J. Callaway, "Model for lattice thermal conductivity at low temperatures", (1959). *Physical Review* **113**, 1046-1051.
- [9]: F. H. Pollak, J. Zou, D. Kotchetkov, A. A. Balandin, et D. I. Florescu, "Thermal conductivity of GaN films: Effects of impurities and dislocations", (2002). *Journal of Applied Physics* **92**, 2534.
- [10]: H. Siegle, G. Kaczmarczyk, L. Filippidis, A. P. Litvinchuk, A. Hoffmann, et C. Thomsen, "Zone-boundary phonons in hexagonal and cubic GaN", (1997). *Physical Review B (Condensed Matter)*, **55**, 7000-7004.
- [11]: R. Berman, "Thermal conduction in solids", (1976). *Oxford University Press* **1**, 66-69.
- [12]: W. Liu, et A. A. Balandin, "Thermal conduction in Al<sub>x</sub>Ga<sub>1-x</sub>N alloys and thin films", (2005). *Journal of Applied Physics* **97**, 073710-1 - 073710-6.
- [13]: R. L. Keck, "LLE Review -Volume 49-, Quarterly Report", (1991).

[14] : R. B. Dinwiddie, E.D.G.O., "Modeling the Temperature Dependence of the Thermal Conductivity of Aluminum Nitride", (1990).

[15] : A. Richardt, E.A.M.D., "La pratique du vide et des dépôts de couches minces", (1995).

[16] : O. W. Käding, H. Skurk, et K. E. Goodson, "Thermal conduction in metallized silicodioxide layers on silicon", (1994). *Applied Physics Letters* **65**, 1629-1631.

[17] : D. Rochais, H. L. Houedec, F. Enguehard, J. Jumel, et F. Lepoutre, "Microscale thermal characterization at temperatures up to 1000°C by photoreflectance microscopy. Application to the characterization of carbon fibres", (2005). *Journal of Physics D: Applied Physics* **38**, 1498–1503.

[18] : R. Frank, V. Drach, et J. Fricke, "Determination of thermal conductivity and specific heat by a combined  $3\omega$ /decay technique", (1993). *Review of Scientific Instruments* **64**, 760-765.

[19] : S. Orain, Y. Scudeller, et T. Brousse, "Thermal conductivity of ZrO<sub>2</sub> thin films", (2000). *International Journal of Thermal Sciences* **39**, 537-543.

[20] : K. Maize, Y. Ezzahri, X. Wang, S. Singer, A. Majumdar, et A. Shakouri, "Measurement of Thin Film Isotropic and Anisotropic Thermal Conductivity Using  $3\omega$  and Thermoreflectance Imaging", (2008). 24th IEEE Semi-Therm Symposium 185-191.

[21] : P.G. Bison, S. Marinetti, A. Mazzoldi, E. Grinzato, et C. Bressan, "Cross-comparison of thermal diffusivity measurements by thermal methods", (2002). *Infrared Physics & Technology* **43**, 127–132.

[22] : A. Rosencwaig, J. Opsal, W. L. Smith, et D. L. Willenborg, "Detection of thermal waves through optical reflectance", (1985). *Applied Physics Letters* **46**, 1013-1015.

[23] : F. Lepoutre, D. Balageas, Ph. Forge, S. Hirschi, and J. L. Joulaud, D. Rochais, et F. C. Chena, "Micronscale thermal characterizations of interfaces parallel or perpendicular to the surface", (1995). **78**, 2208-2223.

[24] : Y. Zhao, C. Zhu, S. Wang, J. Z. Tian, D. J. Yang, and C. K. Chen, H. Cheng, et P. Hing, "Pulsed photothermal reflectance measurement of the thermal conductivity of sputtered aluminum nitride thin films", (2004). *Journal of Applied Physics* **96**, 4563-4568.

[25] : E. Amin-Chalhoub, N. Semmar, L. Coudron, G. Gautier, C. Boulmer-Leborgne, A. Petit, M. Gaillard, J. Mathias, et E. Millon, "Thermal conductivity measurement of porous silicon by the pulsed-photothermal method ", (2011). *Journal of Physics D: Applied Physics* **44**, 355401–9.

[26] : J. Martan, N. Semmar, C. Boulmer-Leborgne, et E. L. Menn, "Thermal characterization of tungsten thin films by pulsed photothermal radiometry", (2006). *Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering* **10**, 333–334.

[27] : E. Amin-Chalhoub, G. Wattieaux, N. Semmar, M. Gaillard, A. Petit, et C. Leborgne, "Improvement of the identification of multiwall carbon nanotubes carpet thermal conductivity by pulsed photothermal method", (2012). *Journal of Applied Physics* **112**, 094322-094310.

[28] : J. Martan, E.O.H., "Two-detector measurement system of pulse photothermal radiometry for the investigation of the thermal properties of thin films", (2007). *Journal of Applied Physics* **102**, 064903-064906.

[29] : S. L. Shindé, E.J.S.G., "High Thermal Conductivity Materials", (2004).

[30] : S. R. Choi, D. Kim, S. H. Choa, S.-H. Lee, et J. K. Kim, "Thermal Conductivity of AlN and SiC Thin Films", (2005). *International Journal of Thermophysics* **27**, 896-905.

[31] : D.G. Cahill, E.R.P., "Thermal conductivity of amorphous solids above the plateau", (1987). *Physical Review B* **35**, 4067-4073.

[32] : X. Y. Yu, G. Chen, A. Verma, et J. S. Smith, "Temperature Dependence of Thermophysical Properties of GaAs/AlAs Periodic Structure", (1995). *Applied Physics Letters* **67**, 3554-3556.

[33] : N. Hmina, E.Y.S., "Thermal interface resistance and subsurface effusivity of submicronic metallic films on dielectric substrate: an experimental method for simultaneous determination", (1998). *International Journal of Heat and Mass Transfer* **41**, 2791-2798.

[34] : S. Orain, Y. Scudeller, S. Garcia, et T. Brousse, "Use of genetic algorithms for the simultaneous estimation of thin films thermal conductivity and contact resistances", (2001). *International Journal of Heat and Mass Transfer* **44**, 3973-3984.

[35] : S. Orain, Y. Scudeller, et T. Brousse, "Thermal conductivity of ZrO<sub>2</sub> thin films", (2000). *International Journal of Thermal Sciences* **39**, 537-543.

[36] : K. E. Goodson, O. W. Kading, M. Rosler, et R. Zachai, "Experimental Investigation of Thermal Conduction Normal to Diamond-Silicon Boundaries", (1995). *Applied Physics Letters* **77**, 1385-1392.

[37] : S. W. Indermuehle, E.R.B.P., "A Phase-Sensitive Technique for the Thermal Characterization of Dielectric Thin Films ", (1999). *Journal of Heat Transfer* **121**, 528-536.

[38] : K. Maize, Y. Ezzahri, X. Wang, S. Singer, A. Majumdar, et A. Shakouri, "Measurement of Thin Film Isotropic and Anisotropic Thermal Conductivity Using  $3\omega$  and Thermoreflectance Imaging", (2008). *24th IEEE Semi-Therm Symposium* , 185-191.

## Chapitre 1 : Contexte et généralités

## **2. Chapitre 2 : Sondes thermiques et modèles physiques associés**

### **2.1. Introduction**

Ce chapitre présente les sondes thermiques originales conçues pour mesurer les propriétés thermiques de couches minces et de nanostructures. Le chapitre présente tout d'abord le principe de fonctionnement et les architectures des sondes puis des résultats de simulation numérique mettant en évidence leurs performances et les fenêtres de temps à considérer dans l'analyse des réponses temporelles. Le chapitre décrit ensuite les modèles physiques nécessaires à la détermination des propriétés thermiques par ajustement avec les réponses des sondes en régime non-stationnaire. Ces modèles font appel à la résolution de l'équation de la chaleur par la technique des transformations intégrales.

### **2.2. PRESENTATION DES SONDES THERMIQUES**

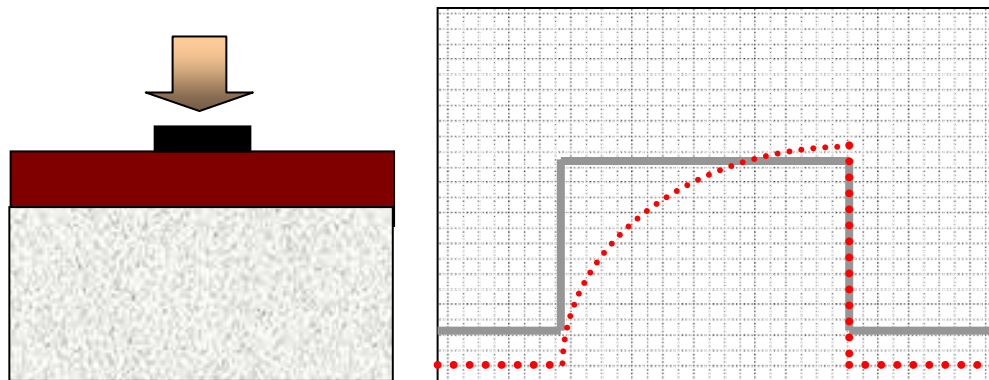
#### **2.2.1. Principe de la mesure**

Les sondes dérivent de la « technique transitoire à ruban chaud » (Transient Hot Strip technique, THS) développée dans les années 80 par Gustafsson et al. pour mesurer les propriétés thermiques des solides et des liquides [1-3]. Cette technique repose sur l'analyse de l'évolution de température d'un ruban métallique, placé sur l'échantillon, consécutive à une brusque alimentation en courant électrique. Le ruban joue simultanément le rôle d'élément chauffant et de thermomètre et sa température est obtenue par la mesure de résistance électrique. Classiquement, les échantillons sont de taille millimétrique et les fenêtres de temps analysées sont de quelques secondes à quelques dizaines de secondes. En 1992, S. Ohkubo et M. Okuda [4,5] ont appliqué la technique sur des films submicroniques de  $\text{SiO}_2$  et  $\text{Si}_3\text{N}_4$ . Nous n'avons recensé aucune autre publication sur l'utilisation de la technique pour la caractérisation des couches minces, en raison de difficultés de mise œuvre (qualité des signaux, rapport signal/bruit, temps de commutation, etc...). En 2006, U. Hammerschmidt *et*



al. [6,7] ont introduit la technique transitoire à pont chaud (Transient Hot Bridge, THB) utilisant des rubans thermosensibles configurés en pont de Wheatstone afin d'améliorer la sensibilité de la technique THS. Cette technique a été mise en œuvre sur des échantillons de taille centimétrique et des temps longs.

Les sondes présentées ici s'appuient sur le principe du ruban chaud [9,10] et les concepts déjà développés par notre laboratoire [11-14]. Ces sondes, qui combinent les avantages des techniques THS et THB, ont été élaborées pour caractériser des matériaux de conductivité thermique élevée. Leur sensibilité permet de mesurer des résistances thermiques aussi faibles que  $10^{-9} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$ . Les sondes sont constituées de quatre résistances électriques déposées en couches minces sur l'échantillon et configurées en pont de Wheatstone. La Figure 2-1 donne le schéma du principe. Il existe en effet une relation entre la tension de déséquilibre du pont et les températures des diverses résistances. On se place dans la situation générale décrite sur la Figure 2- 2.



*Figure 2- 1. Principe de la technique de mesure des propriétés thermiques des couches minces.*

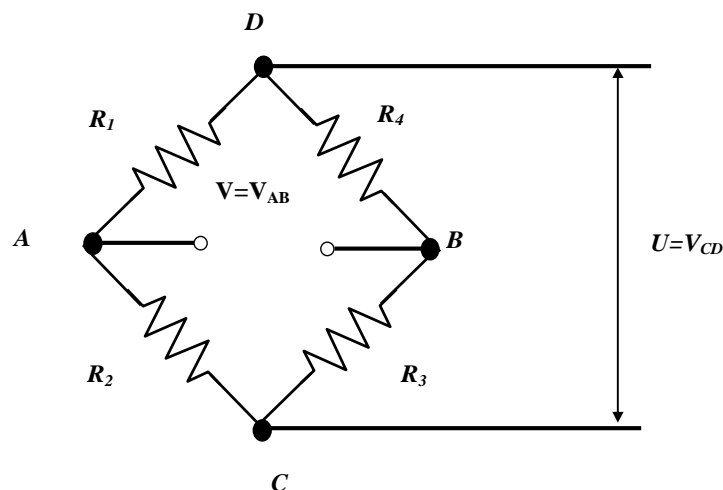


Figure 2- 2. Schéma des sondes thermiques constituées de quatre résistances thermoélectriques déposées en couches minces (résistances métalliques) sur l'échantillon et configurées en pont de Wheatstone. Une tension d'alimentation  $U$  est appliquée entre  $C$  et  $D$ . L'échauffement des résistances du pont consécutif à l'application de  $U$  est à l'origine du signal de sortie entre  $A$ - $B$ .

On se propose maintenant d'établir la relation entre la tension de déséquilibre  $\Delta V$  (signal de sortie) et les élévations de température des résistances électriques lors de l'application d'une tension d'alimentation  $U$  (signal d'entrée). On peut montrer que,  $\Delta V$  est donné par la relation :

$$\Delta V = \frac{R_2 \cdot R_{10}}{(R_{10} + R_2)^2} \cdot U \cdot \left( \frac{\Delta R_1}{R_{10}} - \frac{\Delta R_2}{R_{20}} + \frac{\Delta R_3}{R_{30}} - \frac{\Delta R_4}{R_{40}} \right) \quad \text{Equation 2- 1}$$

$R_1, R_2, R_3, R_4$  désignent les valeurs ohmiques des résistances à un instant donné,  $R_{10}, R_2, R_3, R_4$  leurs valeurs initiales avant application de  $U$ , et  $\Delta R_1, \Delta R_2, \Delta R_3, \Delta R_4$  les variations de résistance induites par leur auto-échauffement. La résistance électrique d'un métal varie linéairement avec la température selon la loi (Equation 2- 2) :

$$R_i = R_{i0} \cdot (1 + \beta_i \cdot \Delta T) \quad \text{Equation 2- 2}$$

$\beta_i$  est le coefficient de température de la résistance exprimé en  $^{\circ}\text{C}^{-1}$  ( $\beta_i = \frac{1}{R_i} \cdot \frac{dR_i}{dT}$ )

Ce coefficient, de l'ordre de quelques  $10^{-3} \text{ }^{\circ}\text{C}^{-1}$ , dépend de la nature et de la qualité du métal déposé. D'après la relation (2- 2), la variation de résistance de chaque élément du pont est donnée par :

$$\Delta R_i = R_{i0} \cdot \beta_i \cdot \Delta T \quad \text{Equation 2- 3}$$

La relation (2- 3) permet alors d'exprimer le signal de sortie en fonction de l'échauffement des résistances selon (Equation 2- 4) :

$$\Delta V = \frac{R_{20} \cdot R_{10}}{(R_{10} + R_{20})^2} \cdot U \cdot (1 - \tau) \cdot (\beta_1 \Delta T_1 - \beta_2 \Delta T_2 + \beta_3 \Delta T_3 - \beta_4 \Delta T_4) \quad \text{Equation 2- 4}$$

où

$$\tau = \left( 1 + \frac{1 + \frac{R_{20}}{R_{10}}}{\beta_1 \Delta T_1 + \beta_3 \Delta T_3 + \frac{R_{20}}{R_{10}} \cdot (\beta_2 \Delta T_2 + \beta_4 \Delta T_4)} \right)^{-1} \quad \text{Equation 2- 5}$$

Si on néglige les variations de résistance de second ordre ( $\tau = 0$ ), on aboutit à une relation générale (2- 6) liant linéairement le signal de sortie aux échauffements des résistances:

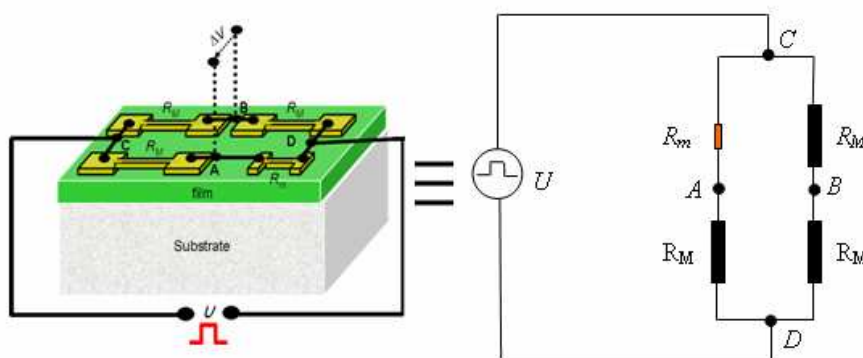
$$\Delta V = \frac{R_2 \cdot R_{10}}{(R_{10} + R_2)^2} \cdot U \cdot (\beta_1 \Delta T_1 - \beta_2 \Delta T_2 + \beta_3 \Delta T_3 - \beta_4 \Delta T_4) \quad \text{Equation 2- 6}$$

### 2.2.2. Description des sondes

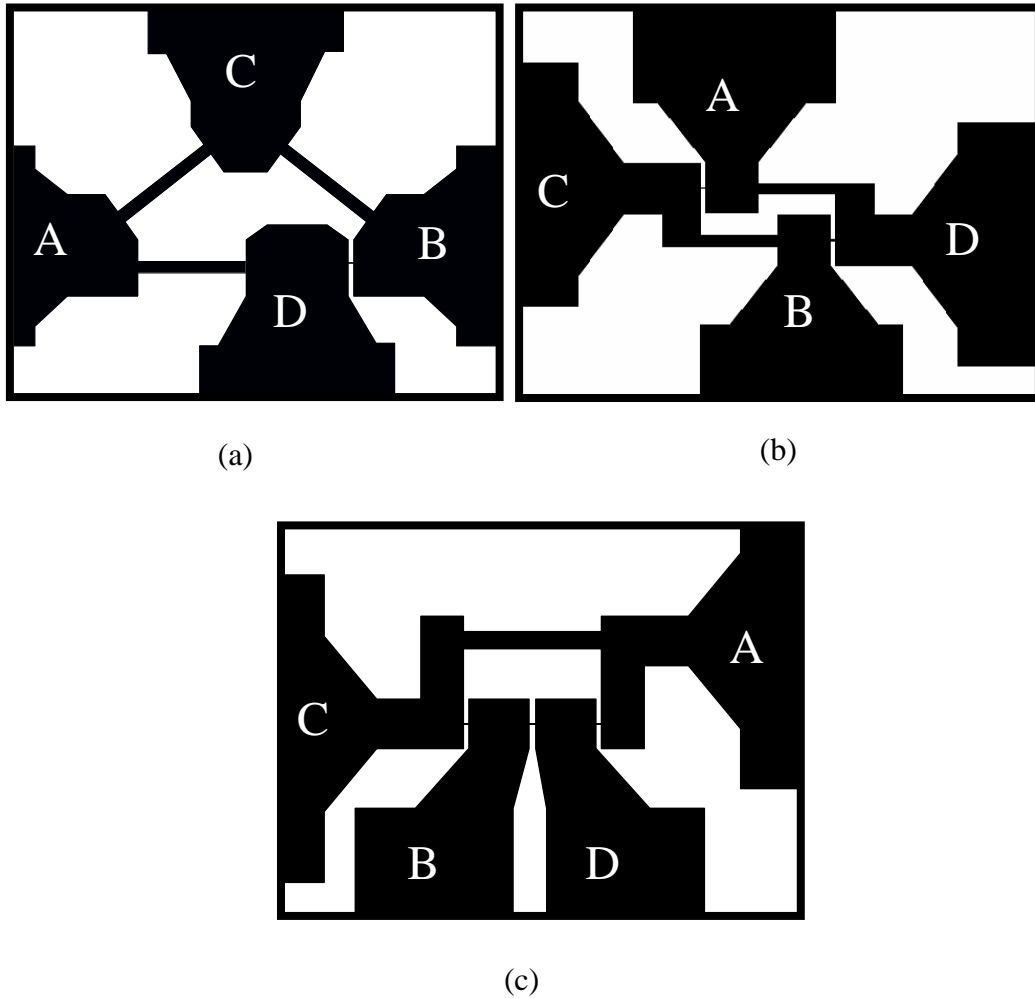
Plusieurs types de sondes sont représentés sur la Figure 2- 4 et la Figure 2- 5. La Figure 2- 3 montre une sonde formée de quatre résistances électriques configurées en pont déposée sur une structure film-substrat. La Figure 2- 4 montre les vues de dessus de trois types de sonde constitués de quatre résistances de même valeur ohmique et de surface d'aires  $L \times \ell$  différentes.  $L$  désigne la longueur et  $\ell$  la largeur des résistances. Les résistances dont l'aire  $L \times \ell$  est petite sont appelées micro-résistances. Les résistances dont l'aire est grande devant celle des micro-résistances sont appelées macro-résistances. La sonde représentée sur la Figure 2- 4a associe une micro-résistance et trois (3) macro-résistances. Celle représentée sur la Figure 2- 4b est constituée de deux (2) micro-résistances et de deux (2) macro-résistances. Celle de la Figure 2- 4c est constituée de trois (3) micro-résistances et d'une (1) macro-résistance. Lors de l'alimentation du pont par une tension  $U$ , les micro-résistances s'échauffent beaucoup plus que les macro-résistances. Ceci est à l'origine de la génération d'un signal de sortie proportionnel à la différence de température entre micro et macro-résistances. Il faut un rapport  $L/\ell$  identique entre les résistances pour maintenir constante la

valeur ohmique. L'application d'une tension  $U$  produit une variation de température et un signal de sortie plus ou moins élevé selon la taille des micro-résistances et les propriétés de la structure.

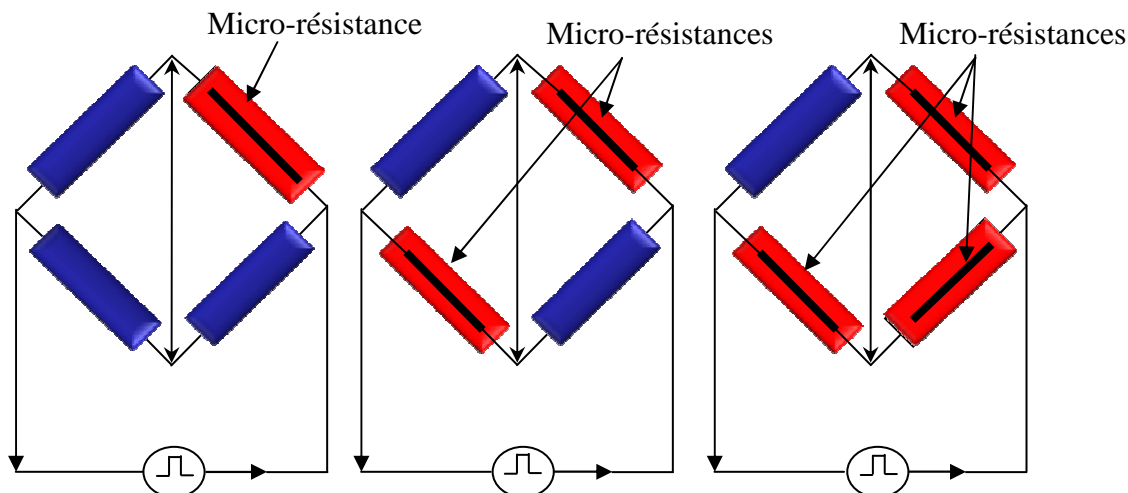
Le rapport de forme longueur/largeur est de 10. Il permet d'obtenir des valeurs de résistance électrique voisine de 50 Ohms avec une épaisseur de métal de quelques dizaines de nanomètres. Cette valeur de résistance permet une adaptation avec les impédances des instruments électroniques de mesure. La fine épaisseur de métal permet par ailleurs de considérer la sonde comme isotherme selon son épaisseur avec une masse thermique pratiquement négligeable. Le rapport de forme longueur/largeur de 10 permet également d'assurer une densité de puissance homogène sur toute la surface des résistances. Les sondes ont été conçues pour qu'il n'y ait pas d'interactions thermiques entre les résistances. Les motifs de sondes occupent une surface totale de quelques  $\text{mm}^2$  à quelques centaines de  $\text{mm}^2$ . L'élément thermosensible peut occuper une surface de quelques  $10 \mu\text{m}^2$  à  $1000 \mu\text{m}^2$ .



*Figure 2- 3. Schéma d'une sonde thermique à pont chaud reportée sur un film déposé sur un substrat. La sonde est constituée de quatre résistances électriques thermosensibles déposées en couches minces de quelques 10 nm d'épaisseur, et configurées en pont de Wheatstone.*



*Figure 2- 4. Différents types de sondes thermiques à pont intégré. (a) sonde avec une micro-résistance et trois macro-résistances. (b) Sonde avec deux micro-résistances et deux macro-résistances. (c) Sonde avec trois micro-résistances et une macro-résistance. L'aire de la surface des macro-résistances a été choisie 100 fois supérieure à celle des micro-résistances (Rapport longueur/largeur des microrésistance : 10). Le signal d'entrée est appliqué entre les bornes C et D. Le signal de sortie est détecté entre les bornes A et B.*



**Figure 2- 5. Représentation schématisée des différents types de sondes thermiques à pont intégré**  
 (a) sonde avec une micro-résistance et trois macro-résistances. (b) Sonde avec deux micro-résistances et deux macro-résistances. (c) Sonde avec trois micro-résistances et une macro-résistance.

**Signal de sortie pour une sonde avec une micro-résistance** (sonde Figure 2- 4a) -  
 La relation (2- 4) permet d'établir que le signal de sortie d'une sonde constituée d'une micro-résistance et de trois macro-résistances est donné par l'expression :

$$\Delta V = \eta.U.(1 - \tau).\beta.(\Delta T_m - \Delta T_M) \tag{Equation 2- 7}$$

Dans laquelle  $\Delta T_m$  et  $\Delta T_M$  sont respectivement les échauffements des micro-résistances et des macro-résistances,  $\eta$  est le facteur de pont donné par  $\eta = \frac{R_M^o \cdot R_m^o}{(R_m^o + R_M^o)^2}$ , et  $\tau$  un coefficient donné par :

$$\tau = \left( 1 + \frac{1 + \frac{R_M^o}{R_m^o}}{\beta \Delta T_m + \beta \Delta T_M \cdot \left( 1 + 2 \cdot \frac{R_M^o}{R_m^o} \right)} \right)^{-1} \tag{Equation 2- 8}$$

Une mesure précise implique l'emploi d'un métal à  $\beta$  élevé et une valeur maximale de  $\eta$ . La valeur maximale de  $\eta$  vaut 0.25. Celle-ci est obtenue lorsque  $R_m^o = R_M^o$ . Dans ce cas, on a :

$$\Delta V = \frac{1}{4}.U.(1-\tau).\beta.(\Delta T_m - \Delta T_M) \quad \text{Equation 2- 9}$$

et

$$\tau = \left( 1 + \frac{2}{\beta(\Delta T_m + 3.\Delta T_M)} \right)^{-1} \quad \text{Equation 2- 10}$$

**Signal de sortie pour une sonde avec deux micro-résistances** (sonde Figure 2- 4b) -

La relation (2- 4) permet d'établir que le signal de sortie d'une sonde constituée de deux micro-résistances et deux macro-résistances est donné par l'expression :

$$\Delta V = 2\eta.U.(1-\tau).\beta(\Delta T_m - \Delta T_M) \quad \text{Equation 2- 11}$$

, dans laquelle

$$\tau = \left( 1 + \frac{1 + \frac{R_{20}}{R_{10}}}{2.\beta_1\Delta T_1 + 2.\beta_2\Delta T_2 \frac{R_{20}}{R_{10}}} \right)^{-1} \quad \text{Equation 2- 12}$$

Si  $R_m^o = R_M^o$ , les expressions (2-11) et (2-12) deviennent

$$\Delta V = \frac{1}{2}.U.(1-\tau).\beta.(\Delta T_m - \Delta T_M) \quad \text{Equation 2- 13}$$

Avec

$$\tau = \left( 1 + \frac{1}{\beta(\Delta T_m + \Delta T_M)} \right)^{-1} \quad \text{Equation 2- 14}$$

**Signal de sortie pour une sonde avec trois micro-résistances** (sonde Figure 2- 4c)-

La relation (2-4) permet d'établir que le signal de sortie d'une sonde constituée de trois micro-résistances et une macro-résistance est donnée par l'expression :

$$\Delta V = \eta.U.(1-\tau).\beta.(\Delta T_m - \Delta T_M) \quad \text{Equation 2- 15}$$

Avec

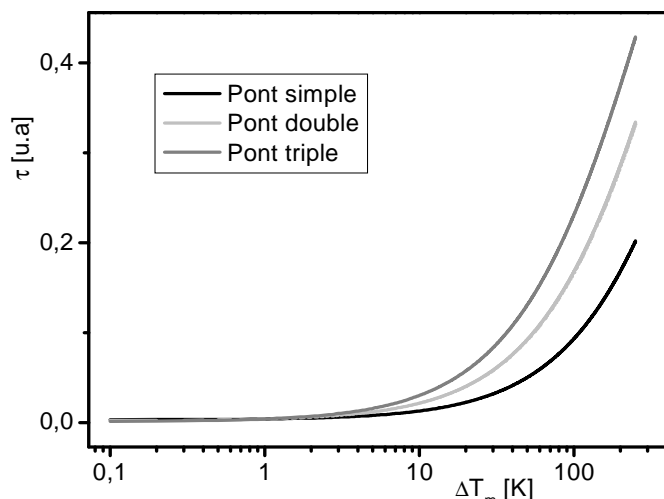
$$\tau = \left( 1 + \frac{1 + \frac{R_M^o}{R_m^o}}{\beta \Delta T_m \cdot \left( 2 + \frac{R_M^o}{R_m^o} \right) + \frac{R_M^o}{R_m^o} \cdot \beta \Delta T_M} \right)^{-1} \quad \text{Equation 2- 16}$$

Si  $R_m^o = R_M^o$ , les expressions (2-13) et (2-14) deviennent :

$$\Delta V = \frac{1}{4} U \cdot (1 - \tau) \cdot \beta \cdot (\Delta T_m - \Delta T_M) \quad \text{Equation 2- 17}$$

et

$$\tau = \left( 1 + \frac{2}{\beta (3 \cdot \Delta T_m + \Delta T_M)} \right)^{-1} \quad \text{Equation 2- 18}$$



**Figure 2- 6.** Valeurs du coefficient  $\tau$  en fonction de l'échauffement  $\Delta T_m$  des micro-résistances pour les trois types de sondes représentées sur la Figure 2-4. On a considéré un coefficient de température des résistances égal à  $2 \times 10^3 \text{ K}^{-1}$  et un échauffement des macro-résistances égal à  $\Delta T_M = 1 \text{ }^\circ\text{C}$ . La courbe continue noire correspond à une sonde avec une micro-résistance et trois macro-résistances (Figure 2-4a, la gris clair à une sonde avec deux micro-résistances et (Figure 2-4b) et la gris foncé à une sonde avec trois micro-résistances (Figure 2-4c).

La Figure 2- 6 montre les valeurs du coefficient  $\tau$  en fonction de l'échauffement  $\Delta T_m$  des micro-résistances pour les trois types de sondes de la Figure 2- 4 avec 1, 2, et 3 micro-résistances (courbes noire, grise claire, et grise foncée). Il apparaît que  $\tau < 0,02$  lorsque  $\Delta T_m$



$< 10 \text{ }^\circ\text{C}$ , de sorte que l'on pourra considérer que le signal de sortie est proportionnel à  $\Delta T_m$ , ceci quelque soit l'architecture de la sonde. En revanche, il conviendra de tenir compte de la variation de  $\tau$  avec la température lorsque  $\Delta T_m > 10 \text{ }^\circ\text{C}$ . Cette variation traduit un effet non-linéaire d'autant plus marqué que le nombre de micro-résistances est grand.

## 2.3. Etude numérique des sondes thermiques

La conception des sondes a nécessité des simulations numériques par éléments finis (COMSOL Multiphysics) afin d'optimiser la forme des résistances thermosensibles et des plots de contact pour obtenir d'une part l'équilibre du pont avant chauffage, et d'autre part une répartition de puissance Joule uniforme dans les micro-résistances.

### 2.3.1. Description du modèle électrothermique

La simulation fait appel à la résolution couplée des équations de la chaleur et du potentiel électrique. L'équation du potentiel électrique est résolue en régime stationnaire dans un domaine 2D délimité par le motif de la sonde gravée sur le matériau. L'équation de potentiel électrique est donnée par :

$$\nabla \cdot (\sigma(T) \cdot \nabla V) = 0 \quad \text{Equation 2-19}$$

$V$  est le potentiel électrique,  $\sigma$  est la conductivité électrique du dépôt conducteur dépendant de la température locale  $T$  selon la loi ;  $\sigma(T) = \sigma_0 / (1 + \beta T)$ , avec  $\sigma_0$  et  $\beta$  sont respectivement la résistivité électrique à la température initiale et le coefficient de température. Le motif est électriquement isolé du support. Un potentiel  $V$  est imposé sur le plot A (lieu d'injection du courant) et un potentiel nul sur le plot B (lieu de retour de courant). La résolution de l'Equation 2-19 permet d'obtenir la répartition de la densité de courant et du potentiel électrique et de calculer par suite la puissance générée par effet Joule grâce à la formule 2-20:

$$Q_J = \sigma(T) \cdot \nabla V^2 \quad \text{Equation 2-20}$$

Par ailleurs, l'équation de la chaleur est résolue en régime non stationnaire dans un milieu non homogène 3D avec une puissance volumique  $Q_S = Q_J \cdot e_0$  ( $e_0$  épaisseur du ruban) dans la sonde métallique calculée avec l'équation 2-20. L'équation de la chaleur est :

$$\rho.C_p \cdot \frac{\partial T}{\partial t} + \nabla \cdot (-k \cdot \nabla T) = Q_s \quad \text{Equation 2- 21}$$

Avec  $k$  la conductivité thermique.

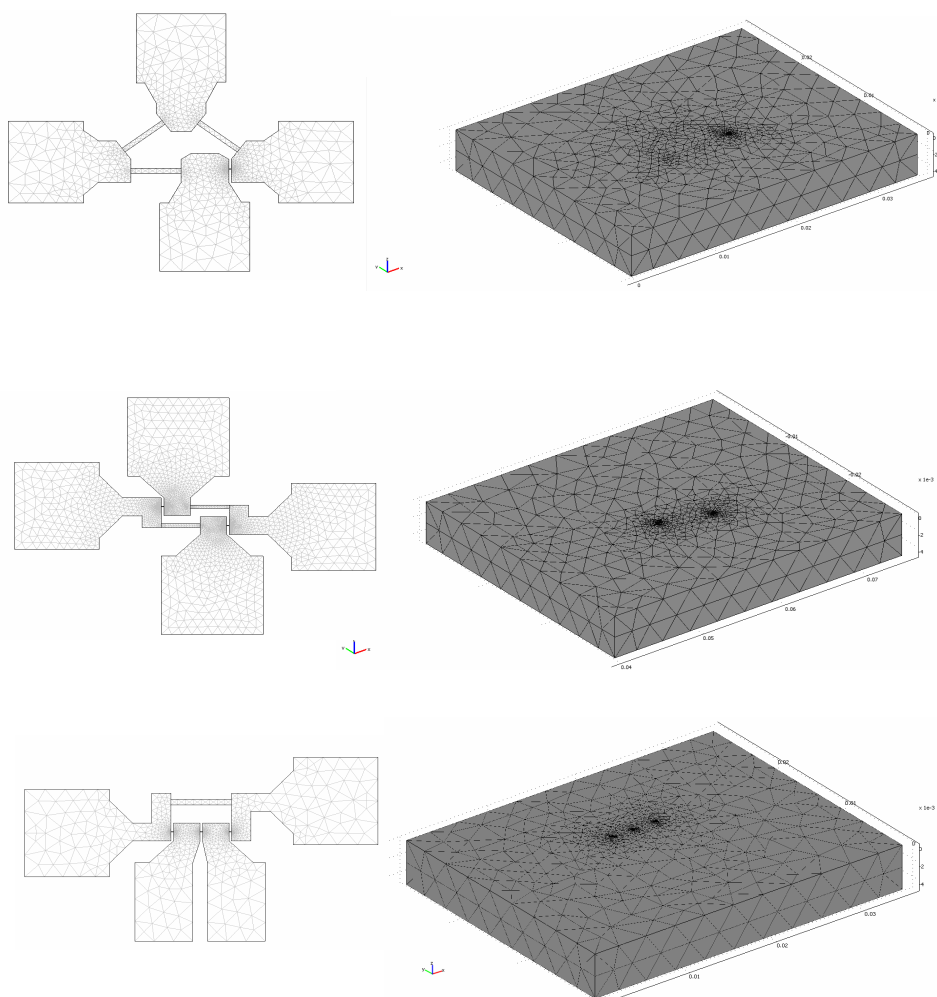
Les frontières extérieures de l'échantillon sont considérées thermiquement isolées. La température de la face inférieure du matériau support et la température initiale sont prises égales à zéro. Le calcul du champ de température permet de calculer la conductivité électrique du métal en tout point et à tout instant et de déterminer ainsi l'évolution du potentiel de sortie.

### 2.3.2. Résultats

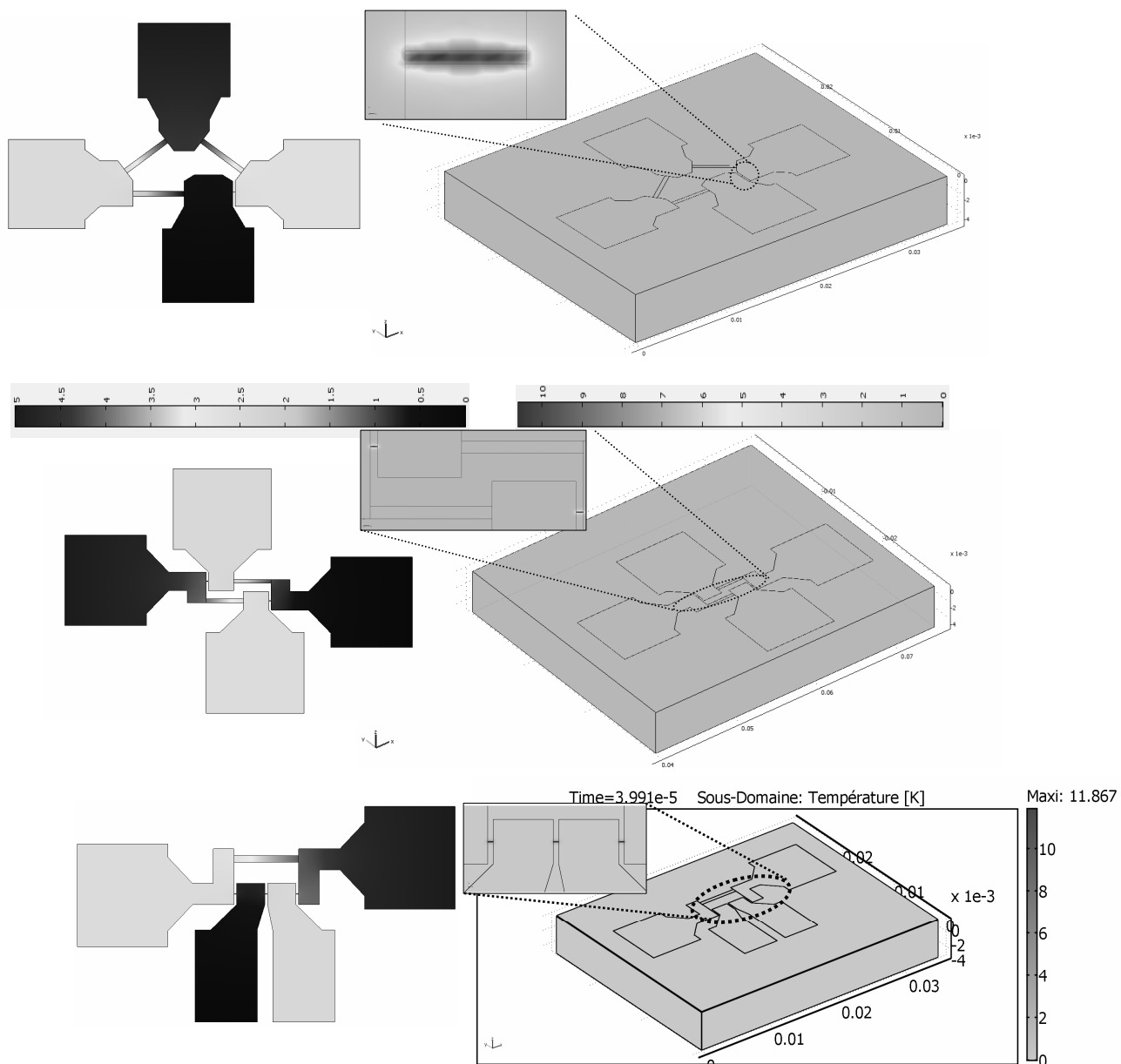
**Analyse des champs électrothermiques-** On présente des résultats de simulation obtenus sur les sondes avec une, deux et trois micro-résistances. Les maillages sont présentés sur la Figure 2- 7. Le maillage des trois sondes est surfacique pour le calcul de  $V$  (maillages situés à gauche) et volumique dans l'échantillon sonde-matériau pour le calcul de  $T$  (maillages situés à droite). Le maillage est dense dans les micro-résistances et s'élargit progressivement. La Figure 2- 8 montre des résultats de simulation obtenus sur une sonde en platine ( $\beta = 2,1 \times 10^{-3} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$ , conductivité électrique =  $2,5 \times 10^7 \text{ S.m}^{-1}$  à 300 K) avec des micro-résistances de  $20 \text{ } \mu\text{m} \times 200 \text{ } \mu\text{m}$  déposées sur une plaque de silicium de  $30 \text{ mm} \times 30 \text{ mm} \times 0,5 \text{ mm}$ . Les dimensions des macro-résistances sont de  $200 \text{ } \mu\text{m} \times 2000 \text{ } \mu\text{m}$  et celles des plots de contact de  $8 \times 7 \text{ mm}^2$ . La tension d'alimentation est  $U = 5 \text{ V}$ , les résistances du pont sont de l'ordre de 20 Ohm et la puissance générée dans chaque résistance est de l'ordre 0,35 W. Les distributions du potentiel sont présentées sur les figures de gauche. Les figures de droite mettent en évidence la bonne uniformité de la puissance sur les micro-résistances à l'exception des zones proches des plots de contact en raison de la constriction des lignes de courant électrique.

La Figure 2-9 montre une vue en coupe de la distribution de température au voisinage des micro-résistances à  $t = 10 \text{ } \mu\text{s}$ . La Figure 2- 10, montre que l'échauffement des micro-résistances est plus de 100 fois plus important que celui des macro-résistances pour des temps inférieurs à  $10^{-4}$  seconde et que l'échauffement est très localisé autour des micro-résistances. Dans tout les cas, lorsque  $t < 10^{-4} \text{ s}$ , il sera possible de négliger la contribution de l'élévation de la température des macro-résistances dans le signal de sortie. D'autre part, la structure de la sonde pourra être simplifiée en l'assimilant à une seule micro-résistance. La Figure 2-11

montre que le champ de température entre 100 ns et 40  $\mu$ s demeure confiné autour de la micro-résistance, ce qui indique l'absence d'interaction entre les résistances de la sonde. Ceci est confirmé par la Figure 2-12 qui met en évidence que l'évolution de la température moyenne d'une micro-résistance calculée sans tenir compte de l'ensemble du motif de la sonde est la même que celle calculée par le modèle électrothermique avec une description fine de la sondes. Il apparaît de petites différences liées à la concentration du courant aux extrémités de la micro-résistance.



**Figure 2- 7. Maillages utilisés pour la simulation électrothermique des sondes avec une (a), deux (b) et trois micro-résistances (c). Les maillages 2D situés à gauche ont été utilisés pour le calcul des champs de potentiel électrique. Les maillages 3D situés à droite ont été utilisés pour le calcul des champs de température dans le système sonde-échantillon.**



*Figure 2- 8. Résultats de simulation électrothermique par les éléments finis des sondes à une (a), deux (b) et trois micro-résistances 'c). Les figures de gauche donnent les champs de potentiel électrique. Les figures de droite donnent les champs de température*

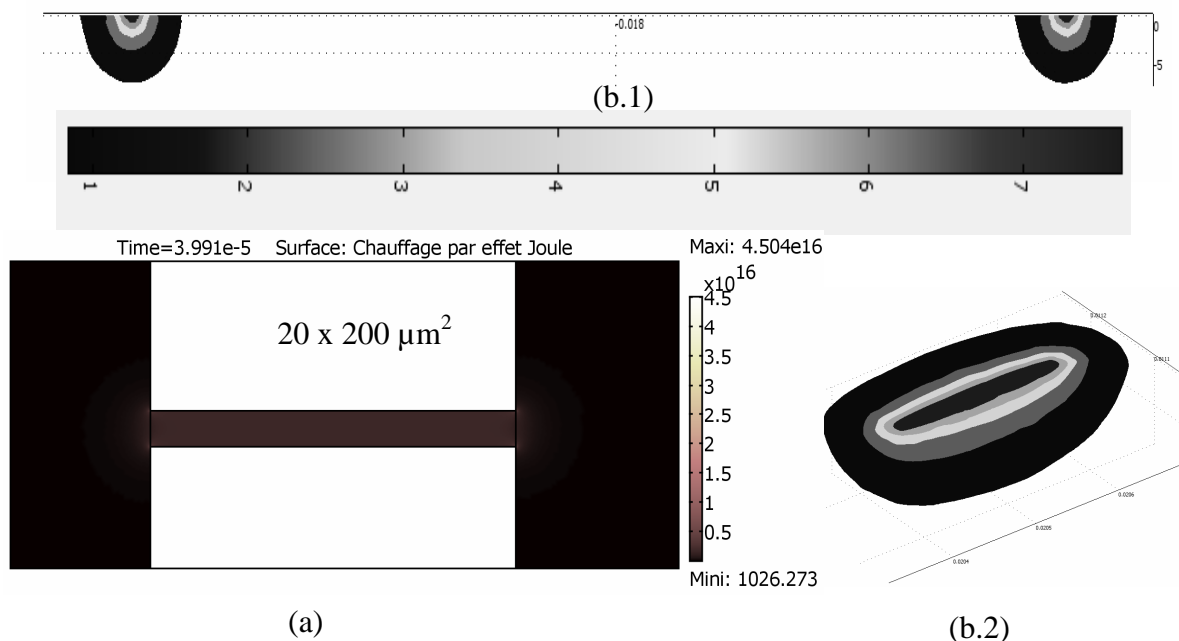


Figure 2- 9. Densité volumique de puissance et distribution de température dans une micro-résistance (a) distribution de puissance (b) distribution de température

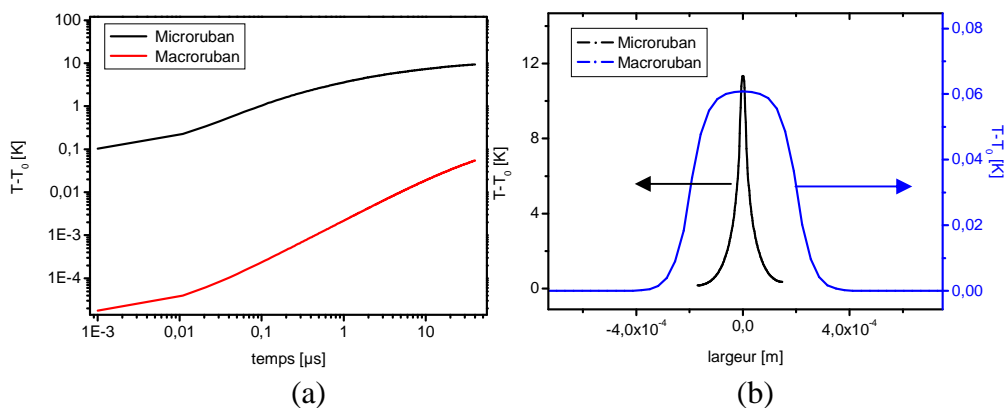
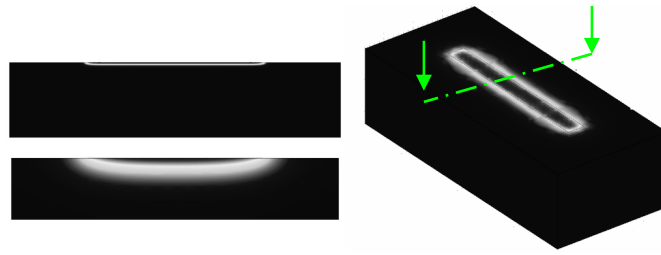
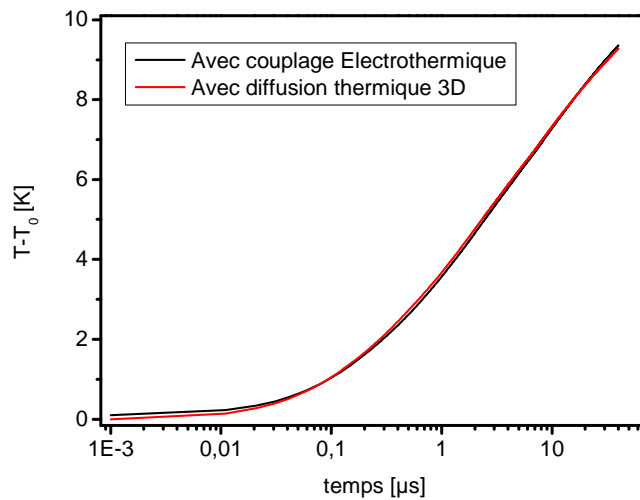


Figure 2- 10. Distributions spatio-temporelles de température calculées pour une micro-résistance de  $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$  et une macro-résistance de  $200 \mu\text{m} \times 2000 \mu\text{m}$  déposées sur silicium et dissipant une puissance de  $0,35\text{W}$  par résistance. (a) Evolution temporelle de la température de la micro-résistance (courbe continue noire) et de la macro-résistance (courbe continue rouge). (b) Distribution de température selon la largeur des résistances à l'instant  $t = 40 \mu\text{s}$ . La courbe continue noire est relative à la micro-résistance. Celle en bleue est relative à la macro-résistance

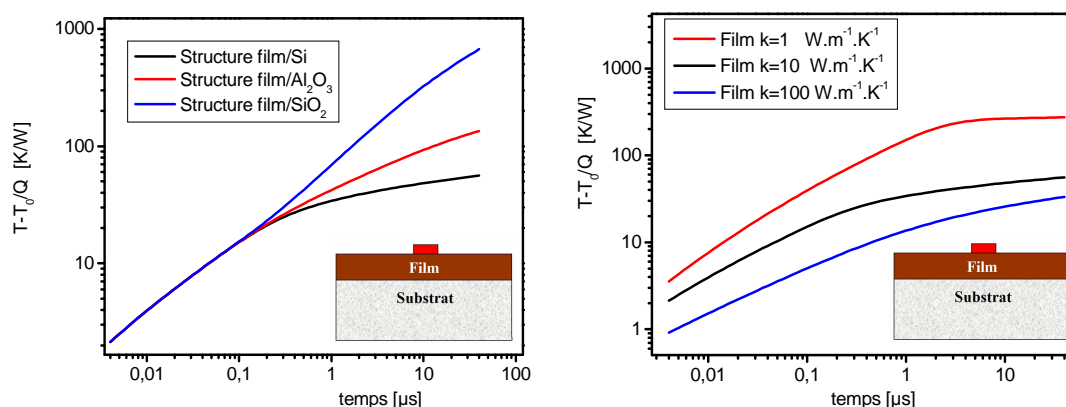


*Figure 2- 11. Champ de température autour d'une micro-résistance de  $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$  entre  $100\ \text{ns}$  et  $40\ \mu\text{s}$ .*



*Figure 2- 12. Evolution de la température moyenne d'une micro-résistance calculée sans tenir compte de l'ensemble du motif de la sonde (courbe continue rouge) et par le modèle électrothermique avec une description fine de la sonde (courbe continue noire). Les petites différences sont liées à l'existence de concentration du courant aux extrémités de la micro-résistance.*

**Influence de la nature des matériaux-** nous avons calculé le signal de sortie de la sonde à une micro-résistance de  $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$ , lorsque celle-ci est reportée sur différents substrats. Les échantillons sont constitués de films homogènes de  $1\ \mu\text{m}$  d'épaisseur déposés sur des substrats de différente nature (silicium, saphir, silice). La Figure 2- 13 montre les signaux de température calculés sur différentes structures film-substrat. Il apparaît que les signaux de sortie sont très sensibles aux propriétés thermiques des films et des substrats (voir Figure 2- 13a et Figure 2- 13b).



*Figure 2- 13. Signal de température de sonde consécutive à une brusque alimentation électrique sur différentes structures film-substrat, (a) Film de  $1\ \mu\text{m}$  d'épaisseur de conductivité thermique égale à  $10\ \text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  déposé sur des substrats de silicium (courbe noire), de saphir (courbe rouge), et de silice (courbe bleue). (b) Films de  $1\ \mu\text{m}$  d'épaisseur de différentes conductivités thermiques déposés sur du silicium.*

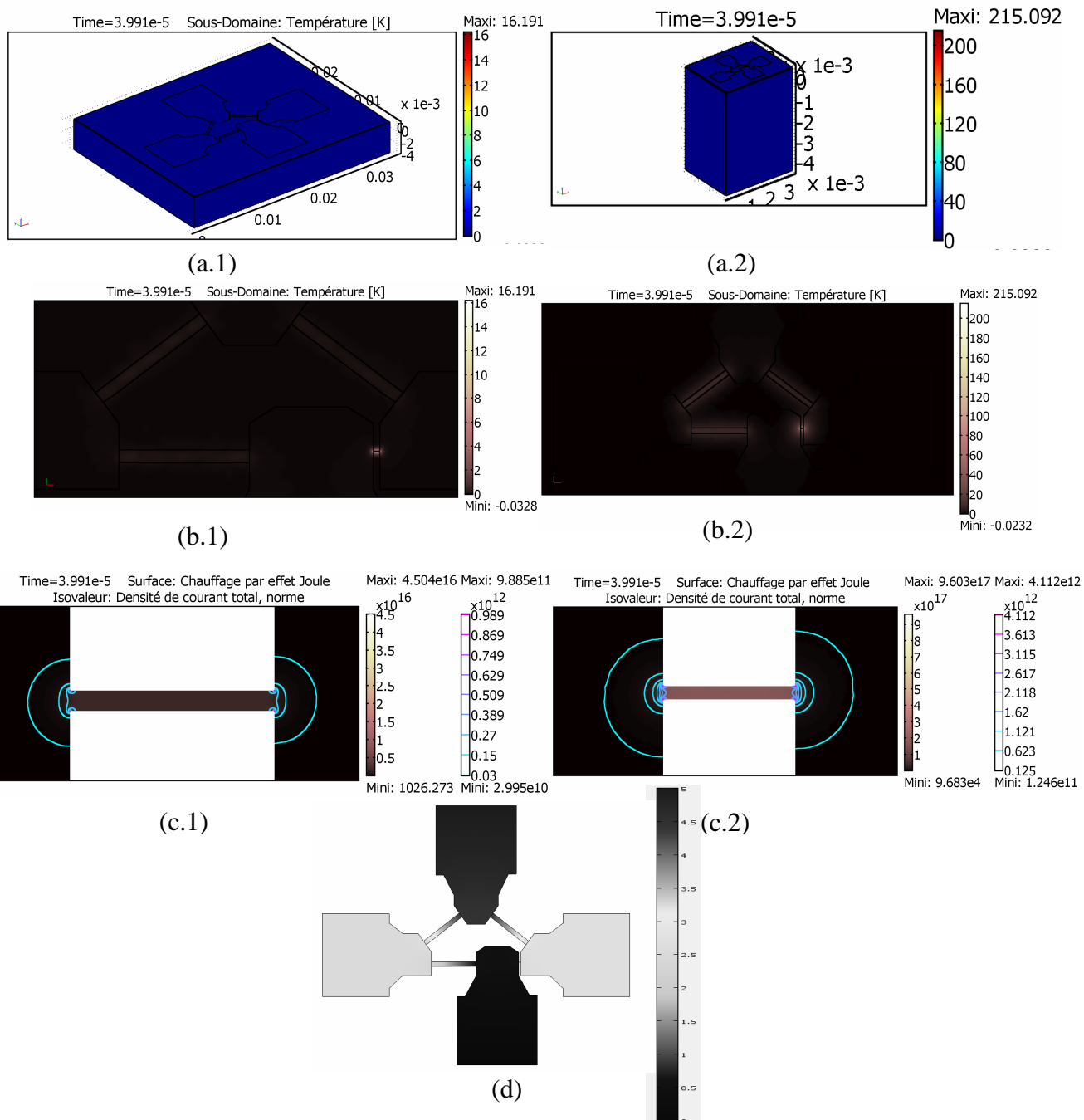
**Effet de la miniaturisation des sondes-** Les résultats de simulation de deux sondes de taille différente déposées sur du silicium sont donnés sur la Figure 2- 14. L'une comprend une micro-résistance de  $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$ , et l'autre une micro-résistance de  $2\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ . La Figure 2- 14a et la Figure 2- 14b montrent la distribution de température, respectivement. Pour une tension d'alimentation donnée, la plus petite micro-résistance s'échauffe beaucoup plus (voir Figure 2-14). La Figure 2-14 montre aussi une concentration des lignes de courant au niveau des plots de contact. A densité de puissance constante, il apparaît que la diminution de taille de la micro-résistance réduit la concentration de courant à ce niveau. L'évolution des signaux de température des deux sondes est présentée sur la Figure 2- 15. A  $U$  constant, le signal de sortie de la sonde avec la micro-résistance de  $2\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$  est plus important.

## Chapitre 2 : Sondes thermiques et modèles physiques associés

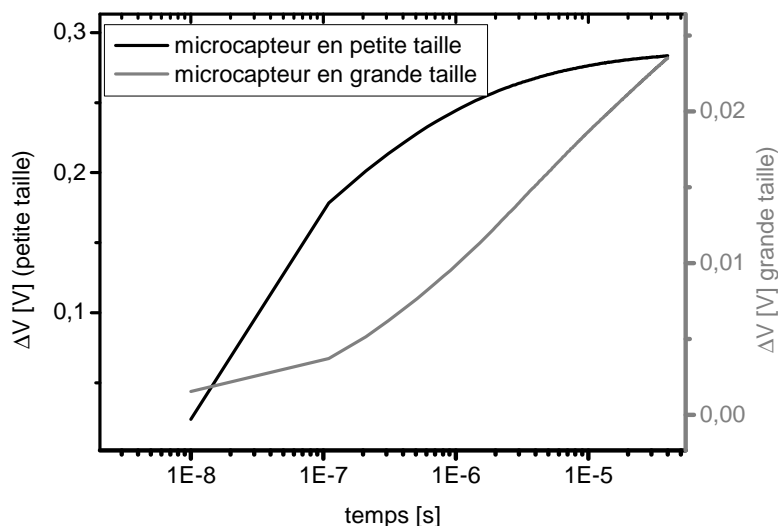
Nous avons calculé le signal de sortie pour une micro-résistance de  $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$  et une autre de  $2\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$  lorsqu'elles sont reportées sur un substrat anisotrope d'une part ( $k_z = 148\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $k_x = k_y = 50\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ) et isotrope, d'autre part ( $k_z = k_x = k_y = 148\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ). Les résultats sont présentés sur la Figure 4- 16. Il apparaît que le signal de sortie est différent selon que la micro-résistance soit sur un matériau isotrope ou anisotrope. La Figure 2- 16 montre que les premiers instants du signal d'une micro-résistance de  $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$  sur substrat isotrope et anisotrope diffère peu en raison du fait que, sur cette fenêtre de temps, la chaleur diffuse préférentiellement selon  $z$ . Ce phénomène n'est pas observé avec une micro-résistance de  $2\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$  en raison du caractère fortement tridimensionnel de la diffusion.



## Chapitre 2 : Sondes thermiques et modèles physiques associés

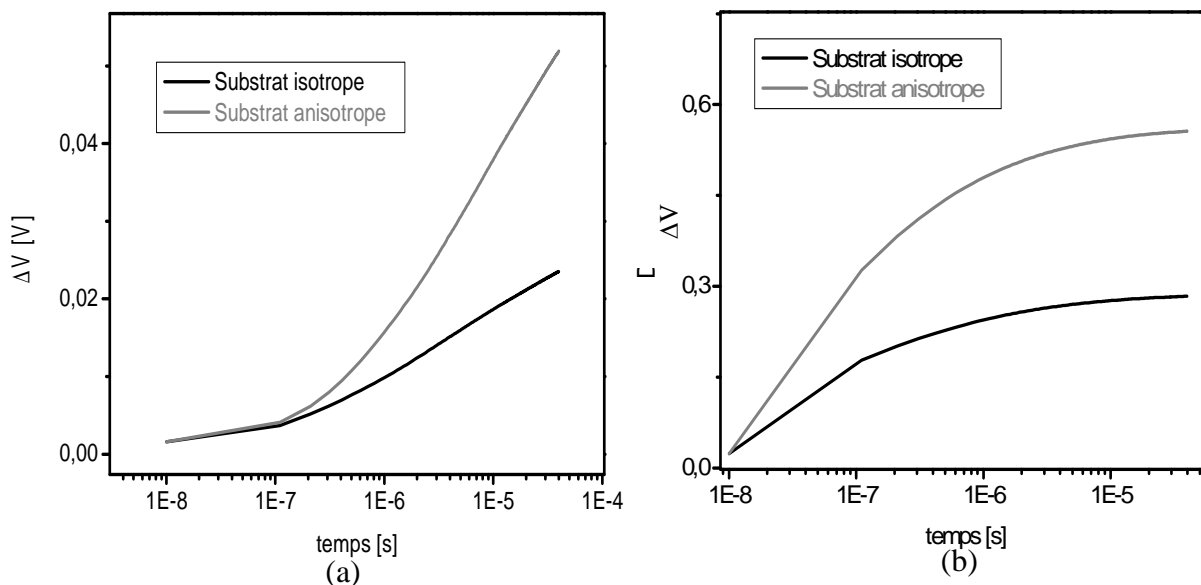


**Figure 2- 14. Comparaison entre la tension de sortie du pont simple pour (1) une grande taille (avec microruban de 20 μm x 200 μm) et (2) une petite taille (avec microruban de 2 μm x 20 μm). Avec (a) la distribution 3D de la température, (b) la distribution 2D de la température et (c) la densité de puissance généré par effet Joule et la densité de courant électrique.**



\*

*Figure 2- 15. Signaux de sortie d'une sonde thermique avec une micro-résistance de différentes dimensions. La courbe continue noire est relative à une micro-résistance de  $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$ . La courbe continue grise est relative à une micro-résistance de  $2\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ .*



*Figure 2- 16. Signaux de sortie d'une sonde thermique avec une micro-résistance reportée sur un matériau isotrope (courbes continues grises) et anisotrope (courbes continues noires). (a) micro-résistance  $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$ . (b) micro-résistance  $2\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ .*

## 2.4. Description des modèles physiques

Nous avons vu dans le paragraphe précédent que les propriétés thermiques de matériaux peuvent être déterminées par ajustement de l'évolution de température des sondes avec un modèle sur une fenêtre de temps comprise entre  $10^{-9}$  et  $10^{-3}$  secondes. Le calcul de la température nécessite la résolution de l'équation de diffusion de la chaleur dans l'ensemble sonde-échantillon. La résolution par la méthode aux éléments finis conduit à des temps de calcul important du fait de la grande différence d'épaisseur des matériaux. Ce problème nous a conduit à mettre en œuvre une résolution semi-analytique par les transformations intégrales. Nous présentons ici les modèles physiques sur lesquels s'appuie la mesure pour toutes les dimensions des sondes. Nous établirons des modèles simplifiés et nous chercherons à déterminer la taille de sonde et la fenêtre de temps dans lesquels la conductivité thermique et la capacité calorifique peuvent être déterminées sur la même évolution de température.

### 2.4.1. Structure des échantillons

Les structures possibles des échantillons sont représentées sur la Figure 2- 17 et la Figure 2- 18. La

Figure 2- 17 représente une sonde (longueur  $y_0$ , largeur  $x_0$ , épaisseur  $e_0$ ) sur un substrat homogène (longueur  $L_y$ , largeur  $L_x$ , épaisseur  $e_s$ ) dans un repère cartésien XYZ dont l'origine est placée au milieu de la sonde. Les axes OX et OY sont dirigés selon la largeur et

la longueur de la sonde, et l'axe OZ selon la profondeur du substrat. La sonde, initialement à température ambiante, génère brusquement une puissance  $Q$  constante.

La Figure 2- 18a, représente une sonde sur substrat. La Figure 2- 18b représente une sonde sur couche mince déposée sur substrat. Cette structure permet de mesurer les propriétés thermiques de la couche mince. La Figure 2- 18c représente une sonde reportée sur plusieurs couches de matériaux sur substrat. La Figure 2- 18d représente une sonde enterrée au sein de couches de matériaux.

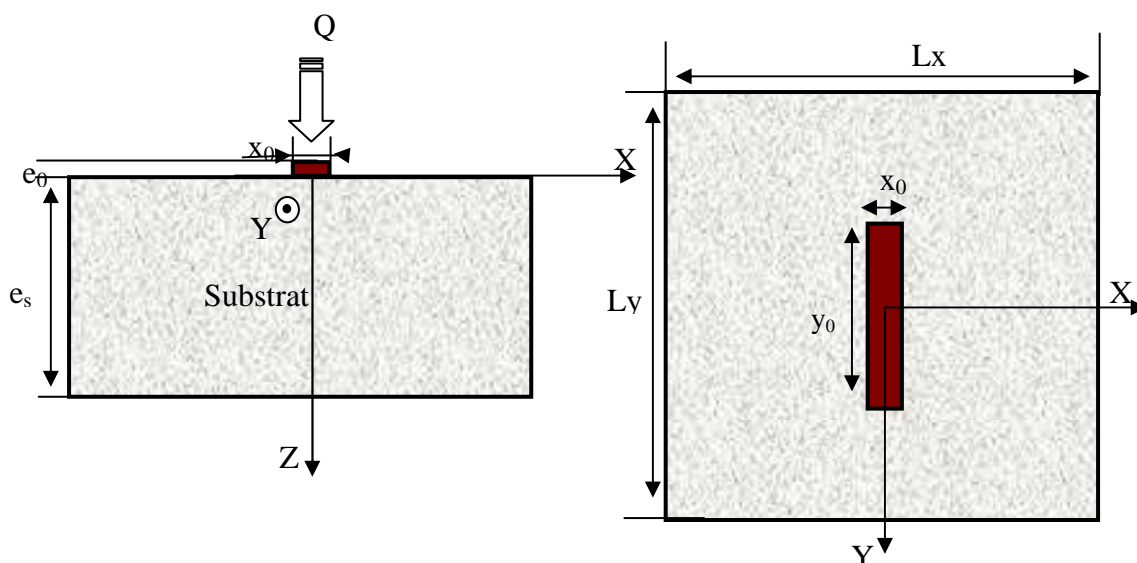


Figure 2- 17. Caractéristiques géométriques d'une structure sonde-substrat.

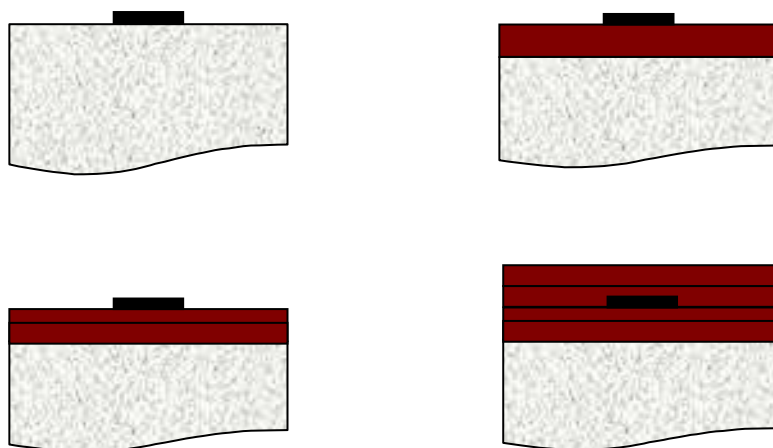


Figure 2- 18. Structures prises en compte dans les modèles physiques correspondantes à différentes implantations de sonde, (a) sonde sur substrat (b) sonde sur une couche mince de

*matériau déposée sur substrat, (c) sonde sur plusieurs couches minces déposées sur substrat, (d) sonde enterrée dans une structure multi-couches déposées sur substrat.*

## 2.4.2. Description des modèles

**Sonde sur substrat-** Le champ de température dans le substrat satisfait l'équation de la chaleur :

$$\frac{\partial^2 \theta_s}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \theta_s}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \theta_s}{\partial z_s^2} - \frac{1}{a_s} \cdot \frac{\partial \theta_s}{\partial t} = 0$$

*Equation 2- 22*

pour  $-\frac{L_x}{2} < x < \frac{L_x}{2}$ ,  $-\frac{L_y}{2} < y < \frac{L_y}{2}$ ,  $0 < z < e_s$  et  $t > 0$

$\theta_s$  : écart (T(t) - T<sub>0</sub>) de température par rapport et la valeur initiale

$a_s = k / C_p \cdot \rho$  diffusivité thermique avec k la conductivité thermique, C<sub>p</sub> la chaleur

spécifique et (ρ) la densité. En supposant l'absence de pertes de chaleur sur la face supérieure de la structure, les conditions aux frontières sont données par :

$$\begin{cases} -k_s \cdot \frac{\partial \theta_s}{\partial z} = \varphi & \text{pour } -x_0/2 < x < x_0/2 \text{ et } -y_0/2 < x < y_0/2 \\ -k_s \cdot \frac{\partial \theta_s}{\partial z} = 0 & \text{ailleurs} \end{cases}$$

*Equation 2- 23*

à  $z = 0$  pour  $t > 0$

La température de la face inférieure du substrat est prise égale à 0.

$$\theta = 0 \text{ à } z_s = e_s \text{ pour } t > 0$$

*Equation 2- 24*

Les faces latérales du substrat sont isolées :

$$\frac{\partial \theta_s}{\partial x} = \frac{\partial \theta_s}{\partial y} = 0 \text{ à } x = \pm \frac{L_x}{2} \text{ et } y = \pm \frac{L_y}{2} \text{ pour } t > 0$$

*Equation 2- 25*

La condition initiale est donnée par:

$$T_s=0 \text{ partout à } t=0 \quad \text{Equation 2- 26}$$

Après avoir appliqué la transformée de Laplace [22]

$$\bar{T}(x, y, z, s) = \int_0^{+\infty} T(x, y, z, t) \cdot \exp(-s \cdot t) \cdot dt \text{ aux équations 2-22, 2-23 et 2-24 (voir Annexe II) on}$$

obtient le système suivant dans lequel,  $s$  est la variable de Laplace :

$$\frac{\partial^2 \bar{\theta}_s}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \bar{\theta}_s}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \bar{\theta}_s}{\partial z_s^2} - \frac{1}{a_s} \cdot \bar{\theta}_s = 0 \quad \text{Equation 2- 27}$$

$$\text{pour } -L_x/2 < x < L_x/2, -L_y/2 < y < L_y/2, 0 < z < e_s \text{ et } t > 0$$

$$\left\{ \begin{array}{l} -k_s \cdot \frac{\partial \bar{\theta}_s}{\partial z} = \bar{\varphi} \text{ Pour } -x_0/2 < x < x_0/2 \text{ et } -y_0/2 < y < y_0/2 \\ -k_s \cdot \frac{\partial \bar{\theta}_s}{\partial z} = 0 \text{ Ailleurs} \end{array} \right. \quad \text{Equation 2- 28}$$

$$\text{à } z = 0$$

$$\bar{\theta}_s = 0 \text{ à } z_s = e_s \quad \text{Equation 2- 29}$$

et,

$$\frac{\partial \bar{\theta}_s}{\partial x} = \frac{\partial \bar{\theta}_s}{\partial y} = 0 \text{ à } x = -L_x/2 \text{ et } x = L_x/2, y = -L_y/2 \text{ et } y = L_y/2 \quad \text{Equation 2- 30}$$

Si nous appliquons la double transformée de Fourier finie en cosinus [23] selon les deux directions d'espace  $x$  et  $y$  :

$$\tilde{\bar{\theta}}(z, n, m, s) = \int_{-\frac{L_x}{2}}^{\frac{L_x}{2}} \int_{-\frac{L_y}{2}}^{\frac{L_y}{2}} \bar{\theta}(x, y, z, s) \cos(\alpha_n x) \cdot \cos(\beta_m y) dx dy \quad \text{Equation 2- 31}$$

avec les valeurs propres définies par :

$$\alpha_n = \frac{n \cdot \pi}{L_x} \quad \text{Equation 2- 32}$$

$$\beta_m = \frac{m \cdot \pi}{L_y} \quad \text{Equation 2- 33}$$

Après quelques manipulations algébriques sur les équations (2-27, 2-28 et 2-31), on obtient la solution générale du système sous la forme (voir Annexe II) :

$$\bar{\theta}(x, y, z = 0, p) = 4 \cdot \sum_{n=0}^N \sum_{m=0}^M \tilde{\theta}(n, m, z = 0, p) \cdot \cos(\alpha_n x) \cdot \cos(\beta_m y) / (\alpha_n^2 \cdot \beta_m^2) \quad \text{Equation 2- 34}$$

La température moyenne de la sonde est donnée par :

$$\bar{\theta}_m(s) = \frac{1}{y_0 \cdot x_0} \int_{-\frac{x_0}{2}}^{\frac{x_0}{2}} \int_{-\frac{y_0}{2}}^{\frac{y_0}{2}} \bar{\theta}(x, y, z = 0, s) \cdot dx \cdot dy \quad \text{Equation 2- 35}$$

En intégrant l'expression 2-34 dans l'intégrale 2-35, on obtient une relation liant température et densité de flux de chaleur  $\bar{\varphi}$  de la sonde dans l'espace de Laplace :

$$\bar{T}_m(s) = \bar{Z}_T \cdot \bar{\varphi} \quad \text{Equation 2- 36}$$

$\bar{Z}$  est l'impédance donnée par l'expression

$$\begin{aligned} \bar{Z}_T = & \frac{1}{L_y} \cdot \frac{1}{L_x} \left\{ Z_{0,0} \cdot \Phi_{0,0} + 2 \cdot \sum_{n=1}^N \left[ \frac{\sin(\alpha_n \cdot x_0)}{\alpha_n \cdot x_0} \right] \cdot Z_{n,0} \cdot \Phi_{n,0} + 2 \cdot \sum_{m=1}^M \left[ \frac{\sin(\beta_m \cdot y_0)}{\beta_m \cdot y_0} \right] \cdot Z_{0,m} \cdot \Phi_{0,m} \right. \\ & \left. + 4 \cdot \sum_{n=1}^N \sum_{m=1}^M \left[ \frac{\sin(\alpha_n \cdot x_0)}{\alpha_n \cdot x_0} \right] \left[ \frac{\sin(\beta_m \cdot y_0)}{\beta_m \cdot y_0} \right] \cdot Z_{n,m} \cdot \Phi_{n,m} \right\} \quad \text{Equation 2- 37} \end{aligned}$$

Dans laquelle  $\Phi_{n,m}$  est définie par :

$$\Phi_{n,m} = \begin{cases} \frac{\sin(\alpha_n \cdot x_0)}{\alpha_n} \cdot \frac{\sin(\beta_m \cdot y_0)}{\beta_m}, & n \neq 0 \quad \text{et} \quad m \neq 0 \\ y_0 \cdot \frac{\sin(\alpha_n \cdot x_0)}{\alpha_n} & n \neq 0 \quad \text{et} \quad m = 0 \\ x_0 \cdot \frac{\sin(\beta_m \cdot y_0)}{\beta_m} & n = 0 \quad \text{et} \quad m \neq 0 \\ x_0 \cdot y_0 & n = 0 \quad \text{et} \quad m = 0 \end{cases} \quad \text{Equation 2- 38}$$

$$\text{Et } Z(n, m, s) = Z^s(n, m, s) = \frac{\tanh(\zeta_{n,m}^s \cdot e_s)}{k_s \cdot \zeta_{n,m}^s} \quad \text{Equation 2- 39}$$

$$\text{Avec, } \zeta_{n,m}^s = \sqrt{\alpha_n^2 + \beta_m^2 + \frac{s}{a_s}}$$

Si le substrat est semi-infini, on a :

$$Z^s(n, m, p) = \frac{1}{k_s \cdot \zeta_{n,m}^s} \quad \text{Equation 2- 40}$$

Pour un matériau ayant une conductivité thermique suivant l'axe z ( $k_z$ ) et une conductivité dans le plan xoy ( $k_x$ ), les équations précédentes deviennent :

$$Z^s(n, m, p) = \frac{1}{k_{s,z} \cdot \zeta_{n,m}^s} \quad \text{Equation 2- 41}$$

avec,

$$\zeta_{n,m}^s = \sqrt{\frac{k_{s,x}}{k_{s,z}} \alpha_n^2 + \beta_m^2 + \frac{s}{a_s}}, \quad a_s = \frac{k_{s,z}}{Cp_s \rho_s} \quad \text{Equation 2- 42}$$

**Sonde sur structure film-substrat-** La résolution de l'équation de la chaleur s'effectue dans le film supposé anisotrope et le substrat (voir Figure 2- 18). L'équation de la chaleur est donnée dans les deux domaines par :

$$\begin{cases} \frac{\partial^2 \theta_s}{\partial z^2} + \frac{\partial^2 \theta_s}{\partial y^2} + \frac{\partial^2 \theta_s}{\partial x_s^2} - \frac{1}{a_s} \cdot \frac{\partial \theta_s}{\partial t} = 0 \\ \frac{\partial^2 \theta_f}{\partial z^2} + \frac{k_x}{k_z} \cdot \frac{\partial^2 \theta_f}{\partial y^2} + \frac{k_x}{k_z} \cdot \frac{\partial^2 \theta_f}{\partial x_f^2} - \frac{1}{a_f} \cdot \frac{\partial \theta_f}{\partial t} = 0 \end{cases} \quad \text{Equation 2- 43}$$

pour  $0 < x < Lx, 0 < y < Ly, 0 < z_f < e_f, 0 < z_s < e_s$  et  $t > 0$ .

où :  $k_x$ ,  $k_z$ , et  $a_f$  sont respectivement, la conductivité thermique dans le plan xoy, la conductivité thermique suivant l'axe z, et la diffusivité thermique. A l'interface entre le film et le substrat, nous supposons une continuité du flux thermique :

$$-k_z \cdot \frac{\partial \theta_f}{\partial z_f} \Big|_{z_f=e_f} = -k_s \cdot \frac{\partial \theta_s}{\partial z_s} \Big|_{z_s=0} \quad \text{Equation 2- 44}$$

L'Equation 2-37 reste valable mais l'impédance thermique du système  $Z(n, m, p)$  dans l'espace complexe Fourier-Laplace, est donnée par :



$$Z_{n,m} = \frac{1}{k_z \cdot \zeta_{n,m}^f} \cdot \frac{k_z \cdot \zeta_{n,m}^f \cdot Z^s(n,m,p) + \tanh(\zeta_{n,m}^f \cdot e_f)}{1 + k_z \cdot \zeta_{n,m}^f \cdot Z^s(n,m,p) \cdot \tanh(\zeta_{n,m}^f \cdot e_f)} \quad \text{Equation 2- 45}$$

avec  $\zeta_{n,m}^f = \sqrt{\frac{k_x}{k_z} \cdot \alpha_n^2 + \frac{k_x}{k_z} \cdot \beta_m^2 + \frac{s}{a_f}}$ , et  $Z^s(n,m,p)$  est l'impédance du substrat dans

l'espace Fourier-Laplace est donnée par l'Equation 2-40.

**Sonde sur structure multicouche-** Dans le cas d'une structure constituée d'un empilement de matériaux, la formule générale de l'impédance thermique du système dans l'espace de Fourier-Laplace, s'écrit :

$$\left\{ \begin{array}{l} Z_{n,m}^k = \frac{1}{k^k \cdot \zeta_{n,m}^k} \cdot \frac{k^k \cdot \zeta_{n,m}^k \cdot Z^{k-1} + \tanh(\zeta_{n,m}^k \cdot e^k)}{1 + k^k \cdot \zeta_{n,m}^k \cdot Z^{k-1} \cdot \tanh(\zeta_{n,m}^k \cdot e^k)}, k = 2 : i \\ \zeta_{n,m}^k = \sqrt{k_{xz}^k \cdot \left(\frac{n \cdot \pi}{Lx}\right)^2 + k_{xz}^k \cdot \left(\frac{m \cdot \pi}{Ly}\right)^2} + s \frac{c \cdot k^k \cdot \rho_k}{k_z^k}, k_{xz}^k = k_x^k / k_z^k \\ Z_{n,m}^1 = \tanh^p(\zeta_{n,m}^1 \cdot e^1) / k^1 \cdot \zeta_{n,m}^1 \quad p = \begin{cases} 1 & \text{Face arrière isotherme} \\ 0 & \text{Face arrière semi - infinie} \\ -1 & \text{Face arrière adiabatique} \end{cases} \end{array} \right. \quad \text{Equation 2- 46}$$

Si la structure comprend des résistances d'interface,  $R^{k-1, k}$  entre la couche k+1 et k, l'Equation 2-46 reste valable si l'on remplace  $Z_{n,m}^k$  par  $(Z_{n,m}^k + R^{k,k+1})$ .

**Sonde enterrée-** Pour faire le calcul, la structure est subdivisée en deux sous-structures, l'une constituée de l'empilement des matériaux placés au dessus de la sonde et l'autre de ceux situés sous la sonde (voir Figure 2- 19). On peut alors appliquer la technique décrite dans le paragraphe précédent aux deux sous-structures et effectuer le raccordement des champs thermiques en écrivant l'égalité des températures et des flux de chaleur.

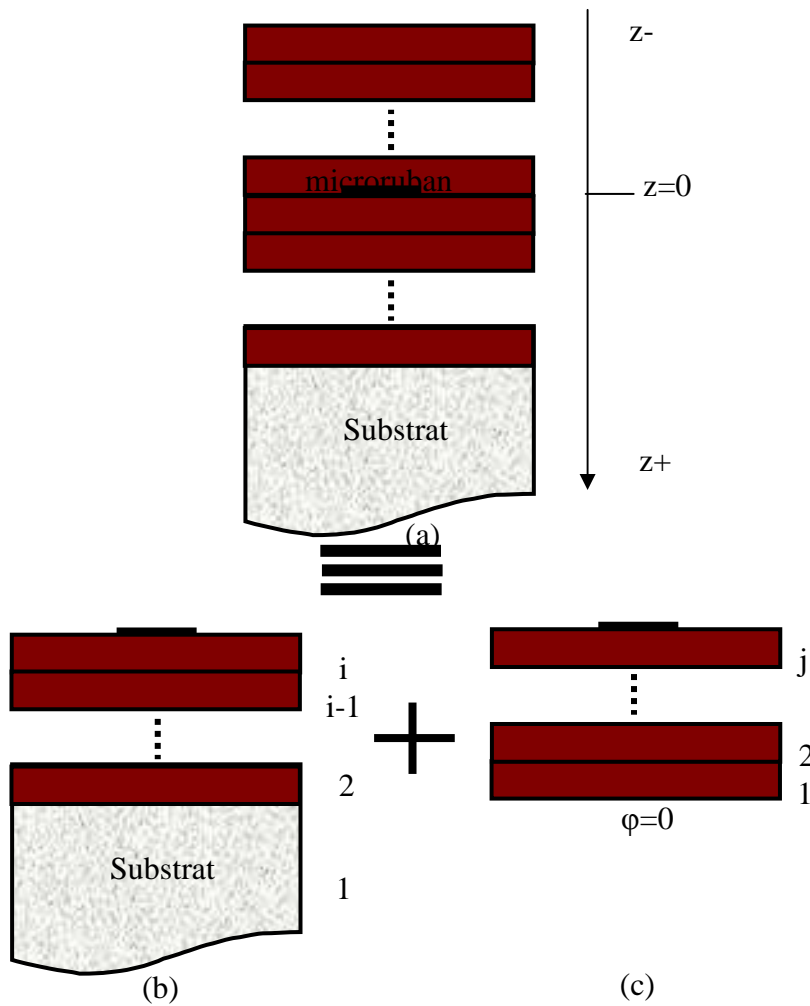


Figure 2-19. Modèle de sonde enterrée. La structure multicouche est subdivisée en deux sous-structures, l'une correspondant à l'ensemble des couches situées au dessus de la sonde et l'autre à l'ensemble des couches sous la sonde

Nous avons montré précédemment l'existence d'une relation linéaire entre la température et le flux de chaleur dans l'espace Laplace-Fourier. Pour la partie de la structure située sous la sonde (structure b), nous pouvons écrire :

$$\tilde{\theta}_b = Z_b \cdot \tilde{\varphi}_b \quad \text{Equation 2- 47}$$

Avec  $Z_b$ ,  $\tilde{\varphi}_b$  et  $\tilde{\theta}_b$  sont respectivement, l'impédance thermique, le flux de chaleur et la température, de la structure b dans l'espace Laplace-Fourier. Par analogie, nous pouvons également écrire pour la structure située sur la partie supérieure de la sonde (structure c) :

$$\tilde{\theta}_c = Z_c \cdot \tilde{\varphi}_c \quad \text{Equation 2- 48}$$

## Chapitre 2 : Sondes thermiques et modèles physiques associés

Avec  $Z_c$ ,  $\tilde{\varphi}_c$  et  $\tilde{\theta}_c$  sont respectivement, l'impédance thermique, le flux de chaleur et la température, de la structure b dans l'espace Laplace-Fourier. La conservation de l'énergie thermique sur la sonde permet d'écrire :

$$\tilde{\varphi}_a = \tilde{\varphi}_b - \tilde{\varphi}_c \quad \text{Equation 2- 49}$$

avec  $\tilde{\varphi}_a$  la puissance générée par la sonde dans l'espace Laplace-Fourier. En appliquant les relations (2-48) et (2-49) et en écrivant l'égalité des températures dans le plan de la sonde ( $\tilde{\theta}_a = \tilde{\theta}_b = \tilde{\theta}_c$ ) on obtient la relation :

$$\tilde{\theta}_a = Z_a \cdot \tilde{\varphi}_a \quad \text{Equation 2- 50}$$

dans laquelle  $Z_a$  est l'impédance de la sonde dans la structure enterrée. Cette impédance est donnée par :

$$Z_{T,a} = \frac{1}{\frac{1}{Z_{T,b}} - \frac{1}{Z_{T,c}}} \quad \text{Equation 2- 51}$$

où  $Z_{T,b}$  et  $Z_{T,c}$  sont données par l'Equation 2-46.

**Validation des modèles-** Les modèles ont été comparés aux simulations par éléments finis (Figure 2-20). On observe un excellent accord entre les modèles et les simulations. La Figure 2- 21 montre une bonne concordance des évolutions de température d'une micro-résistance  $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{s}$  sur un substrat de silice calculées entre 1 ns et 1 ms avec la transformation Laplace-Fourier (lignes continues) et les éléments finis (triangles).

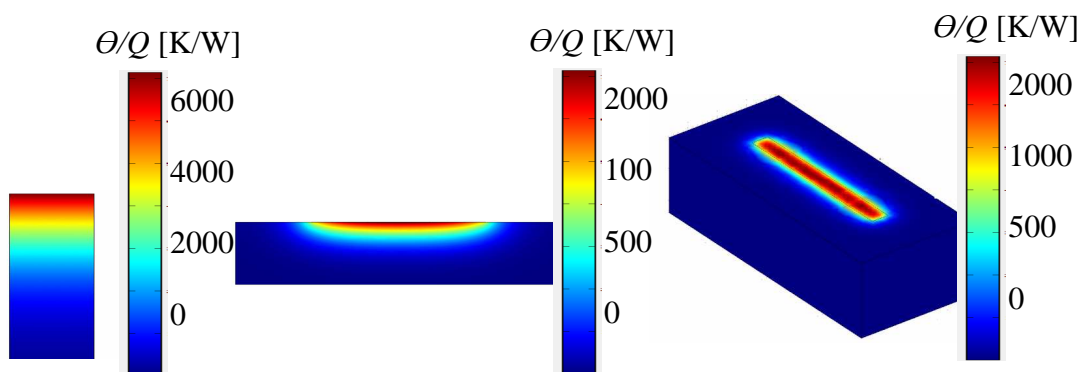


Figure 2- 20. Modèle de diffusion thermique 1D, 2D et 3D par éléments finis (COMSOL)

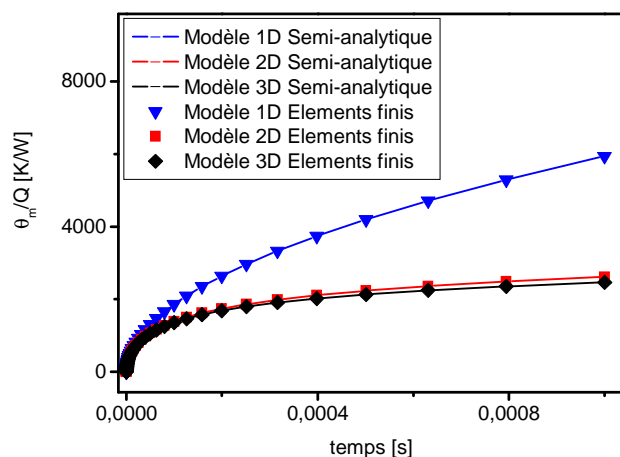


Figure 2- 21. Comparaison entre l'évolution de la température moyenne pour un microruban ( $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$ ) sur un substrat  $\text{SiO}_2$ , avec les modèles semi-analytiques proposés et celle obtenue avec les éléments finis pour les modèles de diffusion thermiques 1D, 2D et 3D.

### 2.4.3. Réduction des modèles

**Modèle 2D-** Le modèle 3D nécessite des temps de calcul important. Nous avons cherché à simplifier ce modèle pour réduire les temps de calcul et limiter le nombre de paramètres caractéristiques. Compte tenu du rapport de forme longueur / largeur de 10 pour la micro-résistance, on peut négliger la diffusion de la chaleur selon la direction y par rapport à celle qui se développe selon x. Dans ces conditions, le champ de température est 2D. Il ne dépend que de z et x. L'Equation 2-37 reste valable si l'on prend  $m \rightarrow 0$ , ce qui donne une expression simplifiée de l'impédance dans l'espace Laplace-Fourier :

$$\overline{Z}_T^{2D} = \frac{1}{L_y} \cdot \frac{1}{L_x} \left\{ Z_0 \cdot \Phi_0 + 2 \cdot \sum_{n=1}^N \left[ \frac{\sin(\alpha_n \cdot x_0)}{\alpha_n \cdot x_0} \right] \cdot Z_n \cdot \Phi_n \right\} \quad \text{Equation 2- 52}$$

avec

$$\Phi_n = \begin{cases} y_0 \cdot \frac{\sin(\alpha_n \cdot x_0)}{\alpha_n} & n \neq 0 \\ x_0 \cdot y_0 & n = 0 \end{cases} \quad \text{Equation 2- 53}$$

$$\text{et } Z(n, s) = Z^s(n, s) = \frac{1}{k_s \cdot \zeta_{n,m}^s} \quad \text{Equation 2- 54}$$

où :

$$\zeta_{n,m}^s = \sqrt{\alpha_n^2 + \frac{s}{a_s}} \quad \text{Equation 2- 55}$$

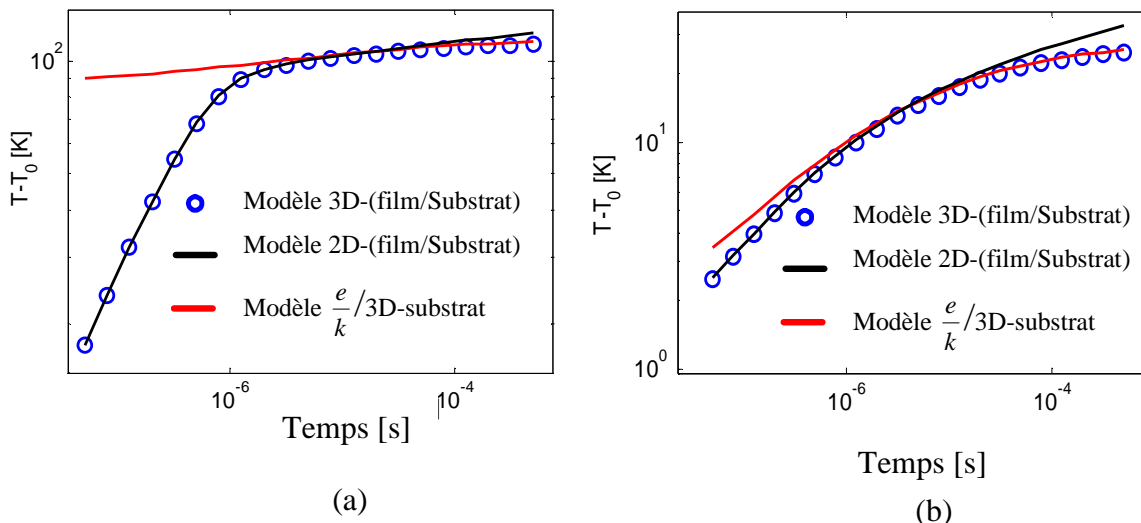
**Approximation de l'impédance du substrat-** Nous pouvons simplifier l'expression de la température d'une sonde sans épaisseur reportée sur un substrat 2D semi-infini. Cette expression est donnée dans l'espace de Laplace par (voir Annexe II) :

$$\overline{\theta}_m(s) = \frac{Q}{\pi \cdot \lambda \cdot y_0 \cdot s} \left\{ \frac{1}{2} \cdot \ln\left(\frac{a_s}{x_0^2}\right) - \frac{1}{2} \cdot \ln(s) + 0.923 + \ln(2) \right\} \quad \text{Equation 2- 56}$$

La transformée inverse de l'expression de l'Equation 2-56 selon [24] permet ainsi d'écrire l'échauffement du substrat à tout instant t :

$$\theta_m(t) = \frac{Q}{\pi \cdot \lambda \cdot y_0} \cdot \left\{ \frac{1}{2} \cdot \ln\left(\frac{a_s}{x_0^2}\right) + \frac{1}{2} \cdot \ln(t) + 1.5 + \ln(2) \right\} \quad \text{Equation 2- 57}$$

Le calcul 2D permet de réduire le temps de calcul d'un facteur de 100. Nous proposons un modèle plus simple que le modèle 2D qui consiste à représenter le film par une résistance thermique et à calculer par ailleurs l'impédance du substrat. La Figure 2-22 donne les signaux de température calculés pour une micro-résistance de 20 μm x 200 μm avec les modèles 2D, 3D, et film 1D pour des structures constituées d'un film de 1 μm déposé sur du silicium. On a considéré les cas d'un film de conductivité thermique de 1 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> (Figure 2-22a) et de 100 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> (Figure 2-22b). Le modèle 2D apparaît en bon accord avec le modèle 3D pour des temps inférieurs à 10 μs. Au delà, le modèle de film 1D donne de bons résultats.



**Figure 2- 22. Signaux de température calculés pour une micro-résistance de 20 μm x 200 μm avec les modèles 2D, 3D, et film 1D pour des structures constituées d'un film de 1μm déposé sur du silicium. La densité de puissance appliquée sur la résistance est 2 x 10<sup>8</sup> W.m<sup>-2</sup> (puissance 0,8 W). (a) film amorphe de conductivité thermique de 1 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> et (b) film cristallin de conductivité thermique de 100 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup>**

## 2.5. Analyse de sensibilité de la mesure

Les propriétés thermiques sont estimées par minimisation de la fonction E, écart quadratique entre le signal expérimental ( $S^e$ ) et le signal calculé par le modèle ( $S^m$ ) [26]:

$$E(\mu) = \sum_t (S^e(t) - S^m(\mu, t))^2 \quad \text{Equation 2- 58}$$

t et  $\mu$  désignent respectivement le temps de mesure et l'ensemble des paramètres à estimer (conductivité thermique et/ou la capacité calorifique, etc...). La facilité à extraire un paramètre  $\mu_i$  du signal expérimental par comparaison avec le signal calculé est mesurée par son coefficient de sensibilité  $\chi_\mu$  défini par la relation :

$$\chi_\mu(t) = \frac{\mu}{\theta_{m, \max}} \cdot \frac{\partial \theta_m(t)}{\partial \mu} \quad \text{Equation 2- 59}$$

L'estimation de  $\mu_i$  doit être réalisée dans une fenêtre de temps où  $\chi_\mu$  est maximal. Une mesure sera de précision satisfaisante si  $\chi_\mu \geq 0,1$ . L'étude de sensibilité vise à évaluer la possibilité d'estimer plusieurs paramètres sur un même signal. Cette possibilité dépend de la grandeur de  $\chi_\mu$ , de la fenêtre de temps considérée, et de la corrélation entre les paramètres à estimer [27].

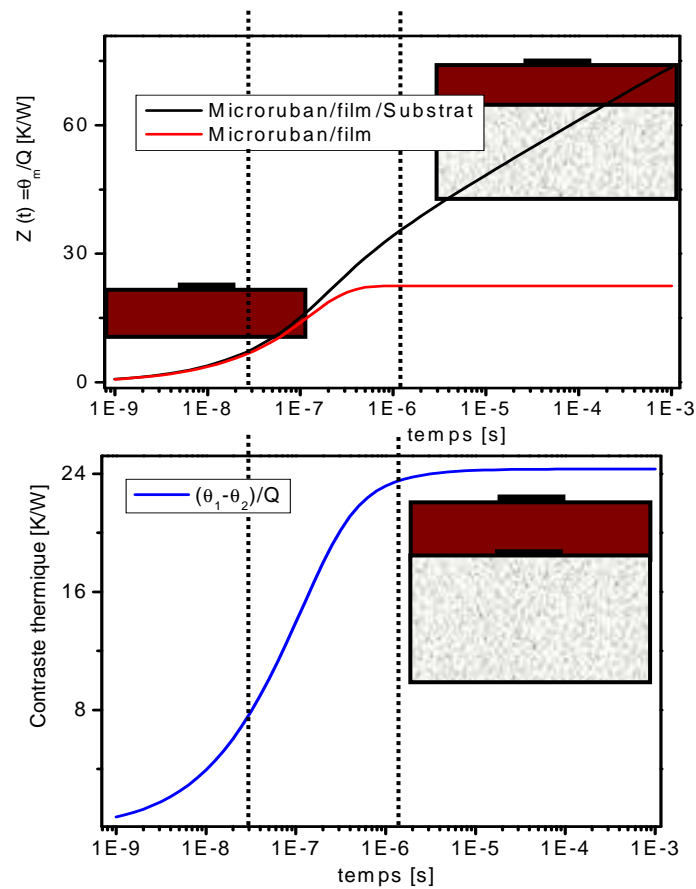
On se propose d'analyser la sensibilité du signal généré par une sonde aux propriétés thermiques de la structure sur laquelle celle-ci est reportée. On considère une micro-résistance de  $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$  sur une couche mince anisotrope de  $1 \mu\text{m}$  d'épaisseur (conductivité selon z de  $10 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ , conductivité selon x et y de  $8 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ , capacité calorifique de  $2,7 \times 10^6 \text{ J} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{m}^{-3}$ ) déposée sur un substrat. La Figure 2- 23 met en évidence les processus de diffusion mis en jeu dans différentes fenêtres de temps. La Figure 2- 23a montre l'évolution de la température de la sonde lorsque le film est déposé sur du silicium (courbe continue noire) et un substrat infiniment conducteur (courbe continue rouge). La courbe rouge décrit l'évolution de la température de surface du film par rapport au substrat. La Figure 2- 23-b montre la différence des évolutions de température de surface avec et sans film. Cette différence est appelée contraste thermique. On distingue trois phases dans le processus de diffusion (i) une

## Chapitre 2 : Sondes thermiques et modèles physiques associés

phase de diffusion dans le film s'établissant sur quelques 10 à 100 ns (2i) une phase de diffusion dans le substrat au cours de laquelle un écart de température constant s'est établi dans le film. Cette phase est appelée phase de régime glissant. Au cours de cette phase le film se comporte comme une résistance thermique pure (3i) une phase de transition permettant le passage progressif de la phase de diffusion dans le film à celle de diffusion dans le substrat.

La figure 2-24 donne l'évolution des coefficients de sensibilité à différents paramètres. Les résultats de l'analyse de sensibilité sont résumés dans le Tableau 2- 1 et le Tableau 2-2. Pour étudier l'effet de la miniaturisation, nous avons considéré trois tailles de sonde (20  $\mu\text{m}$  x 200  $\mu\text{m}$ , 10  $\mu\text{m}$  x 100  $\mu\text{m}$ , et 2  $\mu\text{m}$  x 20  $\mu\text{m}$ ) ayant un rapport de forme longueur/ largeur de 10. La Figure 2-25 montre l'évolution des coefficients de sensibilité pour les 3 dimensions de sonde. Nous avons représenté les sensibilités aux conductivités axiale et radiale (ox) (oz), et à la capacité calorifique du film. Nous remarquons que le coefficient de sensibilité augmente considérablement avec la diminution de la taille de la sonde. Ceci s'explique par le fait que la réduction de la sonde accroît le rapport impédance thermique du film / impédance du substrat. Ceci est visible sur les figures 2- 26 et 2- 34 qui montrent que l'écart de température dans le film et l'impédance augmentent avec la réduction de taille des sondes.





**Figure 2- 23. (a) Evolution de la température de la sonde lorsque le film est déposé sur du silicium (courbe noire) et un substrat infiniment conducteur (courbe rouge). La courbe rouge décrit l'évolution de la température de surface du film par rapport au substrat. (b) Différence des évolutions de température de surface avec et sans film. Cette différence est appelée *contraste thermique***

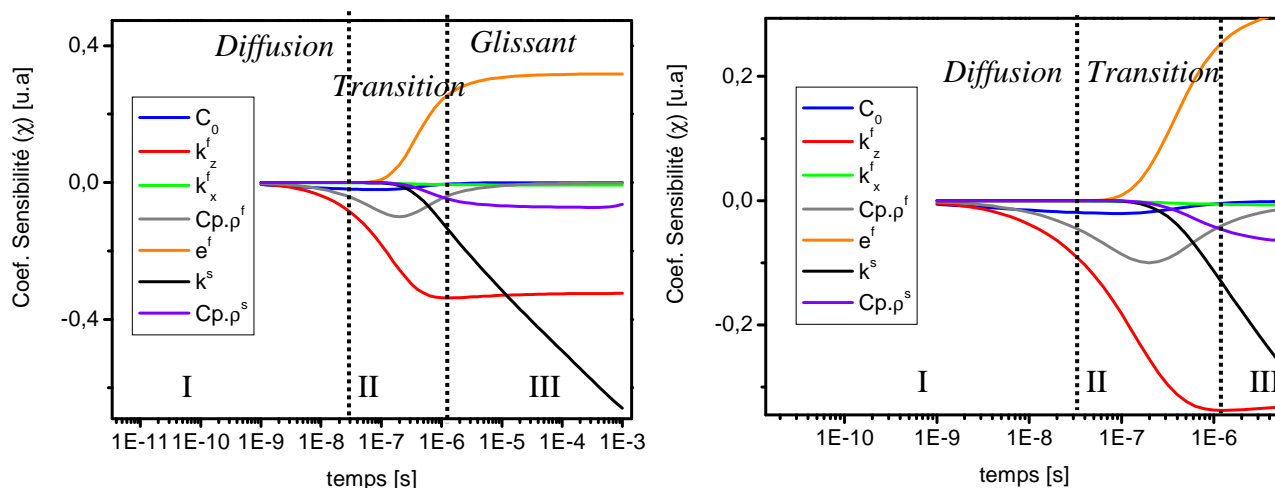


Figure 2- 24. Evolution des coefficients de sensibilité à différents paramètres pour une micro-résistance de  $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$  sur couche mince anisotrope de  $1 \mu\text{m}$  (conductivité selon  $z$  :  $10 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$  selon  $x$  et  $y$  :  $8 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ , capacité calorifique de  $2,7 \times 10^6 \text{ J} \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{m}^{-3}$ ) déposée sur silicium (a) entre  $10^{-9}$  et  $10^{-3}$  seconde (b) pour les temps jusque  $10 \mu\text{s}$ .  $k_z^f$  : conductivité du film suivant ( $oz$ ),  $k_x^f$  : conductivité du film suivant ( $ox$ ),  $C_p \cdot \rho^f$  la capacité calorifique du film,  $e^f$  épaisseur du film,  $k^s$  conductivité thermique du silicium, et  $C_p \cdot \rho^s$  la capacité calorifique du silicium

Tableau 2- 1. Paramètres mesurables selon les fenêtres de temps pour ue micro-résistance de  $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$

Matériaux	Paramètres mesurables	Zone d'identification				
		I-I	I-II	II-II	II-III	III-III
microruban ( $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$ )		x	x	x	x	
film	$(k_z)$	x	x	x	x	x
	$(k_x)$	Faible	Faible	Faible	Faible	Faible
	$c_{p,f} \rho_f$	x	x	x	x	
Substrat (Si)	$(k_s)$				x	x
	$c_{p,s} \rho_s$				x	x

Tableau 2- 2. Paramètres mesurables selon les fenêtres de temps pour une micro-résistance de  $2\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$

Matériaux	Paramètres mesurables	Zone d'identification				
		I-I	I-II	II-II	II-III	III-III
microruban ( $2\mu\text{m} \times 20\mu\text{m}$ )	Capacité spécifique	x	x	x	x	
Film	Conductivité thermique ( $k_z$ )	x	x	x	x	x
	Conductivité thermique ( $k_x$ )		x	x	x	x
	$c_{p,f} \rho_f$	x	x	x	x	
Substrat (Si)	Conductivité thermique ( $k_s$ )				x	x
	$c_{p,s} \rho_s$				x	x

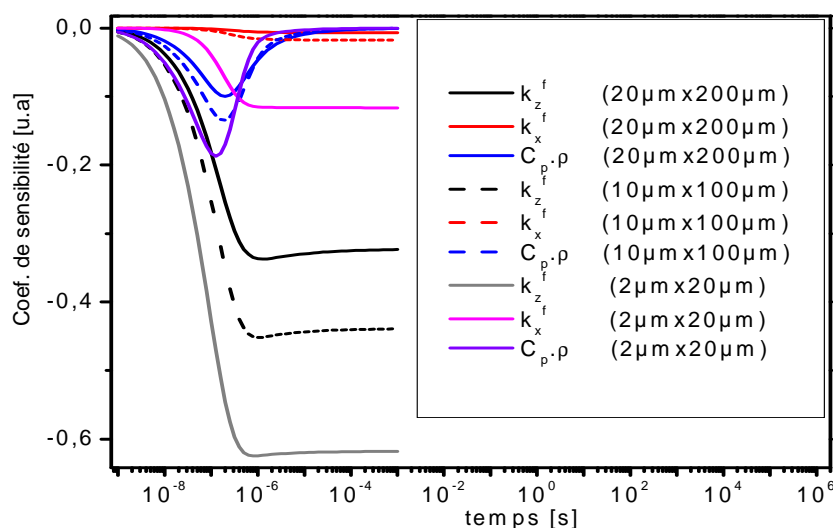


Figure 2- 25. Effet de la taille des micro-résistances sur les coefficients de sensibilités.  $k_z^f$  est la conductivité du film suivant (oz),  $k_x^f$  est la conductivité du film suivant (ox), et  $C_{p,p}$  la capacité calorifique du film

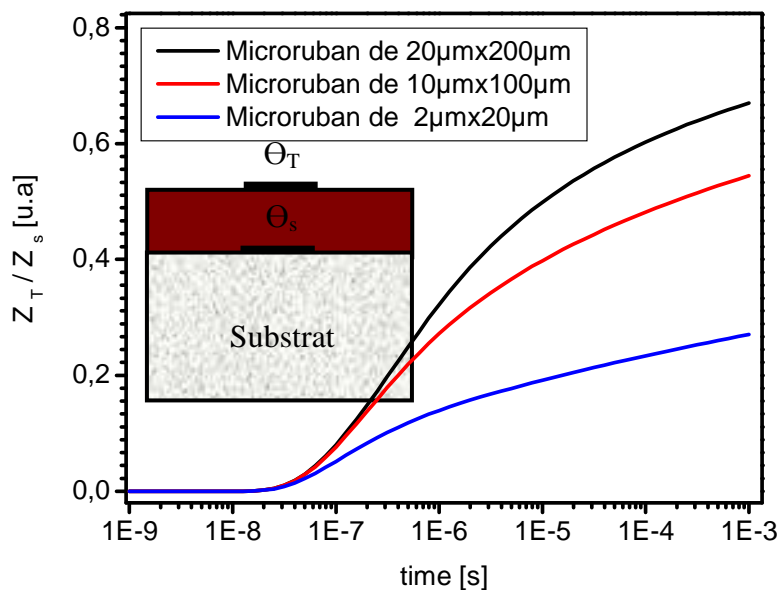


Figure 2- 26. Effet de la miniaturisation des sondes thermiques sur le rapport 'impédance thermique totale/ impédance du substrat

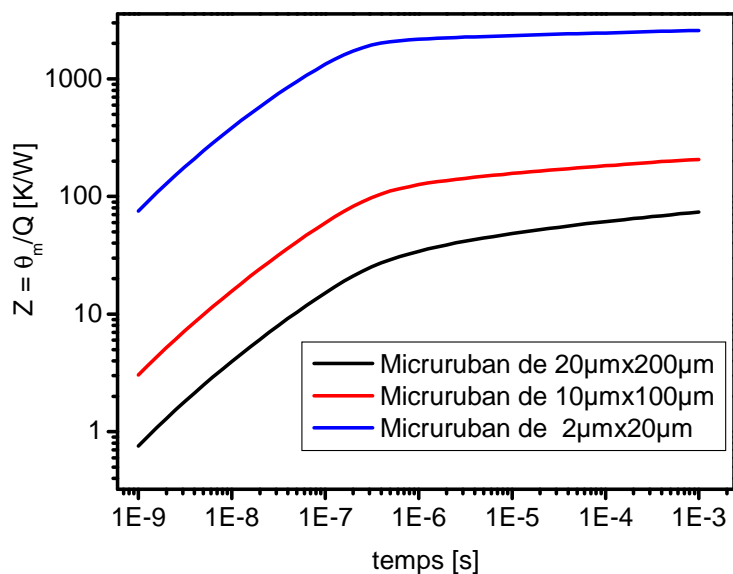


Figure 2- 27. Effet de la miniaturisation des sondes thermiques sur l'impédance thermique

## 2.6. Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons décrit des sondes thermiques originales fondées sur l'utilisation de rubans chauds permettant de détecter des variations de température sur des échelles de temps extrêmement courtes ( $10^{-9}$  -  $10^{-5}$  seconde) et de mesurer les propriétés thermiques de très petits volumes de matière dont la dimension caractéristique se situe dans le domaine  $10^{-9}$  -  $10^{-4}$  m. Ces sondes apparaissent bien adaptées à la mesure de la conductivité thermique des couches minces et doivent permettre de caractériser des matériaux isotropes et anisotropes. Nous avons étudié le comportement électrothermique de différentes sondes par simulation numérique. On a mis en évidence la sensibilité des sondes aux propriétés thermiques des matériaux. Nous avons montré les avantages de la miniaturisation des sondes pour améliorer la précision, la résolution spatiale, et permettre leur intégration dans des dispositifs.

Plusieurs modèles physiques associés à l'utilisation des sondes thermiques ont été développés. Des modèles semi-analytiques décrivant les transferts de chaleur en régime non stationnaire dans des structures hétérogènes anisotropes ont été établis. Ces modèles permettent de calculer précisément la température des sondes avec un temps de calcul réduit par rapport à une approche numérique par éléments finis. Une étude paramétrique a permis de mettre en évidence les propriétés accessibles aux temps courts avec différentes tailles de sonde. Ainsi, la méthode est applicable à une grande variété de matériaux. Elle permet notamment de mesurer la capacité calorifique et la conductivité thermique de couches minces dans les directions perpendiculaire et parallèle au plan du substrat.

## 2.7. Références

- [1]: S. E. Gustafsson, E. Karawacki, et M. N. Khan, "Transient hot-strip method for simultaneously measuring thermal conductivity and thermal diffusivity of solids and fluids ", (1979). *Journal of Physics D* **12** , 1411.
- [2]: S. E. Gustafsson, E. Karawacki, et M. N. Khan, "Determination of the thermal conductivity tensor and the heat capacity of insulating solids with the transient hot strip method", (1981). *Journal of Applied Physics* **52**, 2596.
- [3]: J. Kestin, E.W.W., "A contribution to the theory of the transient hot-wire technique for thermal conductivity measurements", (1978). *Physica A* **92**, 102–116.
- [4]: S. Ohkubo, E.M.O., "A method for the determination of the thermal transport properties of submicron-thick dielectric films with the use of an analytical expression", (1992). *Thin Solid Films* **219**, 239-243.
- [5]: M. Okuda, E.S.O., "A novel method for measuring the thermal conductivity of submicrometre thick dielectric films", (1992). *Thin Solid Films* **213**, 176-181.
- [6]: U. Hammerschmidt, E.V.M., "New Transient Hot-Bridge Sensor to Measure Thermal Conductivity, Thermal Diffusivity, and Volumetric Specific Heat", (2006). *International Journal of Thermophysics* **27**, 840-865.
- [7]: Model, Stosch, et Hammerschmidt, "Virtual Experiment Design for the Transient Hot-Bridge Sensor", (2007). *International Journal of Thermophysics* **28**, 1447-1460.
- [8]: S. E. Gustafsson, "Transient hot strip techniques for measuring thermal conductivity and thermal diffusivity", (1987). *The Rigaku Journal* **4**, 16-28.
- [9]: N. Stojanovic, J. M. Berg, D. H. S. Maithripala, et M. W. Holtz, "A Microelectrothermal Bridge Circuit With Complementary Parameter Estimation Algorithm

for Direct Measurement of Thermal Conductivity", (2010). *Journal of Microelectromechanical Systems* **19**, 265-272.

[10]: K. Maize, Y. Ezzahri, X. Wang, S. Singer, A. Majumdar et A. Shakouri, "Measurement of Thin Film Isotropic and Anisotropic Thermal Conductivity Using  $3\omega$  and Thermoreflectance Imaging", (2008).

[11]: N. Hmina, "Contribution a la caractérisation thermique couche submicronique-substrat : Etude expérimentale de la résistance d'interface et de l'effusivité subsurfacique", (1994).

[12]: O. Stéphane, "Etude théorique et expérimentale des phénomènes de conduction thermique dans les matériaux diélectriques déposés en couches minces : Application aux dépôts d'oxyde ", (2000).

[13]: A. Lahmar, T.P. Ngyuen, D. Sakami, S. Orain, Y. Scudeller, et F. Danes, "Experimental investigation on the thermal contact resistance between gold coating and ceramic substrates", (2001). *Thin Solid Films* **389**, 167-172.

[14]: S. Orain, Y. Scudeller, et T. Brousse, "Thermal conductivity of ZrOView the MathML source thin films", (2000). *International Journal of Thermal Sciences* **39**, 537–543.

[15]: A. Matthiessen, "Annals of Physics", (1964).

[16]: M. J. Aus, B. Szpunar, U. Erb, et A. M. El-Sherik, "Electrical resistivity of bulk nanocrystalline nickel", (1994). *Journal of Applied Physics* **75**, 3632-3634.

[17]: X. Chen, B. Tao, et Z. Yin, "Investigation of Bulk Resistance for Metal-Coated Polymer Particles Used in Anisotropic Conductive Adhesive", (2001).

[18]: J. M. Camacho, E.A.O., "Surface and grain boundary contributions in the electrical resistivity of metallic nanofilms", (2006). *Thin Solid Films* **515**, 1881–1885.

## Chapitre 2 : Sondes thermiques et modèles physiques associés

- [19] : E. Abu-Nada, "Effects of variable viscosity and thermal conductivity of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-water nanofluid on heat transfer enhancement in natural convection", (2009). *International Journal of Heat and Fluid Flow* **30**, 679-690.
- [20] : S. P. Gurrum, W. P. King, Y. K. Joshi, et K. Ramakrishna, "Size Effect on the Thermal Conductivity of Thin Metallic Films Investigated by Scanning Joule Expansion Microscopy", (2008). *Journal of Heat Transfer* **130**, 082403.
- [21] : Z. Xu, D. Yan, D. Xiao, P. Yu, et J. Zhu, "Temperature field and residual stress analysis of multilayer pyroelectric thin film", (2011). *Ceramics International*, 1-5.
- [22] : D. L. Jagerman, "An inversion technique for the Laplace transform", (1982). *Bell System Technical Journal* **61**, 1995-2002.
- [23] : N. AHMED, T. NATARAJAN, et K. R. RAO, "Discrete Cosine Transform", (1974). *IEEE Transactions on Computers* **C-23**, 90-93.
- [24] : M. R. Spiegel, "Formules et tables de mathématiques", (1992).
- [25] : T. Borca-Tasciuc, A. R. Kumar, et G. Chen, "Data reduction in 3 $\omega$  method for thin-film thermal conductivity determination", (2001). *Review of Scientific Instruments* **72**, 2139-2147.
- [26] : A. Quarteroni, R. Scacco, et F. Saleri, "Methodes numériques pour le calcul scientifique", (2000).
- [27] : J. V Beck, E.K.J.A., "Parameter estimation in engineering and science", (1977). *New York: John Wiley* **8**.



## Chapitre 2 : Sondes thermiques et modèles physiques associés

## **3. Chapitre 3 : Dispositifs expérimentaux et tests de validation**

### **3.1. Introduction**

Le chapitre précédent a défini l'architecture des sondes thermiques et les modèles physiques nécessaires à la mesure. Celle-ci consiste à analyser les évolutions de température de micro-résistances électriques induites par la brusque injection de courant électrique. On a démontré numériquement la bonne performance des sondes sur une fenêtre de temps court,  $10^{-9}$  -  $10^{-4}$  secondes. Cette fenêtre permet la détermination des propriétés thermiques de petits volumes de matière de dimension caractéristique entre 1nm et 100  $\mu\text{m}$  environ.

Ce chapitre décrit le procédé de fabrication des sondes et les dispositifs expérimentaux qui ont permis de rendre ces sondes fonctionnelles, notamment par la conception d'un système de commutation rapide générant des impulsions de courant à très faible durée de montée quelques 10 ns. Le chapitre présente ensuite les différentes étapes qui ont permis d'optimiser la mesure. Une alternative de mesure intéressante est également abordée. Elle consiste à produire une impulsion laser nanoseconde sur la résistance thermosensible lorsque la sonde est alimentée de manière continue. Le chapitre donne enfin les résultats de tests réalisés sur différents matériaux de référence avec plusieurs types de sondes comprenant des micro-résistances de 20  $\mu\text{m}$  x 200  $\mu\text{m}$  à 2  $\mu\text{m}$  x 20  $\mu\text{m}$ . Il est mis en évidence que la miniaturisation des sondes permet d'accroître la sensibilité de la mesure et de déterminer les propriétés de films anisotropes selon les directions parallèle et perpendiculaire à la surface.

## 3.2. Fabrication des sondes thermiques

Les sondes ont été fabriquées par photo-lithogravure et procédé *lift-off* dans les salles blanches de l'Institut d'Electronique et de Télécommunications de Rennes et de la société Alcatel-Thalès. Les techniques de fabrication reposent sur l'utilisation de la photolithographie qui consiste à déposer sur l'échantillon une couche sacrificielle de résine photosensible puis à la structurer en l'exposant à un rayonnement UV au travers d'un masque transparent aux UV (verre ou quartz avec de motifs en chrome, Figure 3- 1).

Dans le cas de la photholithogravure, dont le déroulement est schématisé sur la Figure 3- 2, le métal choisi est déposé sur la totalité de l'échantillon, dans notre cas par pulvérisation (voir annexe III). Le motif de résine, défini ensuite par photolithographie, sert de protection des zones de métal "à conserver" lors de l'étape de gravure qui s'ensuit. La dernière étape consiste à retirer la résine. Dans notre cas la gravure est réalisée par une solution classique d'acide acétique, nitrique et phosphorique.

Dans le cas d'un lift-off, la photolithographie constitue la première étape du procédé technologique. Il s'agit cette fois de conserver de la résine en dehors des zones à métalliser. Le métal, un bicouche Au/Ti, est ensuite déposé sur l'ensemble échantillon + résine structurée. Lorsque l'on retire la résine, le métal déposé dessus est également enlevé, et il ne reste de métal qu'aux endroits non protégés par la résine. Dans le cas du lift-off, le profil de résine doit être particulier afin de permettre sa dissolution sous le dépôt de métal (Figure 3- 3). La Figure 3- 4 montre un élément thermosensible obtenu par la première de ces deux techniques. Sur cette figure nous constatons le problème de la gravure chimique, pour les petits motifs de micro-résistances, pour avoir des motifs homogènes. Par contre dans le cas de la technique lift-off nous arrivons à définir des petits motifs avec une bonne résolution (Figure 3- 6).

Nous avons rencontré plusieurs types de problème dans la réalisation des sondes. Le principal problème est l'apparition de microfissures sur les micro-résistances après alimentation (Figure 3- 5). Les concentrations du courant au voisinage de défauts entre les plots de contact et la micro-résistance sont à l'origine de ces fissures.

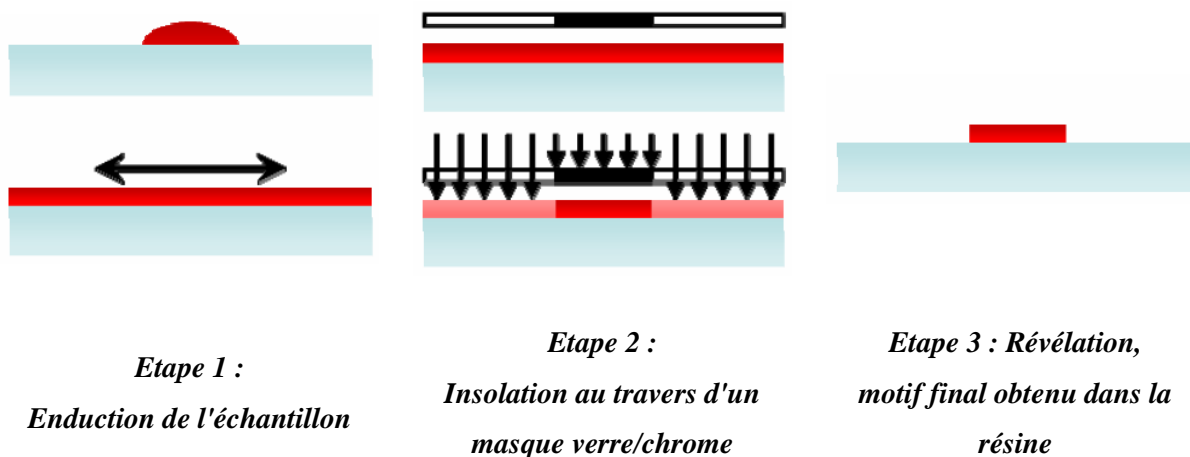


Figure 3- 1. Principe de la photolithographie sur une résine positive

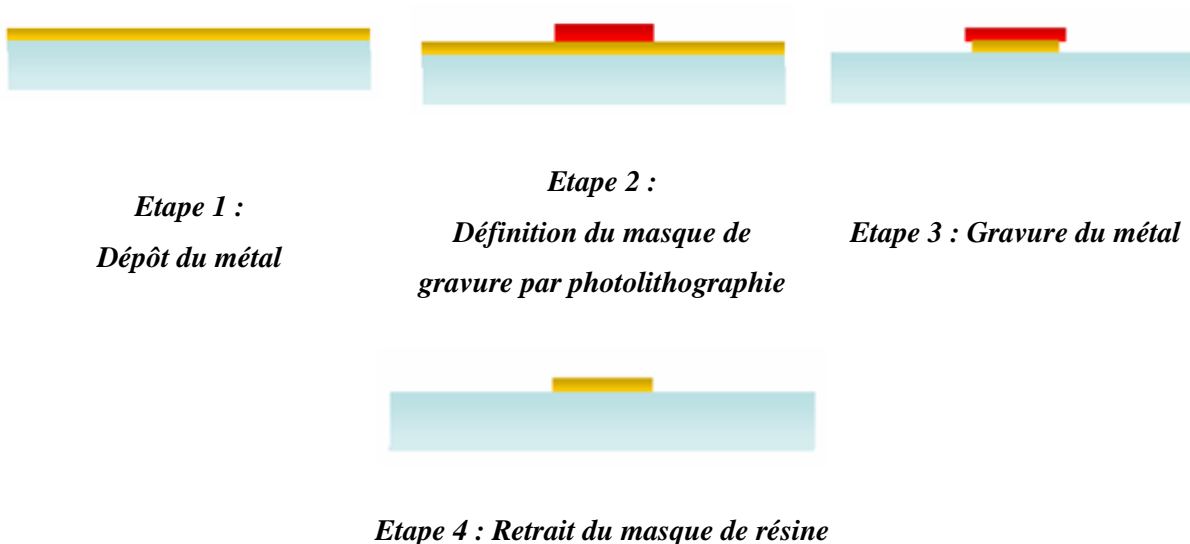


Figure 3- 2. Déroulement d'une photolithogravure

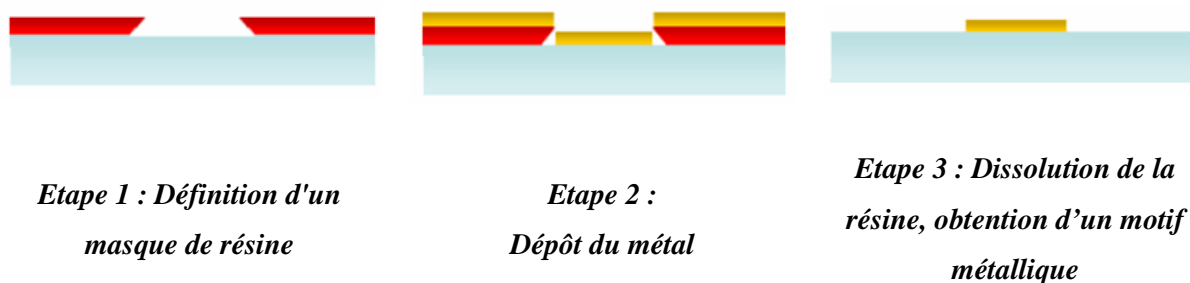


Figure 3- 3. Déroulement d'un lift off

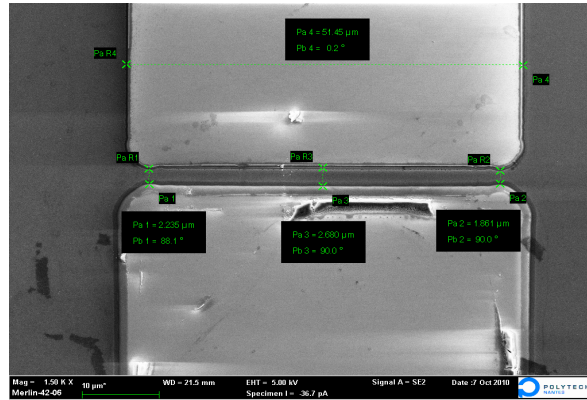


Figure 3- 4. Vue de dessus d'une micro-résistance de 5 μm x 50 μm réalisée par photo-lithogravure.  
A noter : non-homogénéité de la micro-résistance au niveau des deux plots de contact

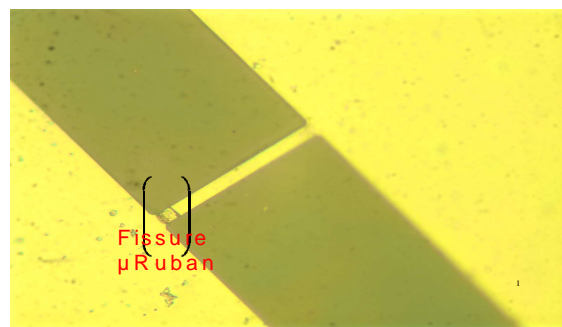


Figure 3- 5. Fissuration de la micro-résistance après alimentation électrique liée à des concentrations de courant autour de défauts

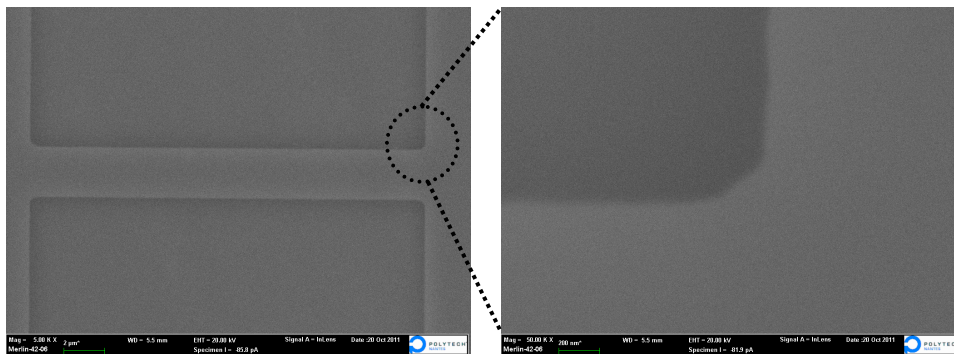


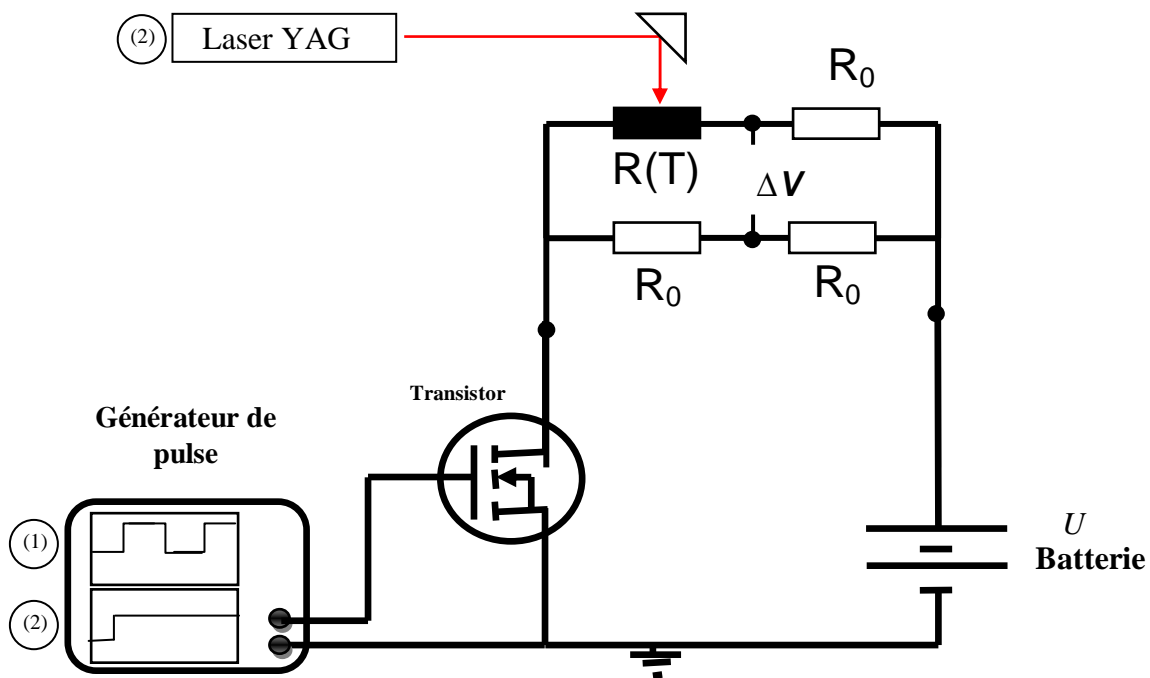
Figure 3- 6. Vue de dessus d'une micro-résistance de 2 μm x 20 μm réalisée par Lift-off

### 3.3. Description des dispositifs expérimentaux

L'utilisation des sondes a nécessité la conception de dispositifs expérimentaux permettant d'une part d'alimenter électriquement les sondes et de contrôler leur

environnement thermique et électromagnétique. Ceci a nécessité la fabrication d'un système de commutation rapide générant des impulsions électriques à faibles temps de montée.

Le dispositif expérimental est représenté sur la Figure 3- 7. Il est constitué de l'ensemble sonde-échantillon intégré dans un boîtier isotherme assurant une protection électromagnétique et thermique et d'un oscilloscope *numérique* couplé à une sonde différentielle de bande passante 1 GHz.

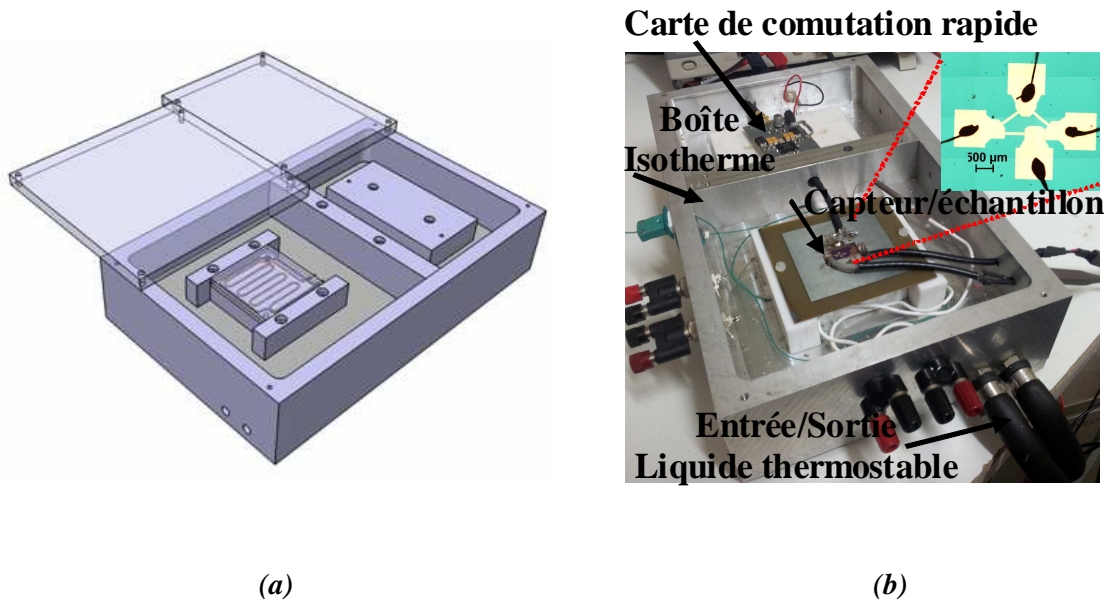


*Figure 3- 7. Dispositif expérimental du système de mesures, avec deux types d'excitation (1) électrique en utilisant une forte densité de courant au niveau de la micro-résistance et (2) optique en utilisant une faible densité de courant au niveau de la micro-résistance.*

### 3.3.1. Système de protection électromagnétique et thermique

Le boîtier en aluminium contenant l'échantillon et la sonde thermique est représenté sur la Figure 3- 8. Il est constitué de deux cavités, l'une contenant l'échantillon et la sonde, et l'autre une carte de commutation rapide. La cavité contenant l'échantillon comprend une plaque chauffante permettant d'étalonner la sonde en température (voir procédure

d'étalonnage au paragraphe suivant). La plaque chauffante est constituée d'un film résistif pressé entre deux plaques de cuivre permettant d'assurer une bonne homogénéité de la température de l'échantillon. L'ensemble du système de protection électromagnétique et thermique de l'échantillon est refroidi par la circulation d'un fluide régulé en température.



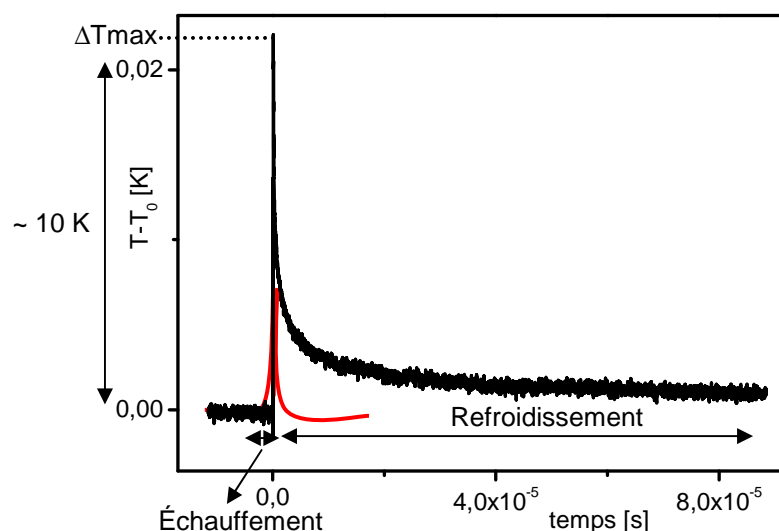
*Figure 3- 8. (a) Schéma du boîtier isotherme et du système de stabilisation thermique développé et (b) réalisation du dispositif expérimental sur lequel l'échantillon est monté*

### 3.3.2. Système électronique de commutation rapide

Le système de commutation rapide est une carte électronique spécifiquement développée en partenariat avec l'équipe nantaise de l'Institut d'Electronique et de Télécommunications de Rennes (Marc Brunet). La dernière génération de carte qui a été développée intègre des composants montés en surface. Elle permet de générer des impulsions électriques avec un bon rapport signal/bruit, un temps de montée de 20 ns, et d'obtenir un signal exploitable à partir de 40 ns. La carte utilise un composant DEIC 420 constitué d'un driver et d'un transistor montés en push-pull permettant de réduire les perturbations induites par l'alimentation de chaque composant et d'éviter les problèmes d'adaptation. Les connectiques carte-sonde sont assurées par des fils d'or de 100 µm de diamètre collés avec une résine chargée à l'argent.

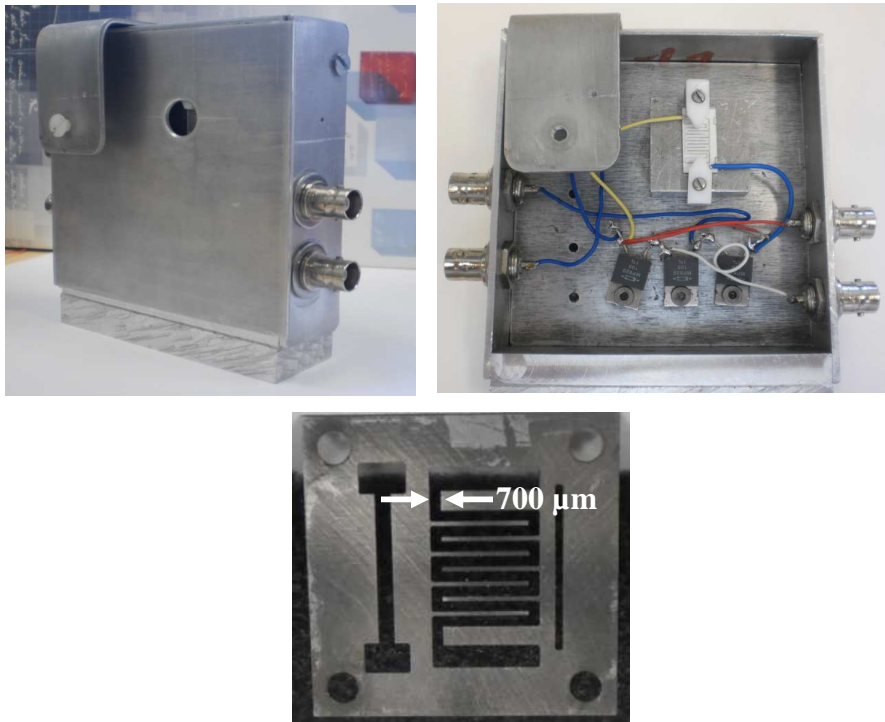
### 3.3.3. Dispositif expérimental électro-optique

Une alternative intéressante consiste à produire une impulsion laser nanoseconde (largeur à mi-hauteur 15 ns, énergie de l'impulsion ajustable entre 0 et  $0,4 \text{ J.cm}^{-2}$ ) sur la micro-résistance lorsque la sonde est alimentée de manière continue avec une tension  $U$  constante. Cette variante, appelée électro-optique consiste à mesurer l'évolution de la température de la micro-résistance consécutive à l'absorption de l'impulsion laser. La micro-résistance joue alors le rôle de transducteur et de capteur de température. La Figure 3- 9 montre l'allure d'un signal de température avec une phase d'échauffement rapide, de l'ordre de 10-30 ns puis d'un refroidissement sur quelques microsecondes jusqu'à l'équilibre. Les propriétés de l'échantillon sont déterminées lors de la phase de refroidissement. Le diamètre du spot laser, de l'ordre de 10  $\mu\text{m}$ , et la bonne uniformité du faisceau permet également d'utiliser des macro-résistances en forme de ruban de plusieurs millimètres de longueur (figure 3-6). Celles-ci sont associées à des résistances hautes fréquences à faibles coefficients de température, l'ensemble étant incorporé dans une boîte de protection électromagnétique isotherme (voir figure 3-10).



*Figure 3- 9. Signal de température de la résistance électrique thermosensible consécutif à l'absorption d'une impulsion laser (largeur à mi-hauteur 15 ns, énergie de l'impulsion ajustable entre 0 et  $0,4 \text{ J.cm}^{-2}$ ). La sonde est alimentée de manière continue avec une tension  $U$  constante*





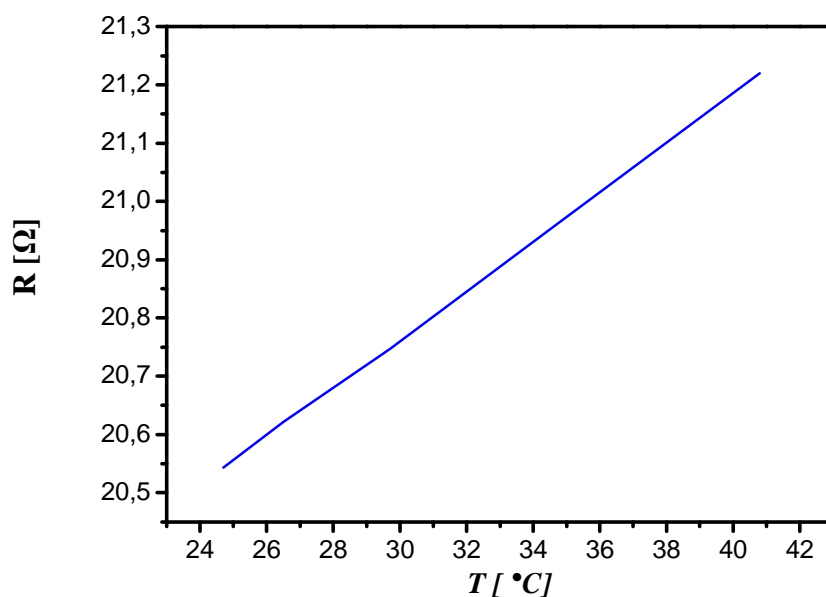
*Figure 3- 10. Dispositif expérimental en mode électro-optique (a) Boîtier de protection électromagnétique isotherme incluant une macro-résistance déposée sur un échantillon et associée à des résistances à faibles coefficients de température fonctionnant jusqu'à des fréquences de 400 MHz. (b) Masque métallique utilisé pour le dépôt des macro-résistances métalliques*

### 3.4. Optimisation des dispositifs expérimentaux

Ce paragraphe décrit les conditions nécessaires pour réaliser une mesure avec les sondes thermiques. Après fabrication de la sonde sur l'échantillon, il convient de l'étalonner en température, de mesurer les valeurs ohmiques des résistances afin de déterminer la valeur du signal de déséquilibre initial, d'optimiser le système de commutation électrique. Par ailleurs, lorsque la sonde est utilisée sous excitation laser, il est nécessaire d'optimiser la mesure électro-optique. On se propose d'aborder ces différents points.

### 3.4.1. Étalonnage

Il est nécessaire d'étalonner la sonde pour déterminer le coefficient de température  $\beta$  des micro-résistances. Ce coefficient varie typiquement entre  $1,0 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  et  $3 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$  selon l'épaisseur et la nature du métal. L'étalonnage s'effectue à l'aide d'un ohmmètre à haute résolution en portant l'échantillon avec la sonde à différentes températures entre  $20 \text{ }^\circ\text{C}$  et  $80 \text{ }^\circ\text{C}$  au moyen de la plaque chauffante incorporée dans le boîtier. La Figure 3- 11 montre l'exemple d'une courbe d'étalonnage résistance-température d'une sonde à micro-résistance en Cr/Au de  $20 \text{ } \mu\text{m} \times 200 \text{ } \mu\text{m}$  entre  $25 \text{ }^\circ\text{C}$  et  $40 \text{ }^\circ\text{C}$ . L'épaisseur d'or est de  $80 \text{ nm}$ . On observe la résistance, de l'ordre de  $20 \text{ Ohms}$  à  $20 \text{ }^\circ\text{C}$ , varie linéairement avec la température. Le coefficient de température de la résistance est de  $2 \times 10^{-3} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ . Il est inférieur au coefficient de température de la résistivité de l'or pur massif ( $3,4 \times 10^{-3} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$ ).



*Figure 3- 11. Courbe d'étalonnage d'une sonde à micro-résistance en Cr/Au de  $20 \text{ } \mu\text{m} \times 200 \text{ } \mu\text{m}$  entre  $25 \text{ }^\circ\text{C}$  et  $40 \text{ }^\circ\text{C}$ . Le coefficient de température de la résistance est de  $2 \times 10^{-3} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$*

### 3.4.2. Détermination de la tension de déséquilibre initial

Par principe, les résistances du pont doivent être égales et le signal de sortie du pont doit être nul au moment où le courant est injecté (déséquilibre initial nul). En réalité, les imperfections de gravure conduisent à des variations des valeurs ohmiques des résistances aboutissant à une valeur de tension de déséquilibre initial non nulle. Ce déséquilibre, noté  $V_0$ , est illustré sur la Figure 3-12. La figure 3-12a montre un déséquilibre positif et la figure 3-21b un déséquilibre négatif. Dans les deux cas, il est nécessaire de déterminer  $V_0$  pour obtenir le signal  $V-V_0$  qui correspond à l'échauffement de la micro-résistance. La tension  $V_0$  a été déterminée à partir des valeurs des résistances apparentes  $R_a, R_b, R_c, R_d$  mesurées entre les bornes de la sonde. La Figure 3-13 indique la position de ces résistances apparentes mesurées sur une sonde avec un ohmmètre. Les mesures de  $R_a, R_b, R_c, R_d$  permettent de déterminer les valeurs des résistances de la sonde,  $R_1, R_2, R_3$ , et  $R_4$ . Pour une tension d'alimentation donnée  $U$ , la tension  $V_0$  est alors donnée à température ambiante par la relation (3-1) (cf chapitre 2):

$$V_0 = U \cdot \frac{R_1 \cdot R_3 - R_4 \cdot R_2}{(R_1 + R_2) \cdot (R_4 + R_3)} \quad \text{Equation 3- 1}$$

Les résistances  $R_a, R_b, R_c, R_d$  ont été déterminées par résolution d'un système de quatre équations non linéaires à quatre inconnues  $R_1, R_2, R_3, R_4$ . Pour cela, un programme de résolution numérique a été développé sous environnement MATLAB.

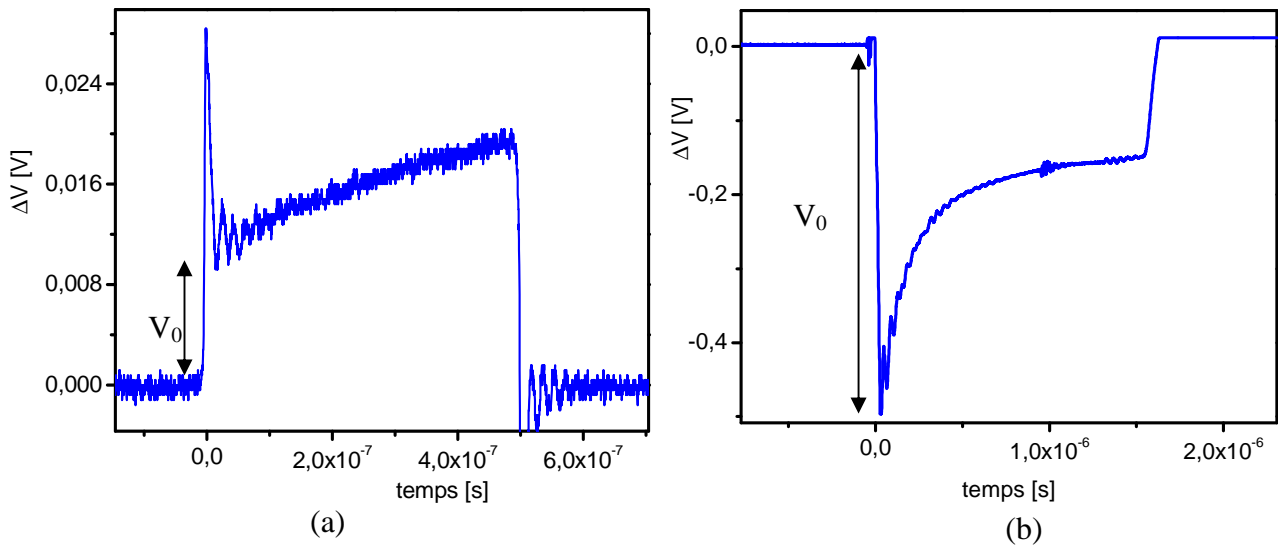


Figure 3- 12. Signal thermique d'un pont initialement déséquilibré avec  
(a)  $V_0$  négatif et (b)  $V_0$  positif

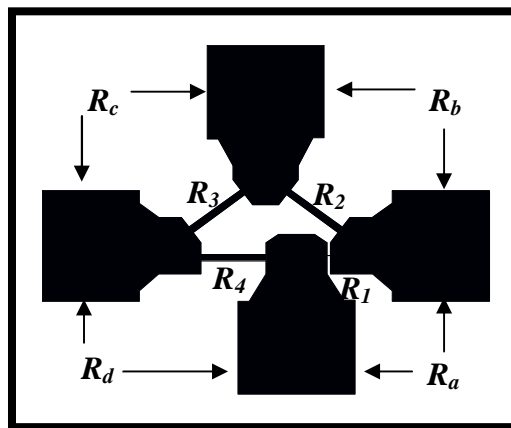
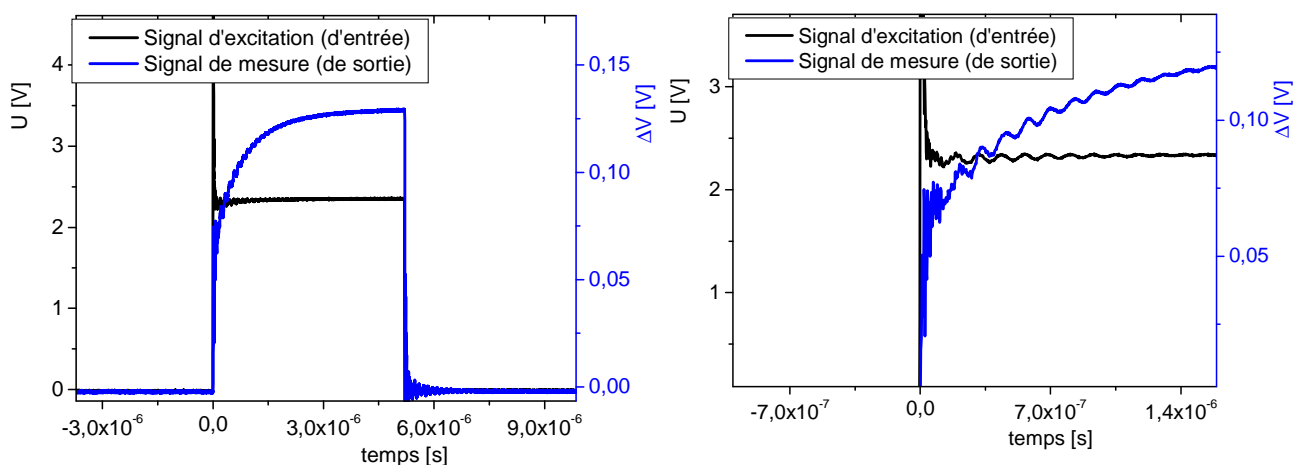


Figure 3- 13. Résistances électriques apparentes  $R_a, R_b, R_c, R_d$  mesurées entre les bornes d'une sonde à une micro-résistance afin de déterminer les valeurs des résistances  $R_1, R_2, R_3, R_4$

### 3.4.3. Optimisation du système de commutation rapide

Nous avons cherché à optimiser le système de commutation rapide pour obtenir des signaux  $U$  et  $V$  avec un bon rapport signal/bruit. La Figure 3- 14 montre un exemple de signaux  $U$  et  $V$  mesurés sur une fenêtre de temps de  $5 \mu s$  avec une sonde à micro-résistance  $20 \mu m \times 200 \mu m \times 50 nm$  reportée sur  $500 nm$ -  $SiO_2/Si$ , qui illustrent l'effet du système de commutation rapide. On a  $U = 2,3 \text{ volt}$  et  $V_0 = 200 \text{ mV}$ . On observe une composante oscillante non thermique sur  $U$  (trait noir continu) et  $V$  (trait bleu continu). L'oscillation s'atténue progressivement dans le temps. Les oscillations de  $V$  sont consécutives à celles de  $U$  mais présentent un déphasage par rapport à  $U$ , ce qui met en évidence une relation de convolution entre  $V$  et  $U$  (Figure 3- 14b). Nous avons choisi de traiter et analyser les signaux sur des temps supérieurs à  $100 \text{ ns}$  pour éviter un traitement numérique trop lourd.

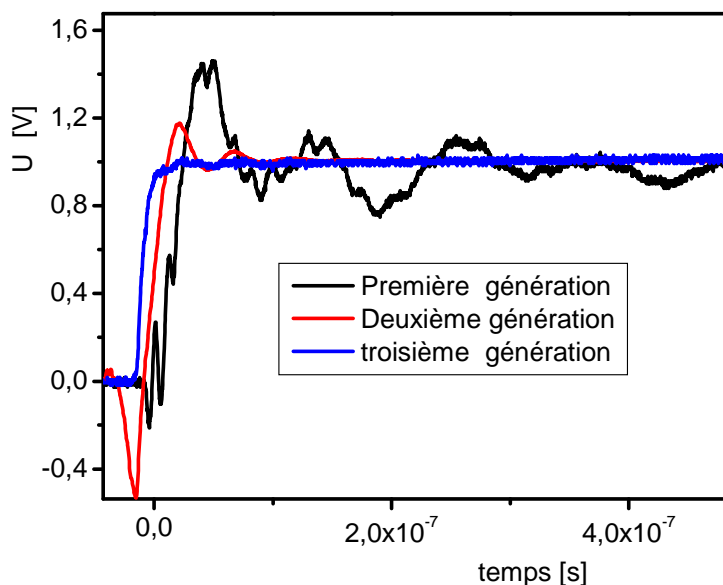


**Figure 3- 14. Exemple de signaux expérimentaux illustrant l'effet du système de commutation rapide pour une durée d'impulsion de  $5 \mu s$ . Courbes noires : signal d'entrée  $U$  ; courbes bleues : signal de sortie  $V$ . (a) Signaux  $U$  et  $V$  sur une fenêtre de temps de  $12 \mu s$  (b) Détail des signaux  $U$  et  $V$  pour la première microseconde mettant en évidence la composante non-thermique du signal.**

*Celle-ci est une oscillation amortie.*

La conception, la réalisation et l'optimisation du système de commutation rapide ont été menées en partenariat avec l'équipe nantaise de l'Institut d'Electrique et de Télécommunications de Rennes (Marc Brunet). Son optimisation s'est effectuée en trois étapes qui ont conduit à la fabrication de trois générations de cartes électroniques intégrant des composants montés en surface. La première génération de cartes reposait sur la commande d'un transistor rapide type MOSFET IRL510 par un générateur d'impulsions [1]

contrôlant l'ouverture et la fermeture, la source de puissance étant assurée par des batteries au Lithium. Ce système permettait de générer des impulsions de tension avec une durée de montée de l'ordre de 100 ns. Les signaux U et V présentaient de fortes perturbations sur 400 ns environ, ce qui rendait difficile une mesure avant cet instant (voir Figure 3- 15, courbe noire). La seconde génération de cartes utilisait un driver type TC4426A [2] commandé par un générateur d'impulsions et pilotant un transistor monté en push-pull type IRF7389 [3]. Le système de commutation rapide de deuxième génération est représenté schématiquement sur la Figure 3- 16. Le temps de montée était est l'ordre de 40 ns et les signaux perturbés pendant environ 80 ns (figure 3-15, courbe rouge). La dernière génération de carte de commutation utilisait un composant DEIC 420 intégrant un driver et un transistor montés en push-pull [4]. Le montage, présenté Figure 3- 17, intégrant ces deux composants permet de réduire les perturbations induites par l'alimentation de chaque composant et d'éviter les problèmes d'adaptation entre eux. Ce montage a permis d'obtenir un temps de montée de l'ordre de 20 ns et une durée de perturbation de 40 ns (Figure 3- 15, courbe bleue). La carte de dernière génération est deux fois plus petite que les cartes précédentes.



**Figure 3- 15. Signal d'entrée  $U(t)$  issus des cartes de commutation rapide de première (courbe noire), deuxième (courbe rouge) et troisième génération (courbe bleue) développées pour l'alimentation des sondes thermiques**

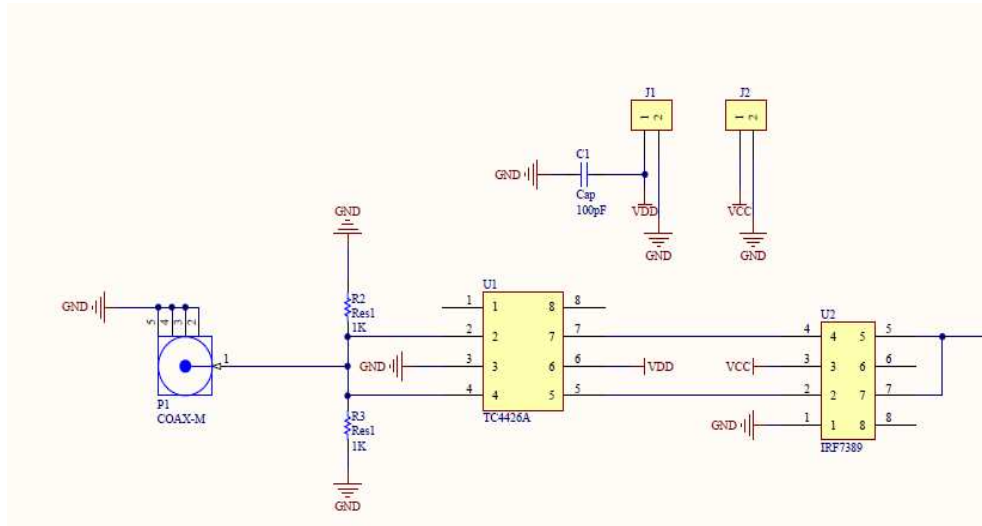


Figure 3- 16. Système de commutation rapide de deuxième génération utilisant un driver type TC4426A [2] commandé par un générateur d'impulsion et pilotant un transistor monté en push-pull type IRF7389 [3]

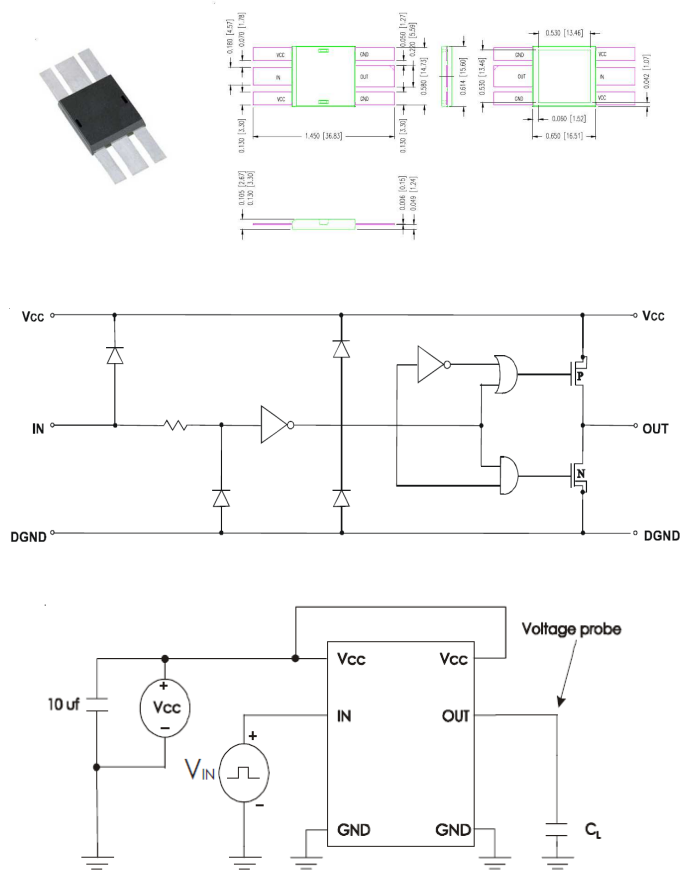


Figure 3- 17. Système de commutation rapide de troisième génération utilisant un composant DEIC 420 constitué d'un driver et un transistor monté en push-pull

### 3.5. Tests de validation

Des tests ont été effectués sur différents matériaux utilisés en microélectronique en tant que substrat (silicium), couche de passivation (SiO<sub>2</sub>, SiN, résine polyimide), et couche à faible permittivité (SiOC). Nous présentons dans ce paragraphe les résultats obtenus.

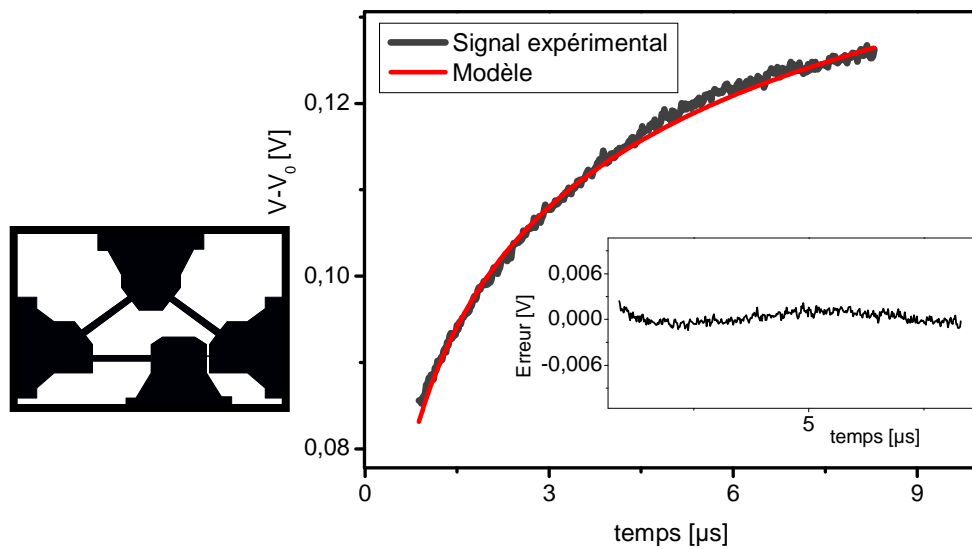
#### 3.5.1. Tests avec sondes 20 µm x 200 µm

Les résultats des tests réalisés avec une micro-résistance de 20 µm x 200 µm sont résumés dans le Tableau 3- 1. La Figure 3- 18 montre l'évolution de la tension de sortie mesurée sur le silicium et calculée avec  $k = 145 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Cette valeur est proche ( $\pm 1\%$ ) de celle donnée dans la littérature pour le silicium à 300K ( $148\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , [5]). Les mesures effectuées sur des couches minces de SiO<sub>2</sub>, SiN et SiOC déposées sur silicium donnent de bons résultats. La Figure 3- 19 donne l'évolution de la tension de sortie et la courbe d'étalonnage du capteur et les coefficients de sensibilité à  $k$  et  $Cp.\rho$ . On a mis en évidence la possibilité de mesurer simultanément  $k$  et  $Cp.\rho$  sur SiO<sub>2</sub> et SiN. Le bon accord entre les mesures et le modèle indique la qualité de l'extraction des paramètres. Pour 500 nm et 1200 nm de SiO<sub>2</sub> à 300 K, on trouve respectivement  $k = 1,28 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $Cp.\rho = 1,58 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ , et  $k = 1,3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $Cp.\rho = 1,6 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ , valeurs qui sont en bon accord avec celle de la littérature. T. Yamane *et al.* [6] donne une conductivité thermique à 300 K égale à  $k = 1,34 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et une capacité calorifique de  $1,59 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ , en accord avec A. Malen *et al.* [7]. Nous n'avons pu identifier que la conductivité thermique de SiOC. La faible sensibilité de la mesure n'a pas permis de mesurer la capacité calorifique de SiOC.

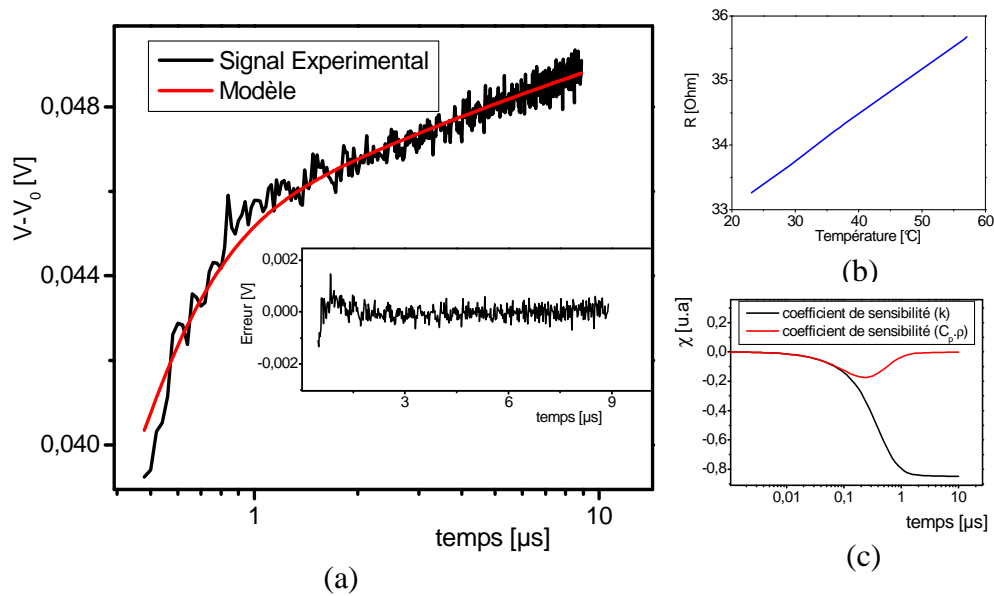


**Tableau 3- 1. Propriétés thermiques mesurées par la technique électrique à 20 °C de différents matériaux : Si, SiO<sub>2</sub>/Si, SiN/Si et SiOC/Si.**

	Epaisseur	Résultats expérimentaux		Bibliographie	
		k (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	C <sub>p</sub> .ρ x 10 <sup>6</sup> (J.m <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup> )	k (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )	C <sub>p</sub> .ρ x 10 <sup>6</sup> (J.m <sup>-3</sup> K <sup>-1</sup> )
Si	substrat	145		148	1,66
SiO <sub>2</sub>	500 nm/Si	1,28	1,58	1,34 [6]	1,59 [6,7]
	1,2 μm/Si	1,3	1,6		
SiN	235 nm/Si	0,7	1,9	0,7 [8,9]	1,9 [8,9]
SiOC	97 nm/Si	0,34		~ 0,4 [10]	> 1,6



**Figure 3- 18. Evolution du signal de sortie entre 0-10 μs mesuré avec une sonde Cr/Au de 20 μm x 200 μm déposée sur silicium (courbe noire) et calculé avec  $k = 145 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  (courbe rouge). En encart : écart entre le signal mesuré et le signal calculé**



**Figure 3- 19. (a) Evolution du signal de sortie entre 0-10  $\mu\text{s}$  mesuré avec une sonde Cr/Au de  $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$  déposée sur 500 nm de  $\text{SiO}_2 / \text{Si}$  (courbe noire) et calculé avec  $k = 1,28 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , et  $C_{p,\rho} = 1,58 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ , (courbe rouge) (b) courbe d'étalonnage de la micro-résistance, coefficient de température  $\beta = 2.2 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ , et (c) Evolution des coefficients de sensibilité à  $k$  (courbe noire) et  $C_{p,\rho}$  (courbe rouge).**

Dans un second temps, nous nous sommes également intéressés à la validation des sondes à deux micro-résistances  $10 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$  (Figure 3- 20b). La Figure 3- 20a montre l'évolution du signal de sortie entre 0-10  $\mu\text{s}$  mesuré avec une sonde Cr/Au de  $10 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$  déposée sur 1200 nm de  $\text{SiO}_2 / \text{Si}$  (courbe noire) et calculé avec  $k = 1,3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , et  $C_{p,\rho} = 1,6 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ . Les valeurs sont également en bon accord avec les données de la littérature.

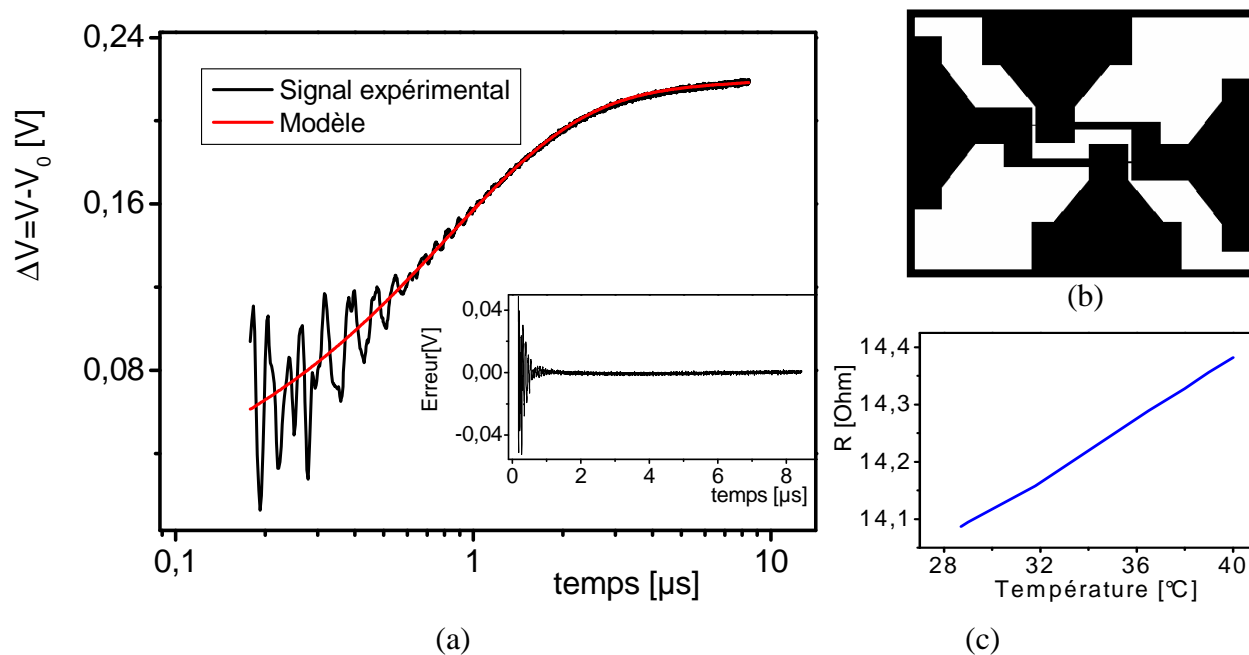


Figure 3- 20. (a) Evolution du signal de sortie entre 0-10  $\mu\text{s}$  mesuré avec une sonde Cr/Au à deux micro-résistances de  $10\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$  déposée sur 1200 nm de  $\text{SiO}_2 / \text{Si}$  (courbe noire) et calculé avec  $k = 1,3\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , et  $C_p.\rho = 1.6 \times 10^6\ \text{J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  (courbe rouge). (b) Forme de la micro-sonde utilisée. (c) Courbe d'étalonnage résistance-température de la sonde

### 3.5.2. Tests avec sondes miniaturisées

La réduction de taille des micro-résistances doit permettre d'améliorer la sensibilité de la mesure comme cela a été montré par simulation (chapitre 2). Le Tableau 3- 2 donne l'ensemble des résultats obtenus sur différentes tailles de micro-résistances  $10\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$ ,  $3\ \mu\text{m} \times 30\ \mu\text{m}$ ,  $2\ \mu\text{m} \times 20\ \mu\text{m}$ . On observe un bon accord avec les résultats de la littérature. A titre d'exemple, nous présentons sur la Figure 3-21 le signal mesuré avec une micro-résistance Au-Cr de  $3\ \mu\text{m} \times 30\ \mu\text{m}$  sur 1200 nm de  $\text{SiO}_2$  sur Si (courbe noire) et le signal calculé avec  $k \approx 1,32\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $k_z = 1,3\ \text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $C_p.\rho = 1,6 \times 10^6\ \text{J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  (courbe rouge). Les dimensions des résistances imposent de prendre en compte l'échauffement des macro-résistances  $30\ \mu\text{m} \times 300\ \mu\text{m}$  (équations 3-7 et 3-8. du chapitre 2). Il apparait un bon accord entre les signaux, ce qui démontre, du fait des valeurs des coefficients de sensibilité, la possibilité d'extraire simultanément ( $k_x$ ,  $k_z$ ,  $C_p.\rho$ ). Les valeurs très proches de  $k_x$ , et  $k_z$  confirment le caractère isotrope du dépôt.

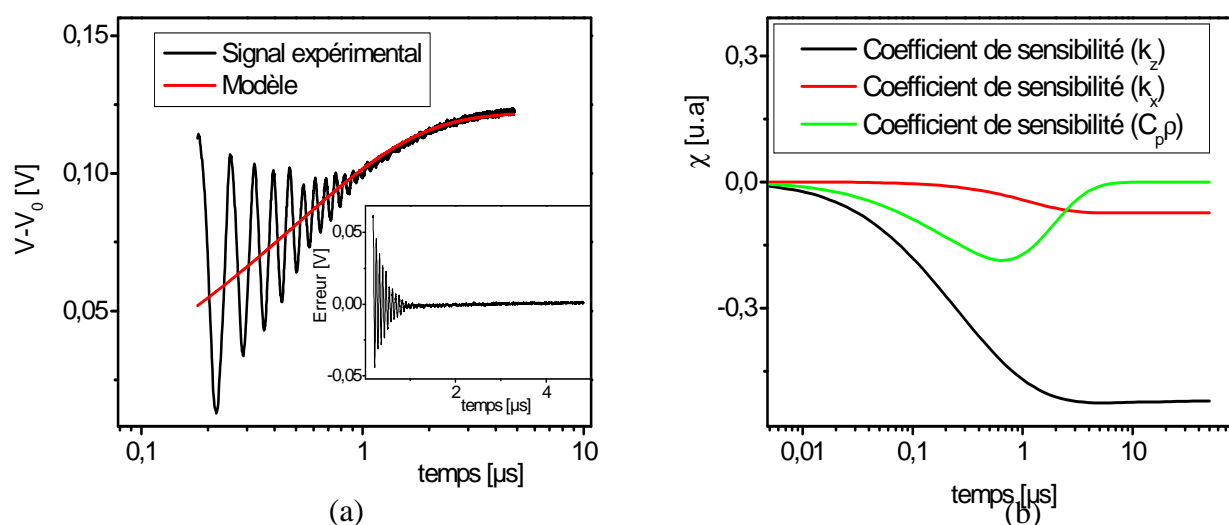


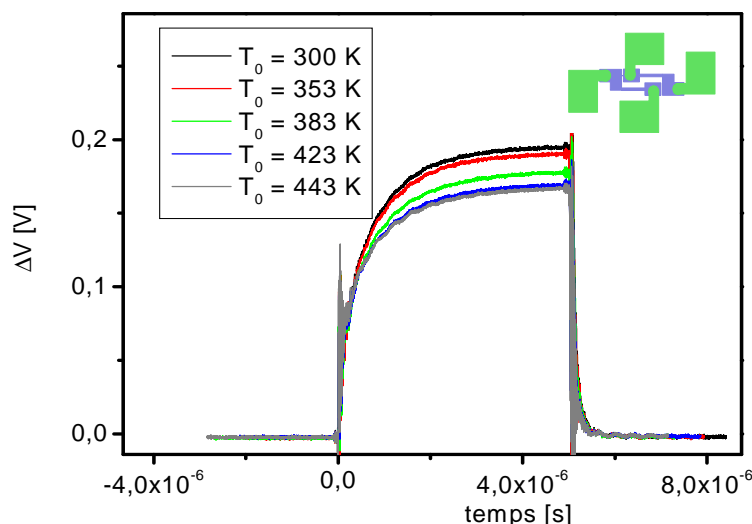
Figure 3- 21. (a) Signal mesuré avec une micro-résistance Au-Cr de  $3 \mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$  sur  $1200 \text{ nm}$  de  $\text{SiO}_2$  sur Si entre  $200 \text{ ns}$  et  $10 \mu\text{s}$  (courbe noire) et signal calculé avec  $k_x \approx 1,32 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $k_z = 1,3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $C_p \cdot \rho = 1,6 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ . (courbe rouge). (b) Coefficients de sensibilité aux conductivités thermiques selon  $x$  et  $z$  ( $k$ ) et de la capacité calorifique ( $C_p \cdot \rho$ )

Tableau 3- 2. Résultat des tests réalisés sur  $1200\text{nm-SiO}_2/\text{Si}$  avec des micro-résistances de différentes dimensions de  $2 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$  à  $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$

dimensions	Résultats expérimentaux		Bibliographie	
	$k$ ( $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ )	$C_p \cdot \rho \times 10^6$ ( $\text{J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ )	$k$ ( $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ )	$C_p \cdot \rho \times 10^6$ ( $\text{J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ )
Pont simple				
$20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$	1,28	1,58	1,34 [6]	1,59 [6,7]
$3 \mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$	1,3	1,6		
$2 \mu\text{m} \times 20 \mu\text{m}$	1,3	1,6		
Pont double				
$10 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$	1,3	1,6	1,34 [6]	1,59 [6,7]
$3 \mu\text{m} \times 30 \mu\text{m}$	1,3	1,6		

### 3.5.3. Tests sous environnement à température variable

Nous avons testé la possibilité d'effectuer des mesures de propriétés thermiques dans un environnement à température variable. Nous présentons ici les résultats obtenus avec une sonde à deux micro-résistances  $10\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$  reportée sur  $1200\ \text{nm}\text{-SiO}_2/\text{Si}$  et placée dans un four dont la température varie entre 300 et 443 K. Les signaux de sortie obtenus à 300, 353, 383, 423, et 443 K avec une largeur d'impulsion de  $5\ \mu\text{s}$  sont présentés sur la Figure 3-22. La diminution de l'intensité du signal de déséquilibre de la sonde indique la dépendance des propriétés thermiques du film de  $\text{SiO}_2$  avec la température du four. La Figure 3-33 donne les résultats de l'estimation de la conductivité thermique  $k$  et de la capacité calorifique  $Cp.\rho$  entre 300 K et 443 K, obtenus par l'analyse des signaux de la figure 3-23. Les valeurs obtenues sur cette plage de température sont en bon accord avec les valeurs données dans la littérature, aussi bien pour la conductivité thermique [11,12] que pour la capacité calorifique [13]. Il apparaît que ces capteurs offre la possibilité de réaliser des mesures répétitives avec des cadences qui pourraient être très supérieures à 1 kHz. Ceci permettrait de suivre des évolutions de propriétés rapidement variables liées par exemple, à des réactions chimiques, des processus d'adsorption, ou des transformations physico-chimiques.



*Figure 3- 22. Signal de sortie  $V$  mesuré avec une sonde à deux micro-résistances Cr-Au de  $10\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$  reportée sur  $1200\ \text{nm}\text{-SiO}_2/\text{Si}$  à 300, 353, 383, 423, et 443 K. Toutes les mesures sont effectuées à la même tension d'entrée  $U$ . La largeur d'impulsions est de  $5\ \mu\text{s}$*

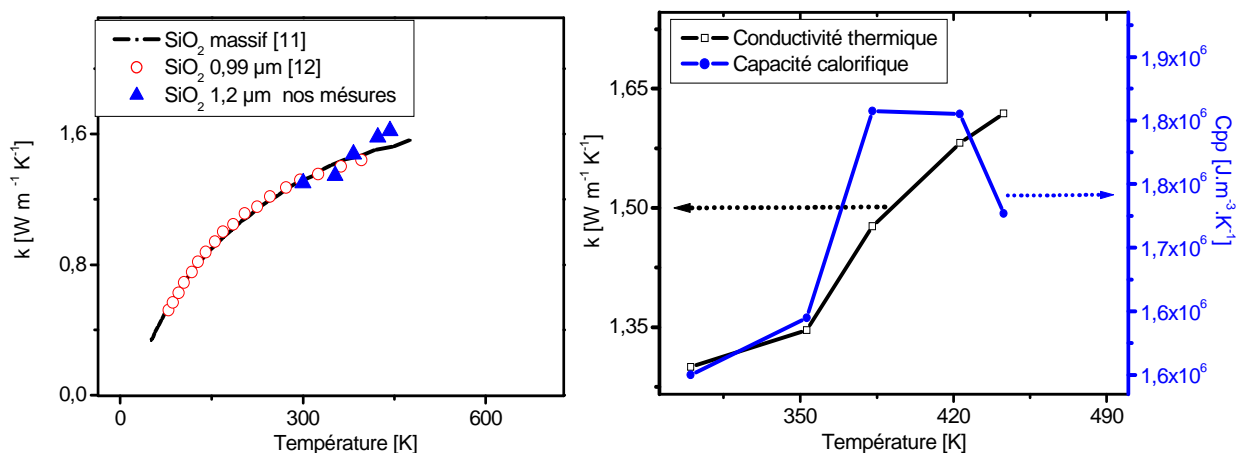
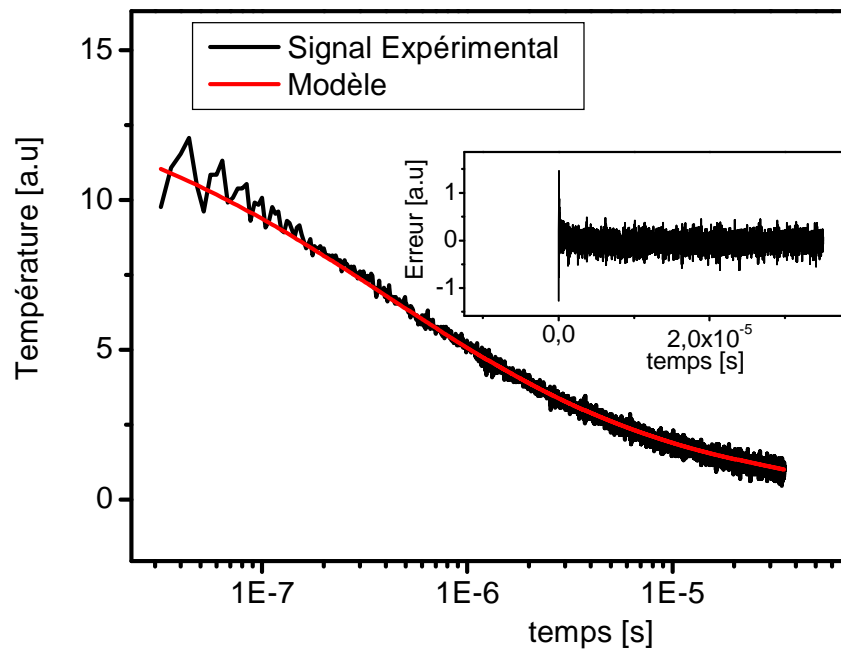


Figure 3- 23. Propriétés thermiques mesurées sur 1200 nm de SiO<sub>2</sub> thermique en fonction de la température. (a) comparaison des valeurs expérimentales avec celles de la littérature. (b) variation de la conductivité thermique et de la capacité calorifique en fonction de la température

### 3.5.4. Tests électro-optiques

La technique électro-optique a été très largement utilisée pour caractériser les propriétés thermiques de nombreux matériaux en couches minces [14-16]. Nous avons vérifié la qualité du dispositif expérimental en caractérisant un film de polyimide (PI) de 2,4 μm sur un substrat d'inox. La Figure 3- 24 montre le signal de température mesuré entre 50 ns et 10 μs avec un macro-ruban en or de 20 mm de longueur, 0,5 mm de largeur, et 100 nm d'épaisseur (courbe noire) et le signal calculé avec la conductivité thermique  $k = 0,21 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et la capacité calorifique  $Cp.\rho = 1,3 \times 10^6 \text{ MJ.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  (courbe rouge). Les valeurs de  $k$  et  $Cp.\rho$  sont en bon accord avec celles données par K. Kurabayashi et al [17,18].



*Figure 3- 24. Signal de température mesuré sur un film de 2,4  $\mu\text{m}$  de polyimide sur inox 304L avec un macro-ruban en or de 20 mm de longueur, 0,5 mm de largeur, et 100 nm d'épaisseur entre 50 ns et 10  $\mu\text{s}$  (courbe noire) et signal calculé avec  $k=0,21 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  et  $Cp.\rho = 1,3\cdot 10^6 \text{ J}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$  (courbe rouge)*

### 3.6. Conclusion

Nous avons décrit le procédé de fabrication des sondes et les dispositifs expérimentaux développés permettant d'utiliser ces sondes de manière optimale avec un bon rapport signal/bruit. Un système de commutation rapide performant, capable de générer des impulsions de courant ayant un temps de montée de quelques 10 ns a été notamment mis au point. Ce système permet d'effectuer des analyses thermiques sur des fenêtres de temps courts, à partir d'environ 40 ns. Nous avons ensuite présenté les étapes qui ont conduit à l'amélioration de la sensibilité de la mesure. Une alternative de mesure intéressante, consistant à produire une impulsion laser nanoseconde sur la résistance thermosensible lorsque la sonde est alimentée de manière continue, a été discutée. Les tests réalisés avec plusieurs types de sondes sur différents matériaux de référence (substrat silicium, couches minces SiO<sub>2</sub>, SiN, Polyimide, SiOC) font apparaître un très bon accord avec les valeurs de la littérature. Il a été établi que la miniaturisation des sondes permet d'accroître la sensibilité de la mesure et offre la possibilité de caractériser les propriétés de films anisotropes selon les directions parallèle et perpendiculaire à la surface. Ceci constitue une originalité et un des points forts de la méthode. La mesure de propriétés thermiques de couches minces dans un environnement à température variable a été par ailleurs démontrée. L'étude met en évidence le fait que les sondes permettent des mesures répétitives à cadence élevée, ce qui permet de suivre des évolutions de propriétés rapidement variables. Les performances des sondes thermiques ouvrent des perspectives d'applications tant dans les domaines de la transformation des matériaux que de la biologie et de la chimie.



### 3.7. Référence

- [1] : ["http://www.vishay.com/docs/91297/91297.pdf"](http://www.vishay.com/docs/91297/91297.pdf).
- [2] : ["http://ww1.microchip.com/downloads/en/devicedoc/21423f.pdf"](http://ww1.microchip.com/downloads/en/devicedoc/21423f.pdf)
- [3] : ["http://www.irf.com/product-info/datasheets/data/irf7389.pdf"](http://www.irf.com/product-info/datasheets/data/irf7389.pdf).
- [4] : ["http://www.ixysrf.com/pdf/driver\\_ICs/DEIC420.pdf"](http://www.ixysrf.com/pdf/driver_ICs/DEIC420.pdf).
- [5] : M. Asheghi , K. Kurabayashi, R. Kasnav, et K. E. Goodson, "Thermal conduction in doped single-crystal silicon films", (2002). *Journal of Applied Physics* **91**, 5079-5088.
- [6] : T. Yamane, N. Nagai, S. Katayama, et M. Todoki, "Measurement of thermal conductivity of silicon dioxide thin films using a  $3\omega$  method", (2002). *Journal of Applied Physics* **91**, 9772-9776.
- [7] : A. Malen , Kanhayalal Baheti, Tao Tong, Yang Zhao, Janice A. Hudgings, "Optical Measurement of Thermal Conductivity Using Fiber Aligned Frequency Domain Thermoreflectance ", (2011). *Journal of Heat Transfer* **133**, 081601-081605.
- [8] : S. M. Lee, E.D.G.C., "Heat transport in thin dielectric films", (1997). *Journal of Applied Physics* **81**, 2590-2595.
- [9] : F. Zhou, A. Persson, L. Samuelson, H. Linke, et L. Shi, "Thermal resistance of a nanoscale point contact to an indium arsenide nanowire", (2011). *Applied Physics Letters* **99**, 063111-063113.
- [10] : K. Maex, M. R. Baklanov, D. Shamiryan , F. Iacopi, S. H. Brongersma, et Z. S. Yanovitskaya, "Low dielectric constant materials for microelectronics", (2003). *Journal of Applied Physics* **93**, 8793-8841.
- [11] : D. G. Cahill, E.T.H.A., "Thermal conductivity of sputtered and evaporated SiO<sub>2</sub> and TiO<sub>2</sub> optical coatings", (1994). *Applied Physics Letters* **65**, 309-311.
- [12] : D. G. Cahill, "Thermal conductivity measurement from 30 to 750 K: The  $3\omega$  method", (1990). *Review of Scientific Instruments* **61**, 803-808.
- [13] : R. C. Keller, E.R.O.P., "Thermal Conductivity and Specific Heat of Noncrystalline Solids", (1971). *Physical Review B* **4**, 2029-2041.

[14] : S. Orain, Y. Scudeller, S. Garcia, et T. Brousse, "Use of genetic algorithms for the simultaneous estimation of thin films thermal conductivity and contact resistances", (2001). *International Journal of Heat and Mass Transfer* **44**, 3973-3984.

[15] : S. Orain, Y. Scudeller, et T. Brousse, "Thermal conductivity of ZrO<sub>2</sub> thin films", (2000). *International Journal of Thermal Sciences* **39**, 537-543.

[16] : B. Popescu, Y. Scudeller, T. Brousse, et B. Garnier, "Thermal characterization of dielectric thin films using an improved genetic algorithm ", (2004). *Supperlattices and Microstructures* **35**, 239-252.

[17] : K. Kurabayashi, M. Asheghi, M. Touzelbaev, et K. E. Goodson, "Measurement of the Thermal Conductivity Anisotropy in Polyimide Films", (1999). *IEEE Journal OF Microelectromechanical Systems* **8**, 1980-1991.

[18] : Y.S. Ju, K. Kurabayashi, et K.E. Goodson, "Thermal characterization of anisotropic thin dielectric films using harmonic Joule heating", (1999). *Thin Solid Films* **339** , 160-164.

## Chapitre 3 : Dispositifs expérimentaux et tests de validation

## **4. Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas**

### **4.1. Introduction**

Ce chapitre présente les résultats des mesures des propriétés thermiques de films de nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas. Dans ces études, nous avons cherché à établir des liens entre les propriétés thermiques, les microstructures et les conditions d'élaboration des matériaux. Ce travail a été mené pour étudier les performances de bons conducteurs thermiques dans des applications visant à les utiliser pour évacuer la chaleur générée dans les composants de puissance et réduire ainsi les températures de fonctionnement. Dans le cadre de cette étude, l'intégration de couches minces de nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone est envisagée dans les transistors HEMT et les lasers à cascades quantiques.

Dans ce chapitre, nous présentons tout d'abord les résultats d'une étude mettant en évidence l'effet des conditions de dépôt et de la nature du substrat sur la conductivité thermique et la microstructure du nitrure d'aluminium déposé par pulvérisation magnétron. Nous présentons ensuite des mesures de propriétés thermiques de tapis de nanotubes et nanoparois de carbone déposés par procédés plasmas. Nous présentons également des mesures réalisées sur des composites formées de nano-parois de carbone encapsulées dans du nitrure d'aluminium. Les mesures ont nécessité la mise au point d'une technique originale mettant en évidence les excellentes performances thermiques des nanostructures de carbone.

## 4.2. Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium élaboré par pulvérisation magnétron

Le nitrure d'aluminium (AlN) est un matériau semiconducteur III-V à large bande interdite (6.2 eV) ayant une structure cristalline hexagonale [1]. Aux températures usuelles, le transport de chaleur dans ce matériau est assuré par les phonons [2]. A 300 K, le monocristal d'AlN possède une conductivité thermique  $k = 320 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  [2-4], qui résulte d'un libre parcours moyen des phonons d'environ 100 nm. La conductivité intrinsèque de l'AlN correspondant au monocristal de grande dimension, est difficile à atteindre expérimentalement en raison de la présence inévitable de défauts et d'impuretés dans le matériau. De nombreuses études ont montré que la conductivité thermique de l'AlN polycristallin dépend de nombreux facteurs tels que la taille de grains, le taux d'oxygène, l'orientation des plans du réseau cristallin [5,6]. En effet, la présence d'impuretés et de joints de grains a pour effet de réduire le libre parcours moyen des phonons et de diminuer ainsi la conductivité thermique [8,9].

Les propriétés thermiques des couches minces diffèrent de celles des matériaux massifs en raison de différence de microstructure et de la présence d'interfaces dans les directions perpendiculaires et parallèles à la surface du substrat. Ceci explique la grande dispersion des valeurs de conductivité thermique relevées dans la littérature pour l'AlN en couche mince. Ces valeurs diffèrent de plusieurs ordres de grandeur selon le procédé d'élaboration et les caractéristiques structurales du matériau.

L'AlN déposé en couche mince par des méthodes plasmas possède généralement une structure colonnaire hétérogène qui évolue au cours de la croissance [10,11]. Cette structure est désordonnée près du substrat puis mieux organisée à mesure que l'épaisseur du film augmente. Ainsi, plus on s'éloigne de l'interface avec le substrat, meilleure est la qualité de l'AlN. En général, le volume du film (« bulk ») est constitué de colonnes ordonnées de bonne qualité cristalline. La structure de l'interface est complexe. Aux premiers instants de la croissance, on observe une couche d'AlN amorphe et la présence de contaminants, en particulier l'oxygène [7]. La présence d'oxyde natif à l'interface AlN/Si est à l'origine de cette contamination. Elle conduit à la formation d'oxyde d'aluminium ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), d'oxynitrure (AlON), et/ou d'AlN amorphe. Il existe relativement peu d'informations dans la littérature sur

cette interface en raison de son caractère amorphe, ce qui rend difficile la différenciation des oxydes et des nitrures à ces échelles nanométriques.

#### 4.2.1. Effet des conditions d'élaboration

Nous nous sommes tout d'abord intéressés à la caractérisation des propriétés thermiques de films d'AlN déposés par pulvérisation cathodique magnétron DC réactive sur du silicium monocristallin orienté (100) avec différentes configurations du champ magnétique et compositions du plasma. L'objectif de cette étude était de mettre en évidence l'effet de la qualité cristalline des microstructures d'AlN produites sur leurs propriétés thermiques, ceci en fonction de l'épaisseur déposée. Les dépôts d'AlN et leurs analyses structurales par Diffraction des Rayons-X (DRX), Microscope Electronique à Balayage (MEB) et Microscope Electronique en Transmission (MET) ont été effectués dans le cadre de la thèse de A. Soussou [12]. Certains résultats de la thèse de C. Duquenne [11] ont été utilisés dans ce travail.

Les films AlN ont été déposés en utilisant une cible d'aluminium 50 mm (99,9995 % de pureté) dans un mélange argon/azote (Ar/N), sans chauffage. La pression de dépôt est dans la gamme 0,3 à 2 Pa et le pourcentage d'azote est compris entre 20 et 40%. La puissance appliquée à la cible est de 150 W. Trois groupes de films d'AlN, désignés par I-II-III ont été préparés. Chaque groupe de films correspond à des configurations particulières du magnétron de la cathode et de pression résiduelle dans la chambre de dépôt sous vide. Il a été établi que la modification de ces conditions conduit à une grande variété de microstructure et de qualité cristalline [13]. Dans sa thèse de doctorat, C. Duquenne a montré que la configuration du magnétron, le champ magnétique, la distance cible/substrat, la pression, la puissance et le taux d'azote peuvent influencer significativement sur la qualité cristalline et la grandeur de la conductivité thermique des films d'AlN [11]. Les films I ont été déposés avec une configuration équilibrée de la cathode de magnétron, une distance entre cible et échantillon de 40 mm, une pression résiduelle de  $2,67 \times 10^{-4}$  Pa ( $2 \times 10^{-6}$  Torr), un pourcentage d'azote de 20 % et une pression de la décharge de 1 Pa (7,5 mTorr). Les films II et III ont été déposés avec une configuration déséquilibrée de la cathode magnétron à une distance entre cible et échantillon de 30 mm. Les films II ont été déposés avec une pression résiduelle de  $2,67 \times 10^{-4}$  Pa ( $2 \times 10^{-6}$  Torr), une fraction de volume d'azote de 20 % et une pression de la décharge de 0,26 Pa (2 mTorr). Les films III ont été déposés avec une pression résiduelle de  $2,67 \times 10^{-5}$  Pa ( $2 \times 10^{-7}$  Torr) et une fraction volumique d'azote de 35 % à une pression de la

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

décharge de 0.4 Pa (3 mTorr). Les conditions de dépôt et les caractéristiques structurales des films AlN I-II-III sont résumées dans le Tableau 4- 1.

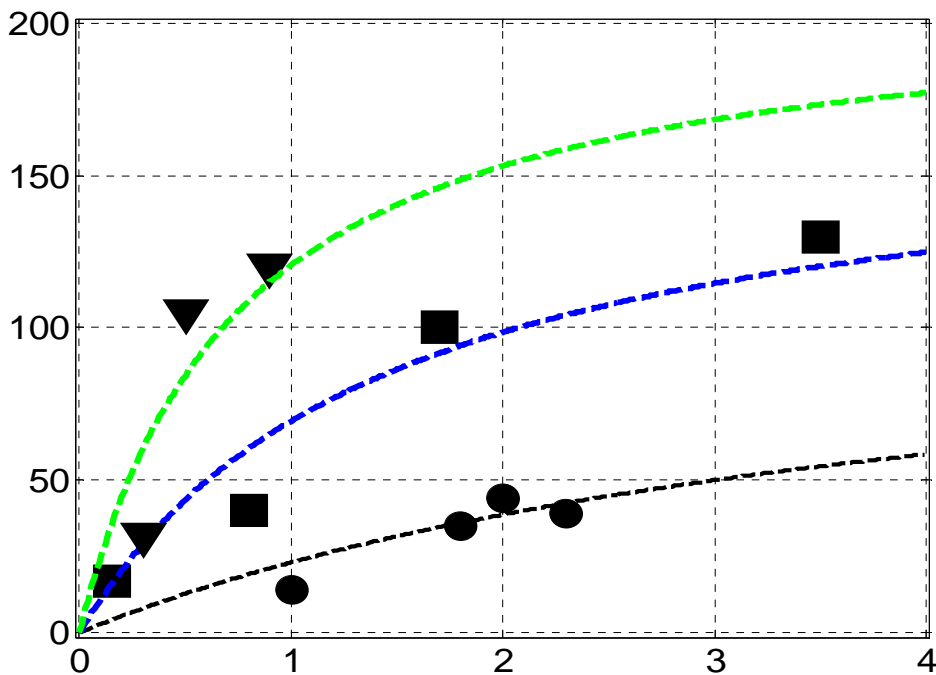
**Tableau 4- 1. Paramètres de dépôt des trois groupes de films AlN microcristallins déposés à basse température par pulvérisation magnétron réactif DC.**

Groupes	Configuration magnétron	FWHM-RC AlN-2.5 $\mu$ m (002)	%N <sub>2</sub>	%O	Tailles des grains* (nm)	Couche amorphe** (nm)
<b>I</b>	Équilibré	>10 pour (101)	20	2	30	5
<b>II</b>	Déséquilibré	2.2	20	0.2	>100	2
<b>III</b>	Déséquilibré	1.6	35	<0.2	>150	0.5

- \* La taille des grains a été déterminée par DRX pour le film de type I et par microscopie TEM pour les deux films de types II et III.
- \*\* l'épaisseur de la couche amorphe entre le film AlN et le substrat Si a été évaluée par microscopie TEM.

La conductivité thermique des films AlN I-II-III a été mesurée à température ambiante par la technique du ruban chaud transitoire décrite dans les chapitres précédents. Nous avons utilisé des capteurs en aluminium de 50 nm d'épaisseur avec une taille de ruban chaud de 20  $\mu$ m x 200  $\mu$ m. La Figure 4- 5 donne un exemple de deux signaux de température mesurés entre 0 et 10  $\mu$ s sur deux films III de 900 nm d'épaisseur pour une puissance de 0,8 Watt. La densité de puissance dissipée dans la micro-résistance d'aluminium est de  $2 \times 10^8$  W.m<sup>-2</sup>. La conductivité des films est identifiée avec un modèle de diffusion thermique 2D supposant l'absence de résistance d'interface entre film et substrat. Ceci implique que la conductivité identifiée est une conductivité apparente prenant en compte la couche d'interface de moins bonne qualité cristalline. En pratique, il n'est pas possible d'estimer sur le même signal de température la conductivité thermique du film dans le volume (conductivité intrinsèque) et la résistance d'interface. Ces deux paramètres sont corrélés. La conductivité thermique effective de chaque film d'AlN a été estimée en considérant que la capacité calorifique est de  $2,5 \times 10^6$  J.m<sup>-3</sup>.K<sup>-1</sup> [14], et que la conductivité thermique et la capacité thermique sont égales à celles du silicium (Si) monocristallin (  $148$  W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> et  $1,66 \times 10^6$  J.m<sup>-3</sup>.K<sup>-1</sup>, respectivement [15]). Ces valeurs sont données à 300 K.

La Figure 4- 1 montre la conductivité thermique effective  $k$  des films AlN I, II, et III en fonction de leur épaisseur  $\ell$ . Les valeurs mesurées de  $k$  sont tracées en cercles noirs pour les films I, en carrés noirs pour les films II, en triangles noirs pour les films III. Les données expérimentales des films I et II sont issues des travaux de thèse de C. Duquenne [11]. Sur la figure 4.1, on constate un fort accroissement de  $k$  avec  $\ell$  en fonction des conditions de synthèse.



*Figure 4- 1. Conductivité thermique effective des films AlN I-II-III déposés par pulvérisation magnétron réactive sur Si (100) selon différentes épaisseurs*

Les valeurs expérimentales de  $k$  se situent dans la gamme 1-50 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> pour les films I lorsque  $\ell$  est compris entre 1000 nm et 2500 nm, 10-140 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> pour les films II lorsque  $\ell$  est compris entre 200 nm et 3500 nm et 30 à 120 W.m<sup>-1</sup>.K<sup>-1</sup> pour les films III lorsque  $\ell$  est compris entre 300 nm et 900 nm. Les conductivités obtenues pour les films III sont beaucoup plus élevées que celles rapportées dans la littérature pour des films d'AlN. Des conditions magnétiques appropriées permettent donc d'augmenter considérablement la qualité cristalline des films d'AlN et ainsi leur conductivité thermique. Ceci est cohérent avec les études antérieures, réalisées dans le cadre des thèses de C. Duquenne [11] et B. Abdallah [10],



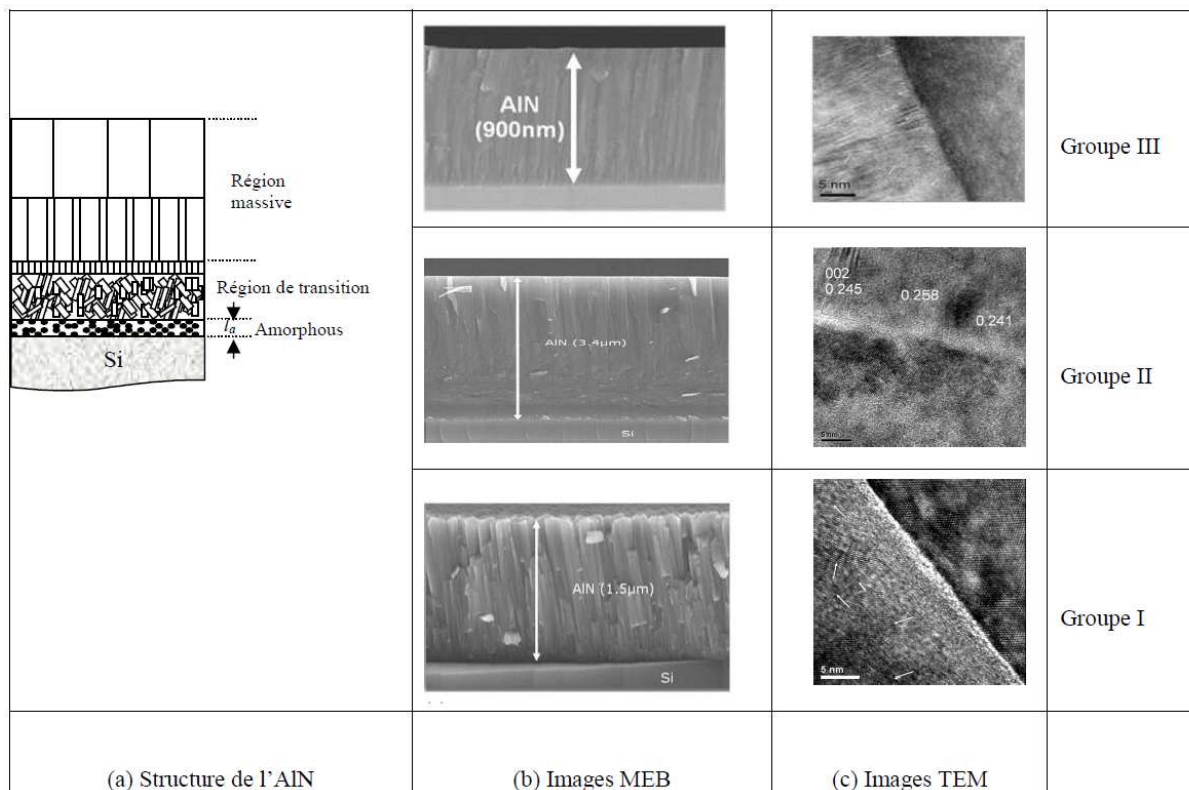
## Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

qui révèlent que la configuration équilibrée favorise une décharge homogène avec un faible flux d'ions et une faible densité d'électrons, mais également un flux d'espèces réactives élevé et, en sens inverse, un flux d'aluminium (Al) atomique faible. La croissance de l'AlN étant fortement dépendante de la phase plasma, il apparaît des orientations cristallines préférentielles ((100), (002), et (101)) fonction du taux d'azote. Ces orientations multiples conduisent à des grains de petites tailles qui limitent le libre parcours moyen des phonons dans le matériau. Par contre, la configuration déséquilibrée fournit un flux élevé d'espèces métalliques et des ions, associés à une production limitée d'espèces AlN dans la phase plasma et une forte augmentation du taux de flux d'ions des atomes métalliques. L'énergie des espèces incidentes sur l'échantillon est comprise entre 20 et 30 eV, aboutissant à un film d'AlN dense, orienté suivant (002) et présentant une haute qualité cristalline. En résumé, la configuration déséquilibrée augmente sensiblement le bombardement ionique, permettant ainsi la croissance de films de meilleure qualité avec des tailles de grains supérieures à 100 nm [13]. Ces tailles de grains sont du même ordre que le libre parcours moyen des phonons dans le monocristal d'AlN.

Des analyses physico-chimiques et structurales plus fines ont montré que la taille moyenne des grains est  $W = 30$  nm pour le groupe I,  $W = 100$  nm pour le groupe II, et  $W = 150$  nm pour le groupe III (voir Tableau 4- 1). Ces valeurs ont été estimées à partir de l'équation de Scherer [16] lorsque  $W$  était inférieure à 100 nm et par microscopie électronique lorsqu'elle était supérieure à cette valeur [12]. L'augmentation de  $W$  s'accompagne donc d'une augmentation de la conductivité thermique des films d'AlN. Les conditions de croissance du groupe III ont permis d'obtenir des films très texturés ayant des conductivités thermiques plus élevées que celles des deux autres groupes. Cette qualité cristalline supérieure pour les films du groupe III a été confirmée par les valeurs de Rocking-Curve correspondant à la largeur à mi-hauteur du pic (002) de l'AlN en configuration DRX  $\theta-\theta$  ( $1,6^\circ$  pour 2,5  $\mu\text{m}$  AlN-III, contre  $2,2^\circ$  pour l'AlN-II, voir Tableau 4- 1). De plus, les observations MEB, présentées sur la Figure 4- 2b, montrent que les films présentent tous une structure colonnaire, mais les films des groupes II et III apparaissent plus compacts que ceux du groupe I. On met ici en évidence la structure hétérogène des films que l'on peut subdiviser en trois zones, comme schématisée sur la Figure 4- 2a :

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

- (i) une zone de volume, dite intrinsèque, se prolongeant jusqu'à la surface du film, présentant des grains de taille importante et une orientation cristalline préférentielle,
- (ii) une zone amorphe près de l'interface avec le substrat Si, dont l'épaisseur, de quelques nanomètres, est variable avec les conditions de dépôt,
- (iii) une zone de transition située entre la zone amorphe et le volume du film (*bulk*). C'est une zone d'adaptation de la structure cristalline entre la structure désordonnée à l'interface et celle organisée dans le volume du film. La zone de transition est constituée de grains de taille variable ayant différentes orientations cristallines aléatoirement réparties. L'épaisseur de cette zone est de l'ordre de 50 à 100 nm ; elle varie avec les conditions de dépôt.



**Figure 4- 2. Propriétés structurales des trois groupes d'AlN. (a) structure de l'AlN, (b) observation MEB des faces clivées et (c) observations TEM de l'interface AlN/Si**

Nous pouvons introduire un modèle tenant compte de la structure hétérogène du film d'épaisseur  $\ell$  permettant d'exprimer la conductivité mesurée  $k$  en fonction de la conductivité

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

du film à cœur  $k_i$ , appelée conductivité intrinsèque, et de la résistance thermique d'interface film-substrat, notée  $G^{-1}$ . Nous pouvons ainsi écrire :

$$\ell/k = \ell/k_i + G^{-1} \quad \text{Equation 4- 1}$$

$G^{-1}$  est une résistance additionnelle incluant l'ensemble des contributions résistives de la zone amorphe et de la zone de transition. On peut extraire les paramètres  $k_i$  et  $G^{-1}$  par ajustement des résultats expérimentaux de la Figure 4- 1 avec l'équation (4-1) du modèle. Nous avons obtenu les valeurs  $k_i = 120 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $G^{-1} = 36 \times 10^{-9} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$  pour le film I,  $k_i = 170 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $G^{-1}_{\text{II}} = 8,7 \times 10^{-9} \text{ K. m}^2.\text{W}^{-1}$  pour le film II,  $k_i = 200 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , et  $G^{-1}_{\text{III}} = 3,5 \times 10^{-9} \text{ K. m}^2.\text{W}^{-1}$  pour le film III. Les différentes valeurs obtenues pour  $k_i$  et  $G^{-1}$ , indiquent que les conditions de synthèse influencent simultanément ces deux propriétés, caractéristiques de la structure et de la microstructure des différentes régions du film (amorphe, transition, intrinsèque).  $G^{-1}$  dépend à la fois des caractéristiques de la couche amorphe et de la couche de transition. Comme le libre parcours moyen des phonons associés à chaque couche est beaucoup plus petit que l'épaisseur de la couche, on peut admettre en première approximation que  $G^{-1}$ , est la somme de la résistance de la couche amorphe  $G^{-1}_a$  et de celle de la couche de transition  $G^{-1}_t$ . Ainsi, on peut écrire :

$$G^{-1} = G^{-1}_a + G^{-1}_t \quad \text{Equation 4- 2}$$

On considère que  $G^{-1}_a = \ell_a/k_a \cdot \ell_a$  et  $k_a$  sont respectivement, l'épaisseur et la conductivité thermique de la couche amorphe. L'expression (4-2) a été démontrée par un modèle thermique purement diffusif prenant en compte une distribution variable de taille de grain par l'introduction dans ce modèle d'une conductivité thermique non homogène (voir l'annexe IV). Nous avons évalué  $G^{-1}_a$  en estimant d'une part  $\ell_a$  à partir d'images TEM de l'interface AlN/Si (Figure 4- 2c) et en affectant à  $k_a$  la valeur minimale de conductivité thermique  $k_{\min}$  de l'AlN amorphe calculable avec le modèle de Slack [2] par la formule :

$$k_{\min} = \left(\frac{\pi}{6}\right)^{1/3} \cdot k_B \cdot n^{2/3} \cdot \sum_{i=1}^3 V_i \cdot \left(\frac{T}{\theta_i}\right)^2 \cdot \int_0^{\frac{T}{\theta_i}} \frac{x^3 \cdot \exp(x)}{(\exp(x) - 1)^2} \cdot dx \quad \text{Equation 4- 3}$$

avec,

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

$$\theta_i = v_i \left( \frac{\hbar}{k_B} \right) (6 \cdot \pi^2 \cdot n)^{1/3} \quad \text{Equation 4- 4}$$

La somme dans l'équation (4-3) est relative aux contributions des trois modes de propagation acoustique dans le matériau (deux modes transverses et un mode longitudinal),  $n$  est le nombre d'atomes par unité de volume,  $v$  est la vitesse du son ( $6.98 \times 10^5$  cm/s dans l'AlN). A 300 K nous avons trouvé  $k_a = 1,3 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Les analyses TEM nous ont permis d'obtenir  $\ell_a = 5, 2$  et  $0,5 \text{ nm}$  pour les films I, II, III, respectivement. La résistance thermique de la couche amorphe,  $G^{-1}_a$  a été trouvée égale à  $4 \times 10^{-9}, 1,5 \times 10^{-9},$  et  $0,5 \times 10^{-9} \text{ K.m}^2.\text{W}^{-1}$ , respectivement pour les films I, II, et III. Il apparaît que  $G^{-1}_a$  est très inférieure à  $G^{-1}$ , quelque soient les conditions de dépôt. Ceci indique que la résistance d'interface est dominée par les propriétés de la zone de transition. Par différence nous obtenons  $G^{-1}_t = 32 \times 10^{-9}, 7,5 \times 10^{-9},$  et  $3 \times 10^{-9} \text{ K. m}^2.\text{W}^{-1}$ , respectivement, pour les films I, II, et III. Les propriétés thermiques caractéristiques des films I, II et III ( $k, G^{-1}_a, G^{-1}_t$  et  $G^{-1}$ ), sont résumées sur le Tableau 4- 2.

**Tableau 4- 2. Conductivité thermique de volume  $k_i$ , résistance thermique d'interface  $G^{-1}$ , de la couche amorphe  $G^{-1}_a$  et de la couche de transition  $G^{-1}_t$  estimées pour les films AlN I, II et III.**

Groupes	$k_i$ ( $\text{W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ )	$G^{-1} \times 10^9$ ( $\text{m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$ )	$G^{-1}_a \times 10^9$ ( $\text{m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$ )	$G^{-1}_t \times 10^9$ ( $\text{m}^2.\text{K}.\text{W}^{-1}$ )
<b>I</b>	120±10	36±5	3.8	32±5
<b>II</b>	170±15	9±1	1.5	7±1
<b>III</b>	200±20	3.5±1.0	0.4	3.1±1.0

Nous avons représenté sur la Figure 4- 3a les résistances  $G^{-1}, G^{-1}_a$  et  $G^{-1}_t$  en fonction de l'épaisseur de la couche amorphe. Les valeurs de  $G^{-1}$  sont les carrés pleins, celles de  $G^{-1}_t$  les cercles pleins, et  $G^{-1}_a$  les triangles pleins. Cette figure montre qu'il existe, pour les différentes conditions de dépôt, une corrélation forte entre l'épaisseur de la couche amorphe et les résistances. Il apparaît que  $G^{-1}_t$  joue un rôle dominant sur la résistance d'interface et que sa grandeur est dépendante de l'épaisseur de la couche amorphe. On observe donc une

relation entre  $G^{-1}_a$  et  $G^{-1}_t$ . La Figure 4- 3b donne la conductivité thermique intrinsèque  $k_i$  en fonction de la taille des grains. Elle indique une dépendance de  $k_i$  avec la taille du grain.

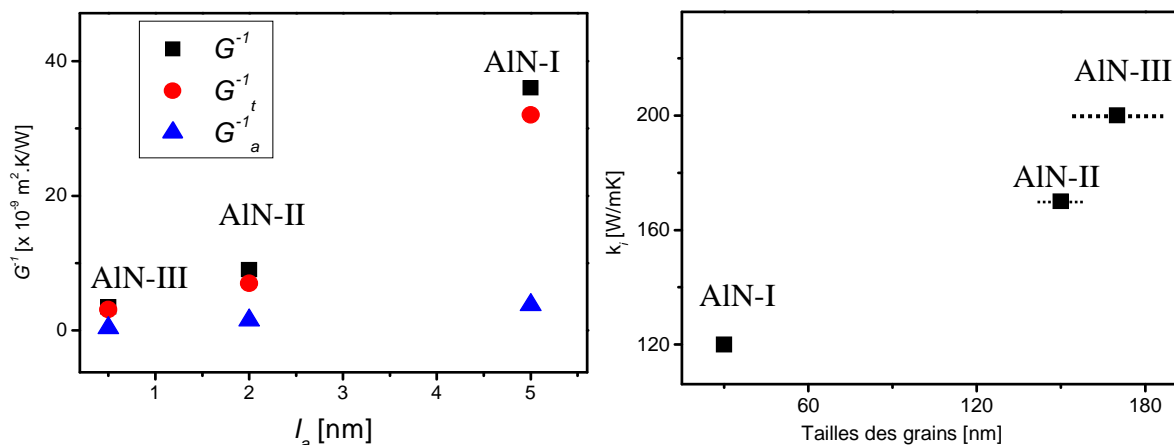


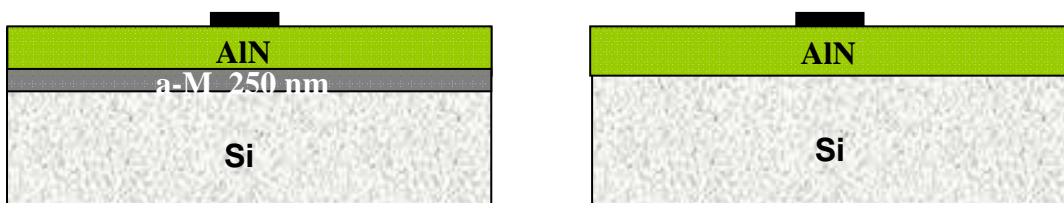
Figure 4- 3. (a) Résistances thermiques d'interface  $G^{-1}$  (résistance totale),  $G^{-1}_a$  (résistance couche amorphe),  $G^{-1}_t$  (résistance couche de transition) en fonction de l'épaisseur de la couche amorphe des films AlN I, II, III. (b) Conductivité thermique de volume (conductivité intrinsèque) en fonction de la taille des grains pour les films AlN I, II, et III

#### 4.2.2. Effet de la nature du substrat

On a étudié l'effet de la nature du substrat sur la qualité cristalline et la conductivité thermique de films d'AlN déposés par pulvérisation magnétron réactive. Cette étude visait à mesurer l'impact de la qualité cristalline du substrat sur la cristallinité des films déposés. En effet, notre objectif est d'utiliser l'AlN comme couche de passivation secondaire de transistors HEMT car la conductivité thermique élevée de l'AlN doit permettre de réduire la température de fonctionnement des transistors. Néanmoins, dans cette application, l'AlN est déposé sur une structure hétérogène amorphe assurant la passivation primaire des zones actives du composant. Elle est constituée de 150 nm de SiN et 100 nm de SiO<sub>2</sub> déposés par PECVD, nous désignerons cet isolant amorphe par a-M.

## Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

Afin d'effectuer nos tests, nous avons déposé l'isolant a-M par PECVD sur des substrats de silicium (100). Les films d'AlN ont été ensuite déposés sur ces substrats a-M/Si en utilisant les mêmes conditions que celles des films de type III considérés dans le paragraphe précédent : une configuration déséquilibrée de la cathode magnétron à une distance entre cible et échantillon de 30 mm, une pression résiduelle de  $2,67 \times 10^{-5}$  Pa ( $2 \times 10^{-7}$  Torr) et une fraction volumique d'azote de 35 % à une pression de la décharge de 0,4 Pa (3 mTorr). La conductivité thermique des films AlN a été mesurée à température ambiante avec des capteurs en aluminium de 50 nm d'épaisseur et un ruban de  $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$ . La conductivité des films est identifiée avec un modèle de diffusion thermique 2D en considérant la structure a-M comme une couche homogène avec des propriétés thermiques équivalentes à celles du bicouche 100 nm SiN / 150 nm SiO<sub>2</sub>. Nous avons pris le soin de vérifier numériquement que notre hypothèse était valable. Les structures AlN/Si et AlN/a-M/Si considérées dans les modèles thermiques sont représentées sur la Figure 4- 4. La couche a-M a été préalablement caractérisée en considérant une capacité calorifique équivalent de  $1,9 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ . La conductivité thermique mesurée pour a-M est de  $0,7 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . La Figure 4-5 montre deux signaux de température pour deux films d'AlN de 900 nm, l'un déposé sur Si et l'autre sur a-M. Le film déposé sur Si possède une conductivité thermique de  $120 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Elle est supérieure à celle du film déposé sur a-M qui est deux fois plus petite ( $60 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ). Ce résultat est en bon accord avec les signaux DRX obtenus sur ces deux films qui indiquent que dans les mêmes conditions, le film déposé sur Si est de meilleure qualité cristalline que celui déposé sur a-M. Les valeurs de Rocking-Curve sont en effet de  $2,6^\circ$  sur Si et de  $4,7^\circ$  sur a-M.



*Figure 4- 4. Structures utilisées pour étudier l'effet du substrat sur les propriétés thermiques de l'AlN*

## Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

La Figure 4- 6a donne la conductivité thermique effective  $k$  des films AlN déposés sur Si et a-M en fonction de l'épaisseur  $\ell$ . Les valeurs mesurées de  $k$  pour AlN / Si et AlN / a-M sont respectivement tracées sous la forme de triangles et carrés pleins. Les valeurs de  $k$  sont également données dans le Tableau 4- 3. Elles se situent entre  $40 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $120 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour AlN / Si avec  $\ell$  compris entre 300-900 nm et entre  $40 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $130 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour AlN / a-M avec  $\ell$  compris entre 500-3400 nm. Nous constatons que l'AlN sur Si possède une conductivité thermique apparente plus grande que celle sur a-M. Dans l'ensemble nous observons une bonne corrélation entre  $k$  et la qualité cristalline des films comme le montre la Figure 4- 6b qui donne les valeurs du Rocking-Curve déterminées par DRX sur le pic d'orientation « 002 » pour les différentes épaisseurs et les deux substrats. L'analyse structurale au microscope électronique à balayage met en évidence une structure colonnaire très dense pour ces deux types de films comme le montrent les deux images MEB de la Figure 4- 7.

Pour AlN / Si, nous avons trouvé la conductivité intrinsèque  $k_i = 200 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et la résistance thermique d'interface  $G^{-1} = 3,5 \times 10^{-9} \text{ m}^2.\text{K.W}^{-1}$ . Dans le cas présent, nous trouvons pour AlN/a-M,  $k_i = 190 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $G^{-1} = 9,8 \times 10^{-9} \text{ m}^2.\text{K.W}^{-1}$ . Ceci indique que la qualité cristalline du film est peu affectée dans le volume, en dehors de l'interface avec le substrat. En effet, les conductivités intrinsèques des films sur Si et a-M sont peu différentes. Ceci est en bon accord avec les analyses par microscopie électronique à transmission qui indiquent que la qualité de la structure cristalline des deux types de films AlN est comparable (Figure 4- 7c). En revanche, la résistance thermique d'interface est très affectée par la nature du substrat. Elle est plus grande sur a-M que sur Si en raison de l'organisation plus désordonnée de l'interface confirmée par les clichés de diffraction des électrons. La Figure 4- 7b, montre les clichés de diffraction des électrons réalisés à l'interface AlN/Si d'une part et AlN/a-M d'autre part. Le cliché correspondant à AlN/a-M fait apparaître de nombreux cercles de diffraction indiquant de multiples orientations préférentielles (100/002/101/...).

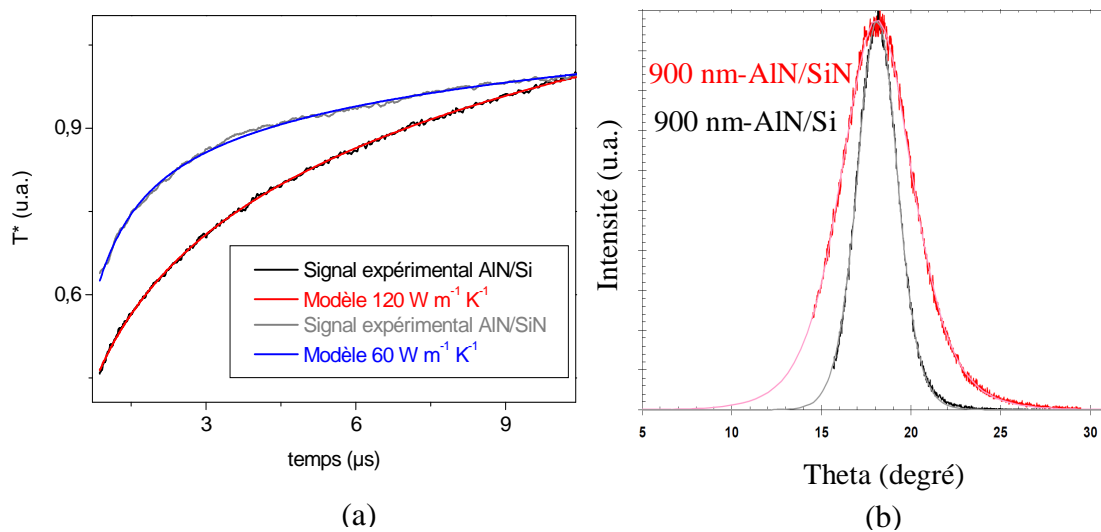


Figure 4- 5. (a) Signal de température en fonction du temps et (b) l'intensité du pic (002) en fonction de l'angle Theta, pour 900 nm de l'AlN déposé avec les conditions du groupe III sur Si et SiN/Si.

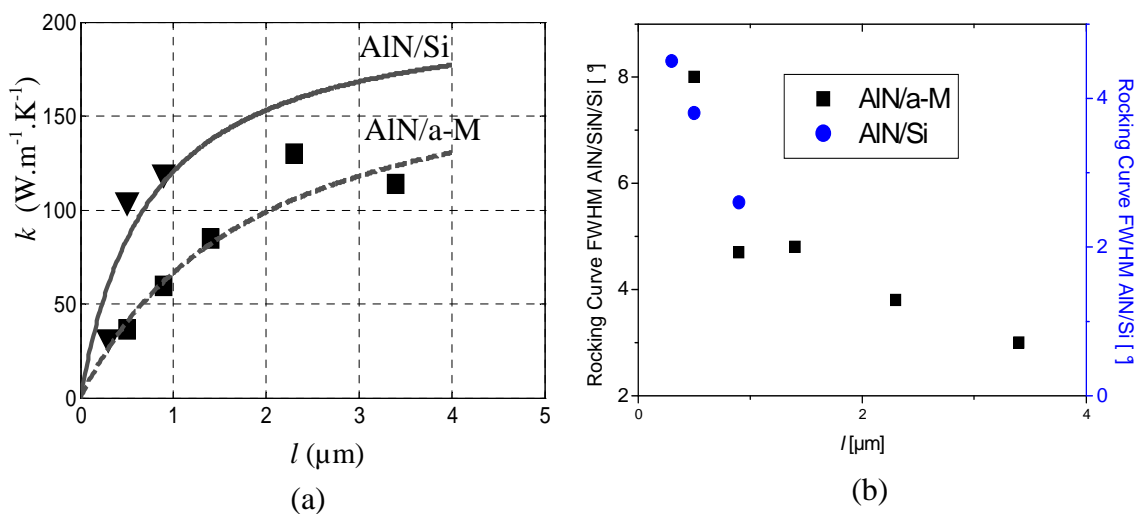


Figure 4- 6. (a) Conductivité thermique effective et (b) largeur à mi-hauteur du rocking-curve de films AlN déposés avec les conditions III sur silicium (100) et sur le matériau amorphe a-M (SiN-SiO<sub>2</sub>) en fonction de l'épaisseur



Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

**Tableau 4- 3. Valeurs de conductivité thermique effective et de Rocking-Curve pour différentes épaisseurs d'AlN déposé avec les conditions III sur Si et SiN/Si.**

Film/Substrats	Epaisseur (nm)	FWHM-RC ( °)*	k (W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> )
AlN /Si	300	4.5	32
	500	3.8	105
	900	2.6	120
AlN / a-M	500	8.0	36.6
	900	4.7	60
	1400	4.8	85
	2300	3.8	130
	3400	3.0	114

- \* Le Rocking Curve (FWHM-RC) a été déterminé par diffraction des rayons X, en mesurant la largeur à mi-hauteur du pic « 002 » en configuration  $\theta$ - $\theta$ .

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

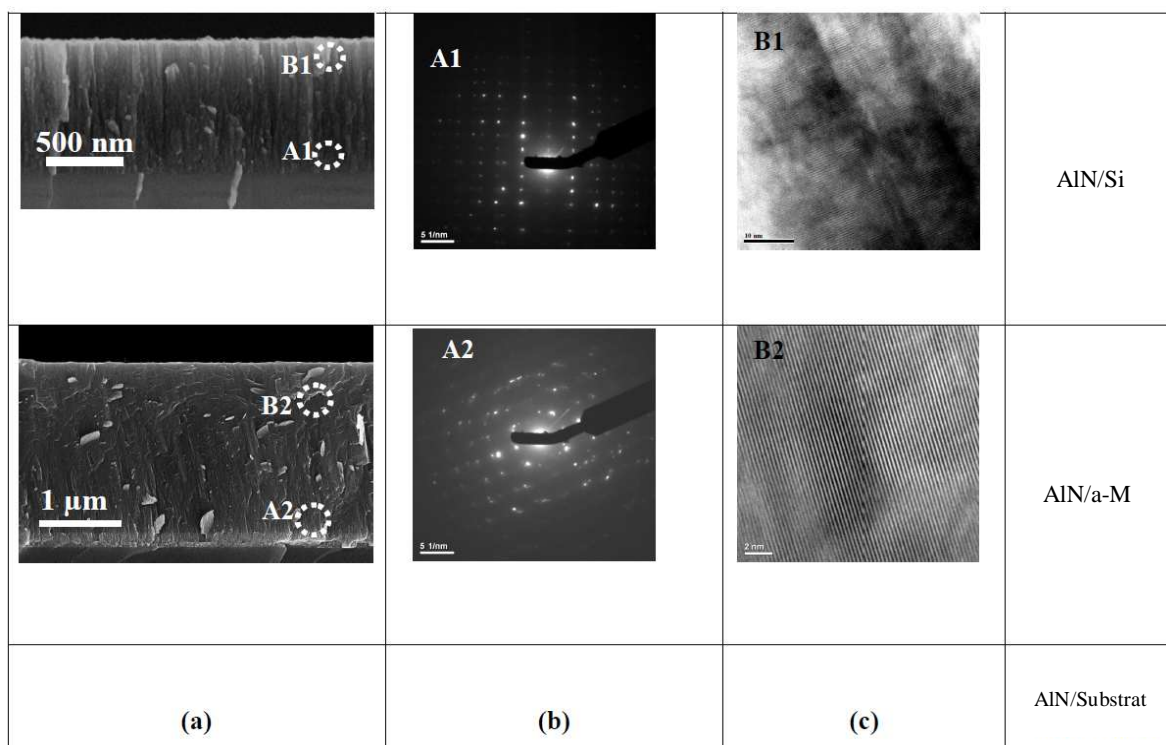


Figure 4- 7. (a) Images MEB, (b) clichés de diffraction d'électrons et (c) images TEM, pour la région massive pour les deux types de substrats

Par ailleurs, nous avons également mené une étude dans le cadre de la thèse de K. Ait-Aissa qui visait à mettre en évidence une corrélation entre la qualité cristalline et la conductivité thermique  $k$  de deux films AlN déposés dans les mêmes conditions sur Si d'une part et Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> d'autre part. L'épaisseur du film d'AlN déposé sur Si est de 840 nm. Celle du film d'AlN déposé sur Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> est de 1500 nm (Figure 4- 8). Les mesures de conductivité thermique ont été faites avec la technique consistant à analyser le signal de température d'un film d'aluminium consécutif à l'absorption d'une impulsion de LASER-YAG de 10 ns (voir chapitre précédent). Nous avons trouvé des valeurs de  $k$  proches pour les deux types de films, égales à  $60 \pm 5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $65 \pm 5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , respectivement pour AlN/Si et AlN/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>. Ces valeurs sont en bon accord avec l'analyse structurale qui indique une qualité cristalline comparable pour ces deux films. Des mesures DRX en configuration  $\theta$ - $\theta$  pour les deux types de films, sont reportées dans la Figure 4- 9. Il apparaît une valeur identique de Rocking-Curve, de  $3,3^\circ$  qui est en bon accord avec les conductivités thermiques identifiées. Cette étude met en évidence la dépendance de  $k$  avec la microstructure, ce qui conforte le fait que  $k$  est un excellent indicateur de la qualité cristalline d'un dépôt (voir Figure 4- 9).

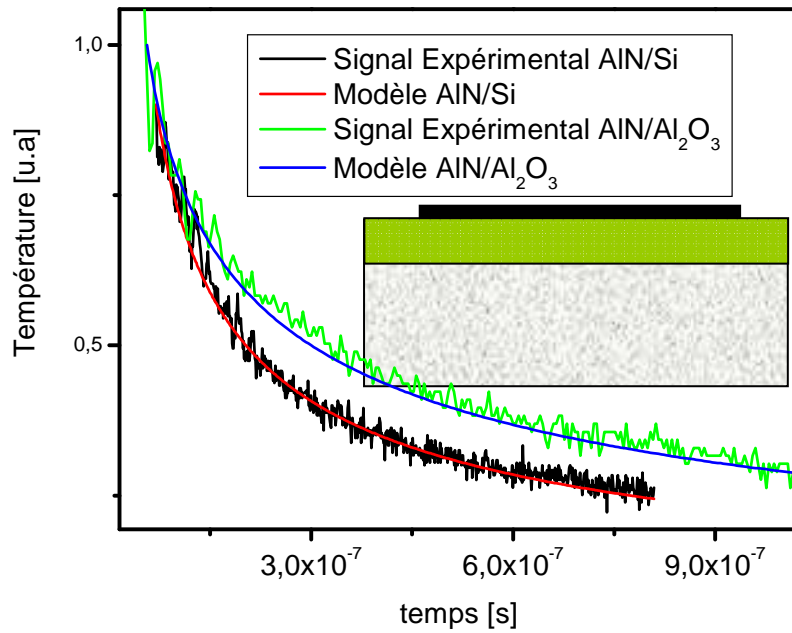


Figure 4- 8. Mesures thermiques sur AlN pour un substrat de Si et  $Al_2O_3$  avec la technique optique.

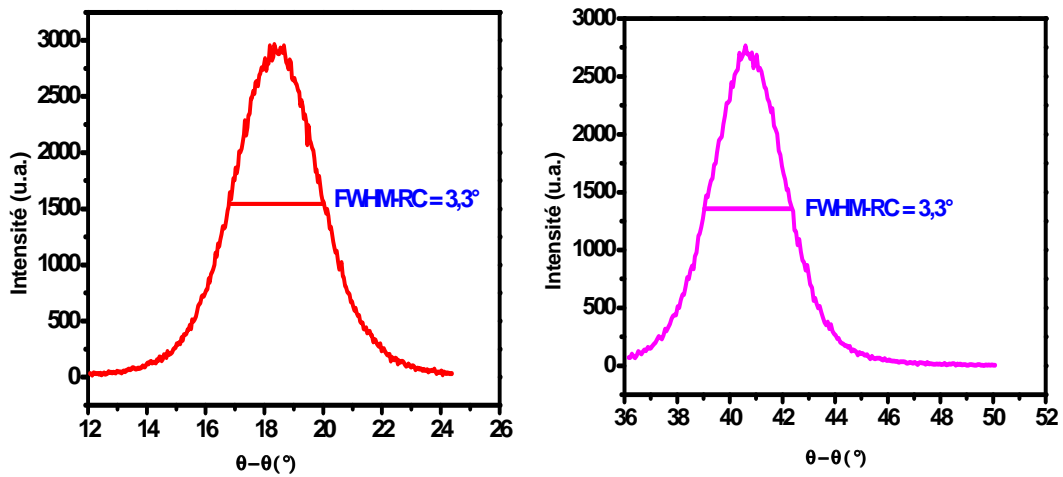


Figure 4- 9. Intensité du signal DRX  $I(\Theta-\Theta)$  du film AlN déposé sur Silicium (figure de gauche) et  $Al_2O_3$  (figure de droite)

### 4.2.3. Analyse comparative des résultats

Nous avons comparé nos résultats avec le modèle de Slack [17-19] donnant la conductivité thermique d'un matériau polycristallin en fonction du taux d'oxygène et de la taille des grains. D'après le modèle de Slack, la conductivité de volume  $k_i$  est donnée par :

$$\frac{1}{k_i} = \frac{1}{k_m} + \frac{1}{k_l} + \frac{1}{k_o} \quad \text{Equation 4-5}$$

$k_m$  est la conductivité thermique du monocristal ( $k_m = 320 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  à 300K),  $k_l$  est la conductivité associée aux joints de grains,  $k_o$  est la conductivité associée à la présence d'oxygène.  $k_l$  est donné par l'expression :

$$k_l = 1/3.C_p\rho.v.W \quad \text{Equation 4-6}$$

Le produit  $C_p\rho$  est la capacité calorifique,  $v$  la vitesse du son, et  $W$  la taille moyenne des grains. Pour l'AlN à 300K,  $C_p\rho = 2,7 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ ,  $v = 6,98 \times 10^3 \text{ m.s}^{-1}$ .  $k_o$ , est donnée par :

$$\frac{1}{k_o} = \frac{(6.\pi^2)^{2/3}.h.\delta}{12.k_B^2.\theta_D} .x.(1-x) \left[ (\Delta M / M)^2 + 39.(\Delta\delta / \delta)^2 \right] \quad \text{Equation 4-7}$$

$k_B = 1,38 \times 10^{-23} \text{ J.K}^{-1}$  (Constante de Boltzmann),  $\theta_D = 950 \text{ K}$  (Température de Debye) [10],  $h = 6,6 \times 10^{-34} \text{ J.s}$  (Constante de Planck),  $\delta = 2,186 \text{ \AA}$  (Racine cubique du volume atomique moyen), et  $x$  est le taux de concentrations atomiques en azote et en oxygène.  $\Delta M / M$  correspond à la différence de masse entre l'impureté et l'atome substitué divisée par la masse moyenne. Dans le cas d'une molécule  $Al_{0,67}O$  dans l'AlN,  $(\Delta M / M)^2 = 0,289$  : l'écart à la stœchiométrie provoque une très faible différence de masse dans le réseau de l'azote mais une forte différence dans le réseau de l'aluminium.  $\Delta\delta / \delta$  représente le désaccord d'énergie de liaison estimé à  $2 \times 10^{-2}$  pour l'AlN [20]. Ainsi, d'après la référence [21], pour  $x \geq 0,75\%$  l'équation 4.4 se réduit à :

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

$$\frac{1}{k_o} = 0,297.x \quad \text{Equation 4- 8}$$

Harris et al [22] ont montré qu'à partir d'un taux d'oxygène  $x = 0,75\%$ , ce dernier se substitue à l'azote et, pour trois atomes d'oxygène une lacune d'aluminium est créée selon la réaction :



Ces auteurs ont estimé  $(\Delta\delta/\delta)^2 = 0.37$  pour  $x < 0,75\%$  en s'appuyant sur les travaux de Slack [20]. Cette nouvelle valeur rend le terme  $(\Delta M / M)^2 = 10^{-4}$  très faible. Par conséquent, pour  $x < 0,75\%$  l'équation 4-7 s'écrit :

$$\frac{1}{k_o} = 0.44.x \quad \text{Equation 4- 10}$$

Les figures 4-10a et 4-10b, montrent les variations de  $k_i$  pour l'AlN à 300 K avec la taille des grains (W) et la concentration atomique en oxygène en %.  $k_i$  est d'autant plus important que le taux d'oxygène dans le film est faible et la taille des grains est grande. La variation de  $k_i$  est faible lorsque la contamination en oxygène est inférieure à 0,75 %. Elle est importante au delà. Nous remarquons que  $k_i$  varie peu pour des tailles de grains supérieures à 100 nm mais pour des valeurs inférieures, elle décroît rapidement. La Figure 4-10c représente  $k_i$  en fonction de W pour les trois concentrations en oxygène mesurées sur les films AlN I, II, et III (2% pour AlN I, 0,2 % pour AlN II, 0,1 % pour AlN III). Les valeurs calculées pour  $k_i$  sont indiquées sur la Figure 4- 10c ( $70 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour AlN I,  $200 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour AlN II, et  $240 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour AlN III). Ces valeurs sont plus faibles que les valeurs mesurées ( $120 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour AlN I,  $170 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour AlN II et  $200 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour AlN III). On peut expliquer cet écart par une sous-estimation de la taille des grains au cœur du film car l'analyse par DRX donne une valeur moyenne sur l'ensemble du film incluant l'interface qui est de mauvaise qualité cristalline. Il est possible que les valeurs de concentration moyenne en oxygène ne correspondent pas aux valeurs dans le volume. Lors d'études antérieures [15], nous avons montré que le taux d'oxygène n'était pas uniforme dans le film. Il est plus important à l'interface à cause de l'apport en oxygène de l'oxyde natif que dans le volume du film. La Figure 4- 11 montre la variation de la

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

conductivité thermique avec la température pour le monocristal d'AlN, l'AlN amorphe, et l'AlN polycristallin avec des tailles de grain de 170 nm et 1  $\mu\text{m}$ . Pour l'AlN polycristallin avec  $W = 170$  nm, on observe que la conductivité thermique est maximale autour de 200 K.

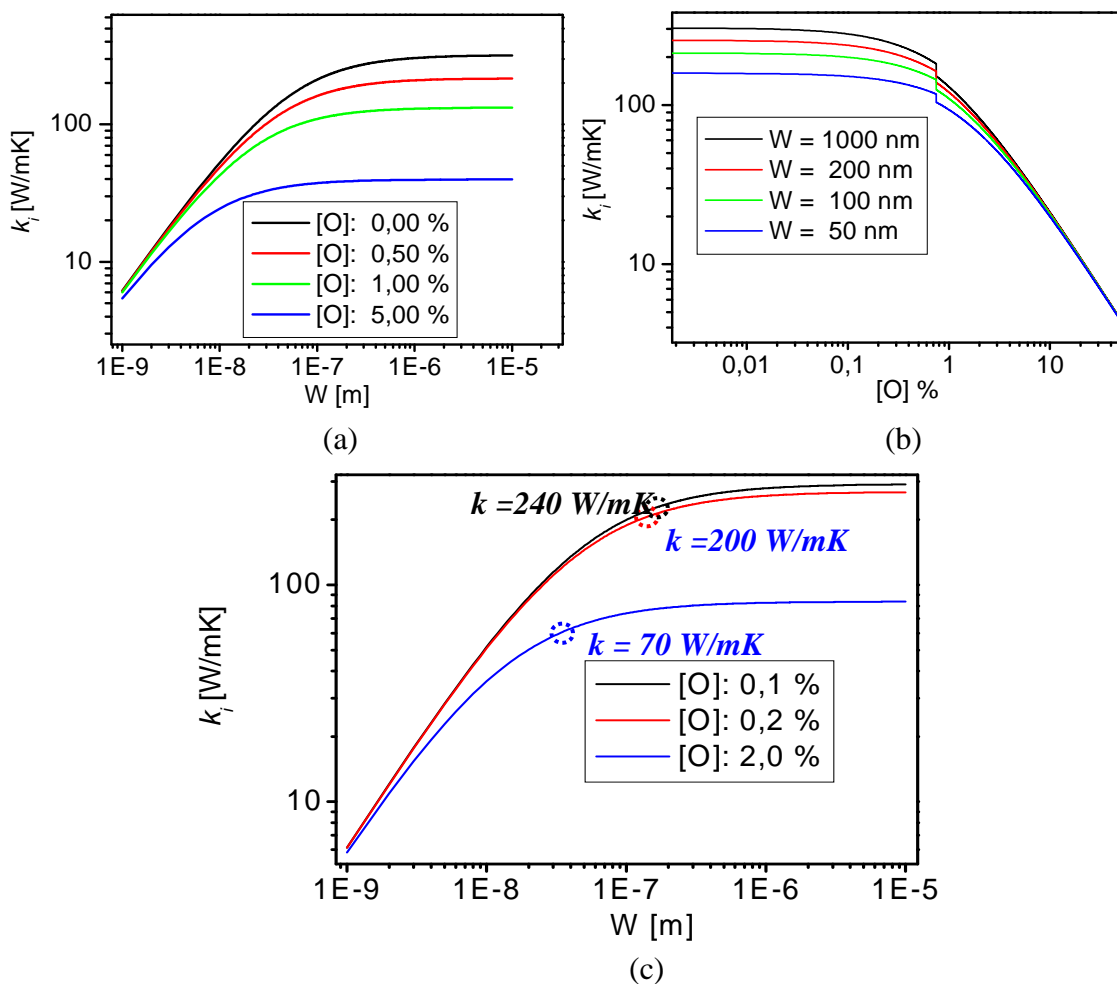


Figure 4-10. Variation de la conductivité thermique de la partie massive d'un film d'AlN, (a) en fonction de la taille des grains pour différents taux d'oxygène, (b) en fonction du taux d'oxygène pour différentes valeurs de taille des grains, et (c) en fonction de la taille des grains pour différents taux d'oxygène

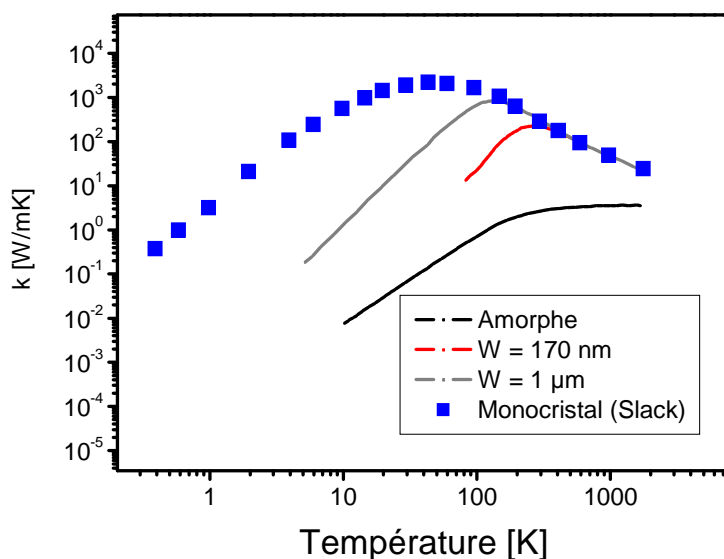


Figure 4- 11. Variation de la conductivité thermique de l'AlN en fonction de la température

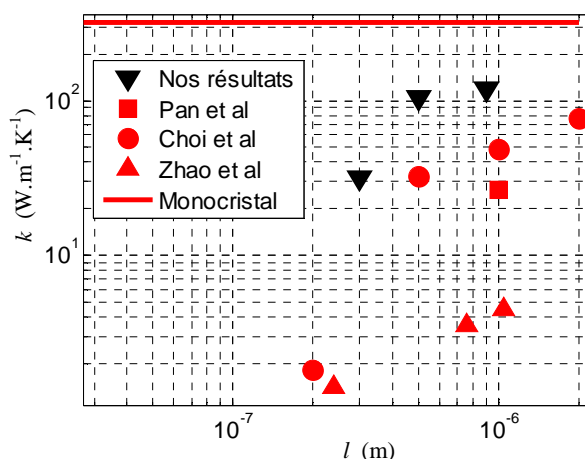
Le Tableau 4- 4 donne les conductivités thermiques effectives mesurées sur des films d'AlN déposés avec différentes techniques d'élaboration. Dans ce tableau, on donne les valeurs de concentration en oxygène et tailles de grains des différents films. Nous remarquons une forte disparité des conductivités liée à taille des grains et à la contamination en oxygène. La Figure 4-12 Conductivité thermique effective de couches minces de nitrure d'aluminium déposées sur silicium avec différentes techniques et conditions d'élaboration. Nous avons comparé nos résultats obtenus sur Si avec les meilleures conditions d'élaboration (films III, triangles noirs), avec les données de la littérature. Il apparaît que les films AlN III possèdent des conductivités thermiques plus élevées. Nous remarquons que les valeurs mesurées par Zhao (en triangles rouges) sont plus faibles que celles données par Pan (en carrés rouges) et Choi (en cercles rouges). Ces faibles valeurs sont dues aux faibles tailles de grain (25-45 nm) et à une forte contamination en oxygène (10-25%). De plus, les mesures données par Choi et al (32-76  $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  pour des épaisseurs 500-2000 nm, avec une orientation préférentielle de « 220 ») sont assez proches de nos résultats (32-120  $\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  pour des épaisseurs 300 - 900 nm, avec une orientation préférentielle de « 002 ») car la même technique d'élaboration a été utilisée. Les écarts observés sont notamment liés aux différences des conditions de dépôt et aussi à l'orientation cristalline des films. Il est aussi intéressant de constater que pour tous les auteurs, les valeurs de conductivité thermiques augmentent avec

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

l'épaisseur du film ce qui confirme bien l'amélioration que nous avons constatée concernant la qualité cristalline des films avec leur épaisseur.

**Tableau 4- 4. Conductivité thermique effective de couches minces de nitrure d'aluminium déposé sur silicium avec différentes techniques et conditions d'élaboration**

Références	Pan et al [23]			Jacquot et al [24]	Choi et al [25]				Zhao et al [26]				Yagi et al [27]									
Epaisseur [µm]	1			0,4-0,7	0,2	0,5	1	2	0,1	0,24	0,397	0,756	1,05	0,60	0,58	0,61	0,60	0,64	0,57	0,57	0,56	0,58
Tailles des grains [nm]	142	165	171	5-15	x	x	x	x	x	25	x	x	45	40	52	30	37	41	44	45	41	13
k [W/mK]	9,9	23	26,7	1	1,83	32,3	48,1	76,5	1,7	1,4	1,5	3,5	4,5	28	27	23	14	11	9,4	5,8	4,2	3,5
O%	23,88	20,47	26,57	x	x	x	x	x	x	25	x	x	10	1,1	1,3	1,5	2,0	2,2	3,0	5,7	8,7	13,6
T <sub>Elaboration</sub> [°C]	330	480	560	200-450	20				350				400									
Méthode d'élaboration	Magnétron sputtering			Laser Pulsé	Magnétron sputtering				RF réactive sputtering				RF réactive magnétron sputtering									
Méthode de mesure thermique	Méthode 3ω			Méthode 3ω	Méthode 3ω				Méthode Photothermo-reflectance pulsé				Méthode thermoreflectance									



**Figure 4-12 Conductivité thermique effective de couches minces de nitrure d'aluminium déposées sur silicium avec différentes techniques et conditions d'élaboration. Analyse comparative de nos résultats (triangles noirs) avec les données de la littérature**



### 4.3. Etude des propriétés thermiques de nanostructures de carbone

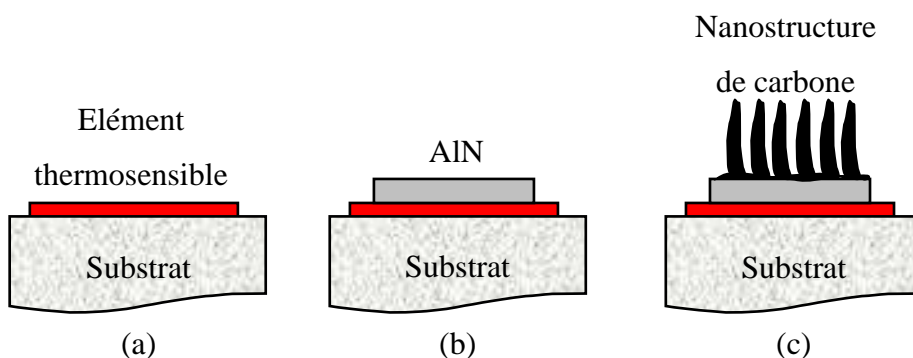
Les matériaux en carbone constitués de différentes formes allotropiques [28], occupent une place unique en termes de propriétés thermiques. La conductivité thermique ( $k$ ) des différentes formes de carbone couvre une large gamme, plus de trois à quatre ordres de grandeur. A température ambiante, la conductivité est de l'ordre de  $1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour le carbone amorphe et de plus de  $2000 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour le diamant ou le graphène. Elle est comprise entre  $3000$  et  $3500 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour les nanotubes de carbone [29,30], ce qui en fait un des meilleurs conducteurs de chaleur. Dans les solides, le transport de chaleur est assuré par les phonons acoustiques et les électrons. Dans les métaux, le transport par les électrons domine en raison de la forte concentration de porteurs libres et la conductivité thermique d'origine électronique  $k_e$  est liée à la conductivité électrique  $\sigma$  par la loi de Wiedemann-Franz,  $k_e = \sigma.T.\pi^2.k_B^2/(3.e^2)$ , où  $k_B$  est la constante de Boltzmann et  $e$  la charge de l'électron. Le transport de la chaleur dans le carbone est essentiellement assuré par les phonons, y compris pour le graphite [31] qui est un bon conducteur électronique. Ceci s'explique par la liaison covalente forte  $sp^2$  qui assure un transport d'énergie efficace dans le réseau cristallin. Cependant, dans certains carbones dopés, les électrons peuvent jouer un rôle significatif dans le processus de conduction thermique. Généralement, la conductivité thermique de tapis des nanotubes ou de feuillets de graphène est très affectée par leur porosité et leur qualité cristalline. A ce jour, aucune étude expérimentale n'a été menée sur la conductivité thermique de parois de graphène élaborés par procédés plasmas.

#### 4.3.1. Mise au point de la technique de mesure

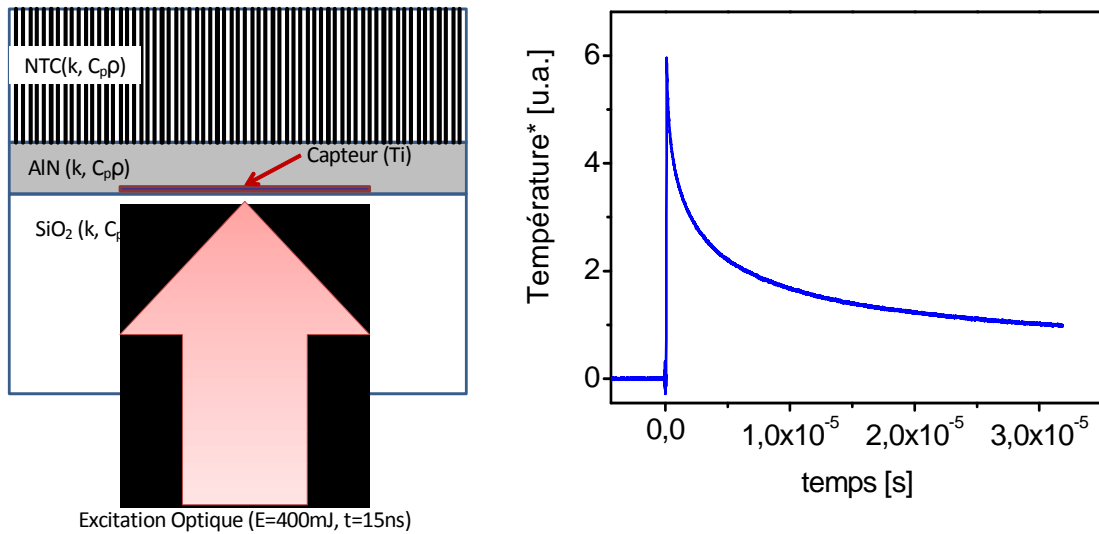
Les porosités / rugosités importantes des films de carbone ne permettent pas de déposer des capteurs de température en surface, comme nous l'avons fait précédemment pour le nitrure d'aluminium. Nous avons été amenés à développer une technique utilisant un capteur de température enterré dans une structure supportant les nanostructures de carbone. Pour des raisons de facilité de mise en œuvre, nous avons choisi d'utiliser un capteur de dimension millimétrique et comme source d'excitation une impulsion laser YAG-Nd de 15 ns et de 1060 nm de longueur d'onde.

### 4.3.2. Principe de la technique

Les différentes étapes de fabrication de la structure intégrant le capteur sont décrites sur la Figure 4- 12. L'élément thermosensible (capteur, en titane) est tout d'abord déposé sur un substrat de quartz ( $\text{SiO}_2$ ), optiquement transparent à la longueur d'onde du laser et de faible conductivité thermique, puis recouvert d'un film de 700 nm d'AlN avant le dépôt des nanostructures à caractériser. L'AlN permet d'isoler électriquement le capteur et de garantir une faible résistance thermique entre le capteur et le film de carbone. La technique de mesure présentée dans la Figure 4-13a, consiste à analyser l'évolution de la température du capteur consécutive à l'absorption de l'impulsion laser en face arrière (face en contact avec le substrat de quartz, voir la Figure 4-13a). Un exemple du signal de température, qui correspond à la réponse thermique du capteur, est illustré dans la Figure 4- 13b.



**Figure 4- 12. Les différentes étapes de fabrication de la structure intégrant le capteur de température Cr/Ti (a) dépôt des films Cr/Ti par pulvérisation cathodique sur substrat de quartz (b) dépôt du film AlN par pulvérisation magnétron (c) croissance des nanostructures de carbone**



**Figure 4- 13. (a) Principe de la technique de mesure des propriétés thermiques de nanostructures de carbone utilisant comme source d'excitation une impulsion laser YAG-Nd de 10 ns. Le capteur, Cr/Ti ou Cr/Pt, est déposé sur un substrat de quartz, transparent au laser, puis recouvert d'un film de 200 nm d'AlN avant dépôt des nanostructures de carbone. (b) Exemple de signal de température**

Cette technique permet de mesurer simultanément la capacité calorifique et la conductivité apparente du film poreux en s'appuyant sur un modèle physique purement diffusif décrivant le transport de chaleur en régime transitoire, dans la structure multicouche représentée sur la Figure 4-13. La diffusion de chaleur est consécutive au chauffage laser et s'effectue de part et d'autre du capteur en titane. Ce modèle fait appel à la théorie des milieux effectifs. Le film de carbone est supposé homogène avec une capacité calorifique apparente  $C_p.\rho$  d'une part et une conductivité thermique apparente  $k$  d'autre part équivalentes au film poreux. Pour s'affranchir de la connaissance de la densité de puissance absorbée par la structure, on identifie  $C_p.\rho$  et  $k$  sur l'évolution relative de température par rapport à une température de référence mesurée à  $t = 100 \mu\text{s}$  :

$$T^* = \frac{T(t)}{T(100\mu\text{s})} \quad \text{Equation 4- 11}$$

$T$  est ici l'écart entre la température moyenne du titane et la température initiale ambiante. Par ailleurs, en faisant un bilan énergétique et en associant les résistances

## Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

thermiques dans chaque phase homogène du film, la théorie des milieux effectifs appliquée à des milieux formés de parois, colonnes ou tubes verticalement orientées par rapport à la surface du substrat permet de montrer que :

$$Cp\rho = Cp_s\rho_s \cdot (1 - p) \quad \text{Equation 4- 12}$$

et,

$$k = k_s(1 - p) \quad \text{Equation 4- 13}$$

$Cp_s$ ,  $\rho_s$ ,  $k_s$ , sont respectivement la chaleur spécifique, la densité et la conductivité thermique des nanostructures de carbone, et  $p$  est la porosité du film, rapport entre le volume de vide et le volume total. La mesure simultanée de  $Cp\rho$  et de  $k$  permet donc de déterminer la porosité  $p$  du film à partir de la relation :

$$p = 1 - \frac{Cp\rho}{Cp_s\rho_s} \quad \text{Equation 4- 14}$$

et de déduire ensuite la valeur de  $k_s$  avec la formule (4-13) :

$$k_s = k \cdot \frac{\rho}{\rho_s} \quad \text{Equation 4- 15}$$

Il faut ajouter que pour identifier  $Cp\rho$  et  $k$ , aucune résistance d'interface n'est considérée de sorte que les conductivités thermiques des films introduites dans le modèle sont effectives, intégrant l'effet des interfaces. En particulier  $k_s$  inclus l'ensemble des résistances au transport de chaleur dans le carbone, liées à la diffusion de phonons aux interfaces, à la présence d'une couche amorphe et à l'existence de défauts dans le réseau cristallin.

### 4.3.2.1. Sensibilité de la technique

Nous avons étudié la sensibilité de la technique aux propriétés des nanostructures d'une part et vérifié d'autre part la validité de l'approximation de milieu homogène, avec la simulation numérique par éléments finis en régime transitoire (*COMSOL Multiphysics*). La

#### Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

figure 4-15 donne l'évolution de température du capteur consécutive à l'absorption d'une impulsion Laser de 20 ns pour un échantillon avec et sans parois de carbone. Nous avons considéré des parois de 5  $\mu\text{m}$  de longueur et de 20 nm de largeur, séparées d'une distance de 80 nm par de l'air à pression atmosphérique. La conductivité thermique des parois est  $100 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$ . La courbe en trait continu noir correspond à la réponse sans parois de carbone et la courbe en trait continu bleu à la réponse avec les parois de carbone. Cette dernière a été calculée en résolvant l'équation de la chaleur dans l'hypothèse d'un transfert purement diffusif en décrivant la structure réelle associant les parois de carbone et l'air inerte. La différence observée entre les deux signaux (avec et sans parois de carbone) met en évidence la sensibilité de la technique aux propriétés des nanostructures et la possibilité de les estimer avec une précision convenable. Par ailleurs, nous avons tracé en points discontinus la réponse calculée avec un film homogène avec des propriétés (relations 4-12 et 4-13) équivalentes à la structure réelle. Nous observons que les deux réponses sont superposées, ce qui valide l'utilisation de l'approche de milieu effectif en régime transitoire.

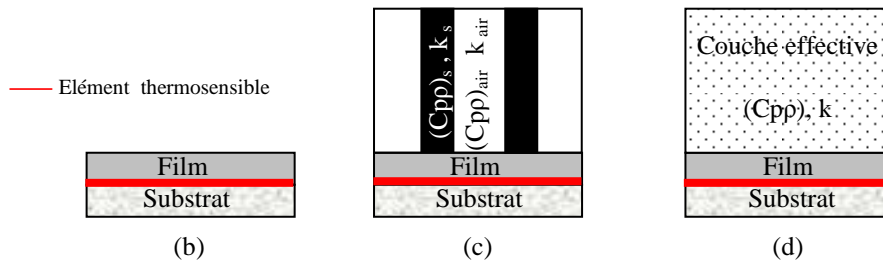
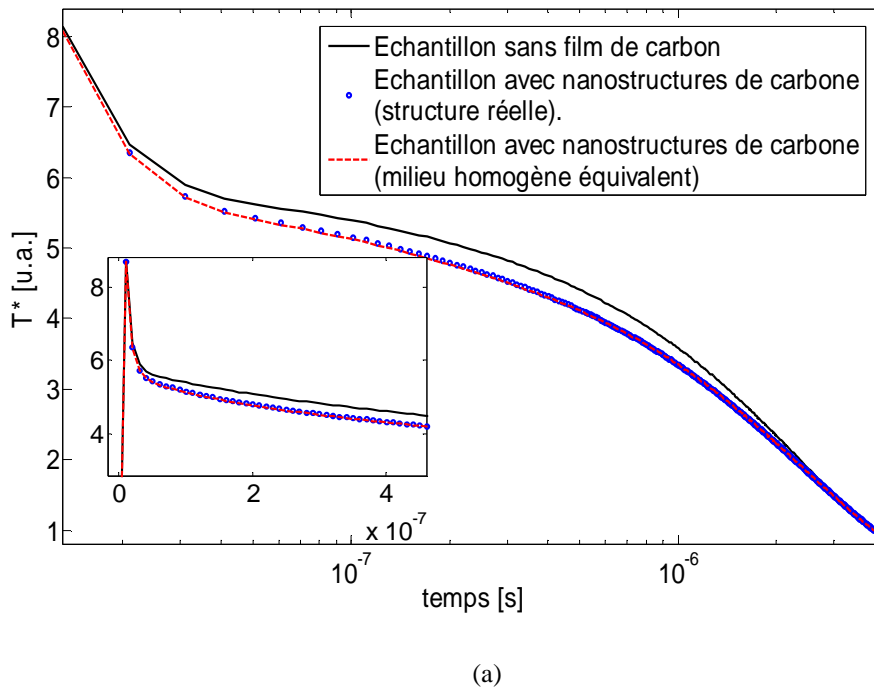


Figure 4- 14. (a) Vérification de la faisabilité du modèle effectif en simulation par éléments finis, (b) Echantillon sans film de carbone, (c) Echantillon avec nanostructures de carbone (structure réelle) et (d) Echantillon avec nanostructures de carbone (milieu homogène équivalent)

#### 4.3.2.2. Caractérisation de la structure sans nanostructures de carbone

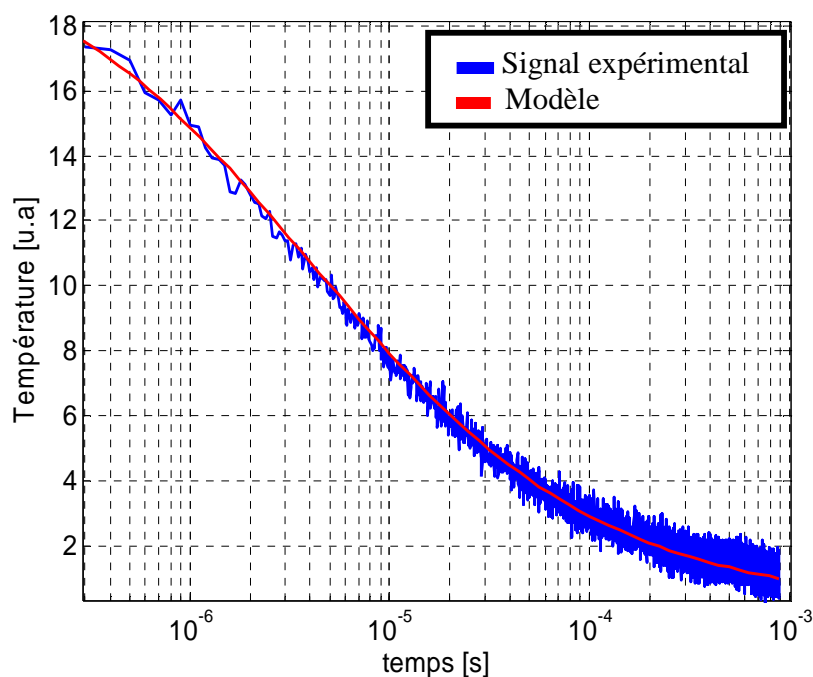
Au préalable à la mesure sur les nanostructures de carbone, nous avons mesuré les conductivités thermiques des matériaux du support  $\text{SiO}_2$  / 250 nm-Ti / 700 nm-AlN. Nous avons considéré les capacités calorifiques de  $\text{SiO}_2$ , AlN et Ti égales à celles des matériaux massifs à 300 K, respectivement  $1,6 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ ,  $2,7 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ , et  $2,35 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  [13,14]. La conductivité thermique du quartz à 300 K a été prise égale à  $1,4 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  [13]. Les conductivités thermiques identifiées sont données dans le Tableau 4- 5. Nous avons trouvé des conductivités de  $45 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $5,5 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour respectivement 700 nm d'AlN et 250 nm de titane. La Figure 4-15 montre la bonne concordance entre le signal de

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

température mesuré et le signal calculé avec le modèle en donnant les propriétés rapportées dans le tableau 4-5 aux différents matériaux.

**Tableau 4- 5. Propriétés thermiques des couches constitutives de la structure supportant les nanostructures de carbone**

	Capacité thermique ( $Cp.\rho$ ) MJ.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup>	conductivité thermique ( $k$ ) W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup>
SiO <sub>2</sub>	1,6	1,4
Ti	2,35	5,5
AlN	2,7	45



**Figure 4- 15. Signal de température de la structure SiO<sub>2</sub>/Ti/AlN sans les nanostructures de carbone**

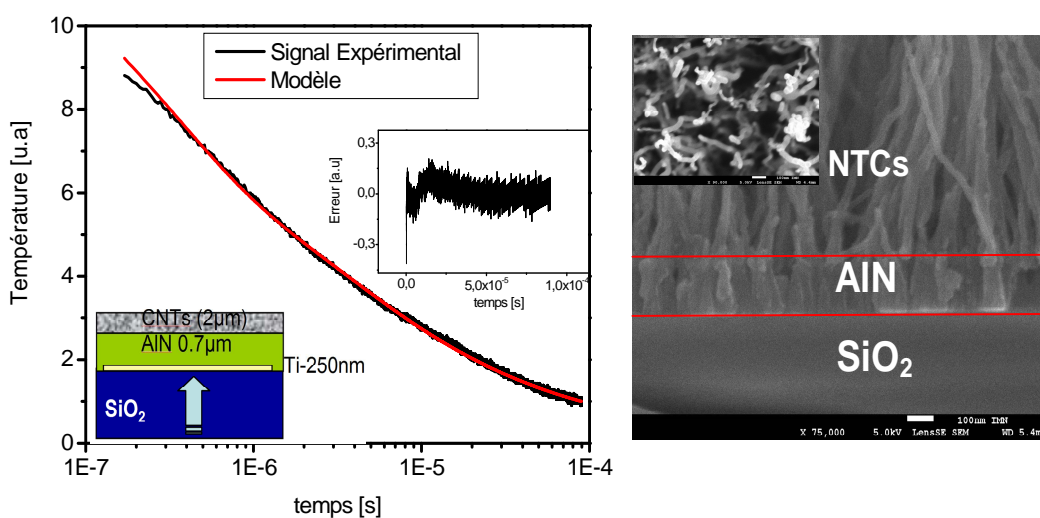
### 4.3.3. Caractérisation thermique de nanotubes de carbone

La croissance des nanotubes de carbone (CNTs) a été réalisée par PECVD (Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition) en utilisant de nanoparticules catalytiques de nickel. Le diamètre des CNTs est compris entre 40 et 70 nm correspondant à la taille des particules

## Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

catalytiques. Les CNTs ont été synthétisés à une température de 520 °C, sous une pression de 1,4 mTorr, et une puissance micro-onde de  $P = 150 \text{ W}$  [32].

Un exemple de signal de température obtenu sur un tapis de CNTs de  $2 \mu\text{m}$  est donné sur la Figure 4- 16a. Le modèle a permis d'estimer simultanément la conductivité thermique  $k = 1,1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et la capacité calorifique  $C_p.\rho = 0,28 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ . On trouve une porosité du tapis de nanotubes  $p = 0,9$  (Equation 4-12). Les analyses MEB (Figure 4- 16b) donnent une densité moyenne de 60 nanotubes de 50 nm par  $\mu\text{m}^2$ , ce qui correspond à une porosité de 0,87. Cette valeur est en bon accord avec celle donnée par les mesures thermiques. La relation 15 donne une conductivité apparente de  $11 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour les CNTs. Cette faible valeur s'explique par la forte résistance d'interface liée à la faible surface de contact carbone-substrat. Pour accroître la conductivité apparente des nanostructures, il est nécessaire de les densifier. Ceci nous a conduit à travailler sur des structures plus denses constituées de nanoparois de carbone, a priori plus performantes que les nanotubes.



**Figure 4- 16. Mesures thermiques sur CNTs pour un substrat de AlN/Ti/Si avec (a) le signal thermique et (b) image MEB de la structure**



#### 4.3.4. Caractérisation thermique de parois nanométriques de carbone

Les nanoparois de carbone (CNWs ; *Carbon NanoWalls*) sont des parois de graphène déposées par RF-PECVD (Radio Frequency Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition) et sans l'aide de catalyseur. Les dépôts de nanoparois de carbone ont été élaborés par S. Vizireanu [33] à l'Institut de Physique des Plasmas de Bucarest dans l'équipe du Professeur G. Dinescu. Les substrats des CNWs ont été réalisés conjointement par A. Achour et K. Ait-Aissa de l'Institut des Matériaux Jean Rouxel pour les besoins du projet ANR-NanoThermiC.

La croissance des CNWs est assurée par les espèces de carbone fournies par la décomposition de l'acétylène gazeux (25 sccm) injecté dans un faisceau plasma d'argon (1050 sccm) et transporté vers le substrat. L'hydrogène (1 sccm) est utilisé comme gaz actif pour contrôler la morphologie des matériaux. Les matériaux ont été déposés à 600 °C sous une pression de 100 Pa et une puissance RF de 300 W. Le montage expérimental et la procédure de synthèse sont décrites dans les références [33, 34]. La Figure 4-19 présente deux images MEB, la première est une coupe transversale des CNWs et la deuxième une vue en plan de la structure des CNWs.

##### 4.3.4.1. Parois de carbone non-encapsulées

La Figure 4- 17 et la Figure 4- 18 montre deux signaux de température obtenus sur des films de 8 µm et 14 µm d'épaisseur. Nous observons un bon accord entre le signal mesuré et le modèle ainsi une bonne sensibilité à la mesure de  $k$  et  $C_p.p$ . Nous avons obtenu  $k = 14 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $C_p.p = 0,13 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  pour le film de 8,2 µm, et  $k = 400 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $C_p.p = 0,37 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ , pour le film de 14 µm. Nous avons déduit une porosité  $p = 0,93$  pour le film de 8,2 µm et  $p = 0,8$  pour le film de 14 µm. Ainsi, nous avons pu identifier la conductivité  $k_s = 200 \pm 100 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour une épaisseur de carbone de 8,2 µm et  $k_s = 2000 \pm 1500 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  pour une épaisseur de 14 µm. Les fortes incertitudes sur la conductivité thermique du carbone sont liées à la faible sensibilité de la mesure dans la fenêtre de temps [100 ns-1µs].

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

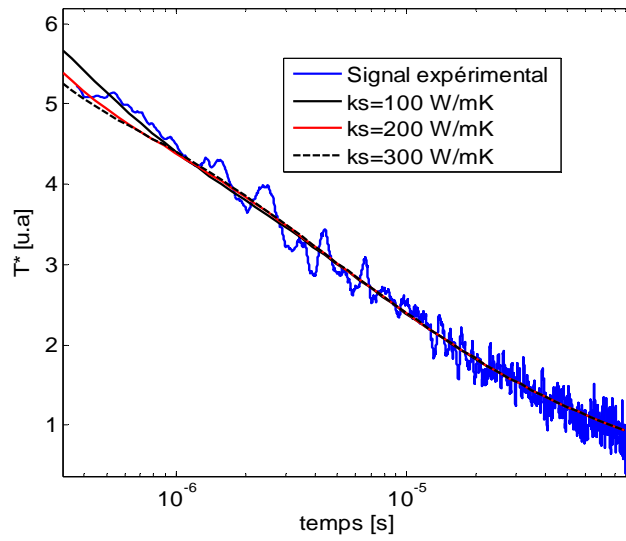


Figure 4- 17. Mesure sur un film de CNWs de 8,2  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Les valeurs mesurées:  
 $k = 47 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $C_p.\rho = 130000 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$

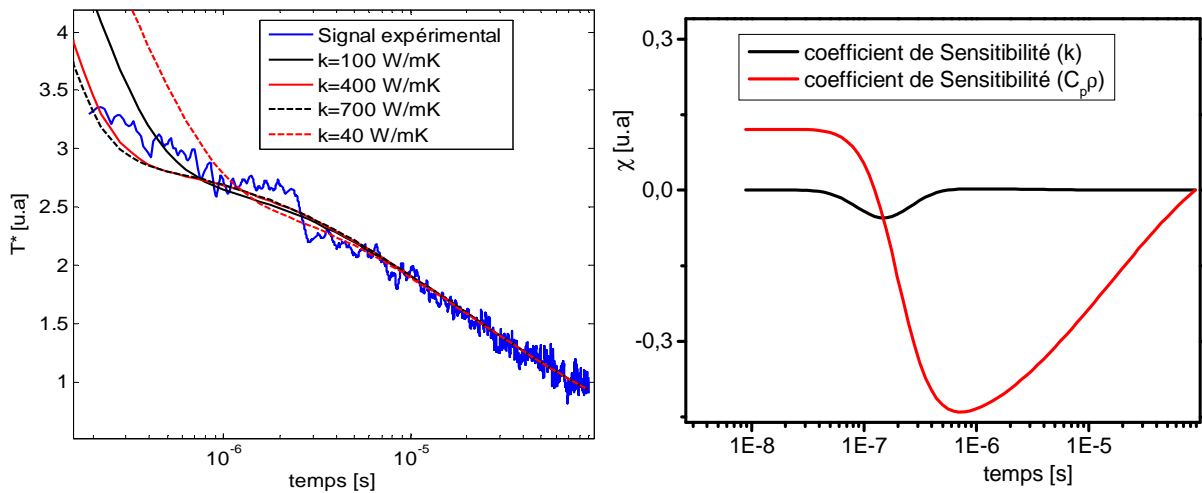


Figure 4- 18. Mesure sur un film de CNWs de 14  $\mu\text{m}$  d'épaisseur. Les valeurs mesurées:  
 $k = 47 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $C_p.\rho = 360000 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$

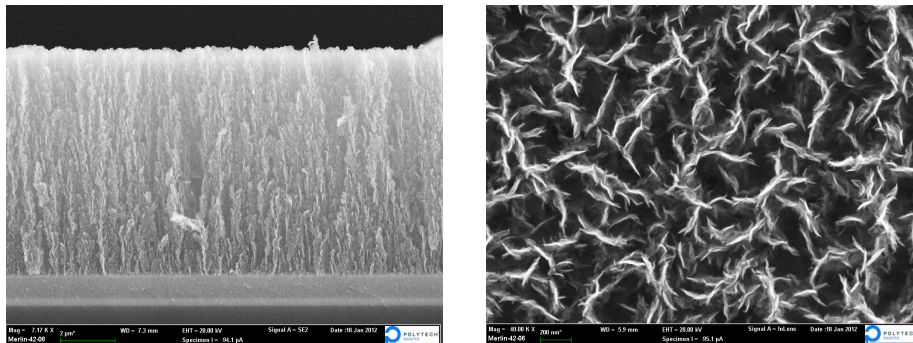


Figure 4- 19. Images MEB des nanoparois de carbone (a) vue de la tranche et (b) vue de dessus

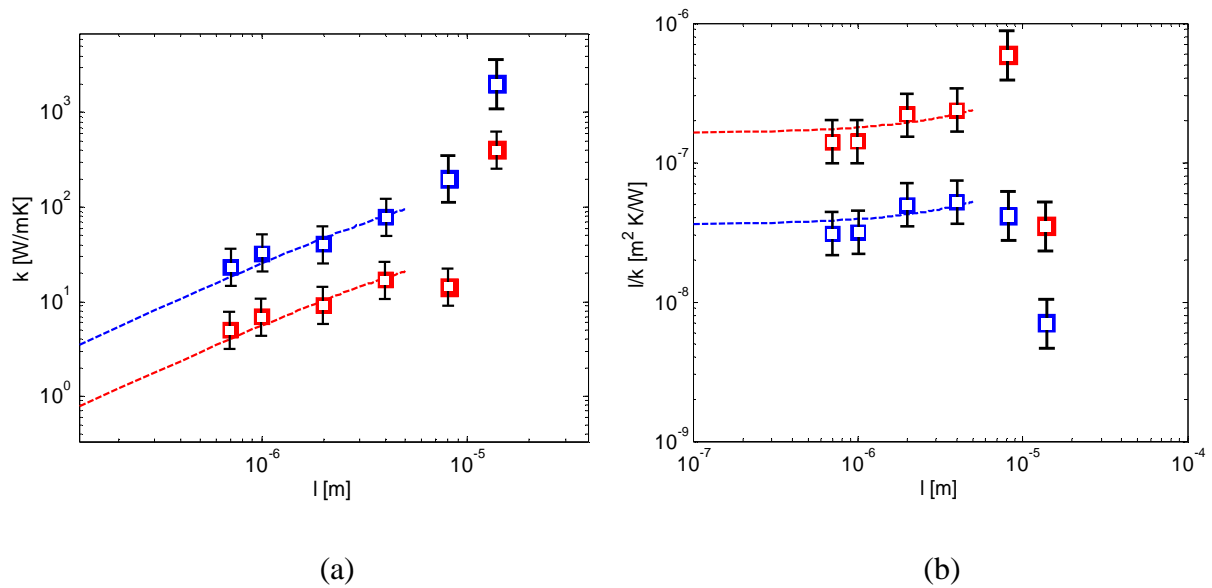


Figure 4- 20. Conductivité effective et résistance thermique des films CNWs déposés sur AlN / Ti / SiO<sub>2</sub>. En rouge, les valeurs de conductivité thermique du film poreux et en bleu, celles des parois de carbone (a) Résistance thermique et (b) conductivité thermique en fonction de l'épaisseur

La Figure 4- 20 montre la conductivité et la résistance thermique des films CNWs en fonction de l'épaisseur. Les quatre premiers points, correspondants à une épaisseur inférieure à 4  $\mu\text{m}$ , permettent d'estimer la conductivité intrinsèque du film poreux comme égale à  $60 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et une résistance d'interface de  $1,8 \times 10^{-7} \text{ m}^2.\text{K.W}^{-1}$ . La porosité de ces films déterminée par la mesure de la capacité calorifique est  $p = 0,78$ . A partir de l'équation  $l/k = l/k_i + G^{-1}$ , on en déduit une conductivité thermique intrinsèque du carbone de l'ordre de  $300 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et une résistance thermique d'interface AlN/CNWs de  $3,6 \times 10^{-8} \text{ m}^2.\text{K.W}^{-1}$ . Les valeurs obtenues sur les CNWs sont résumées dans le Tableau 4- 6.

Tableau 4- 6. Propriétés thermiques des parois de carbone pour une épaisseur inférieure à 4  $\mu\text{m}$ .

Propriétés	$k$ [W.m <sup>-1</sup> .K <sup>-1</sup> ]	$G^{-1} \times 10^7$ [m <sup>2</sup> .K. W <sup>-1</sup> ]	$C_p \cdot \rho$ [MJ.m <sup>-3</sup> .K <sup>-1</sup> ]	$p$
Films poreux	$61 \pm 6$	$1,8 \pm 0,5$	$0,40 \pm 0,05$	0,70
Parois de Carbone	$306 \pm 30$	$0,36 \pm 0,05$	1,8*	-

- \* la capacité calorifique théorique a été calculée en utilisant la référence [35].

## Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

La porosité influe sur les propriétés thermiques des CNWs. La résistance d'interface ( $G^{-1}$ ) est liée à la fois à la qualité cristalline de l'interface CNWs /AlN, à la résistance de constriction induite par la courbure des lignes de flux de chaleur, à la diffusion des phonons aux extrémités des parois qui peut être induite par le transport balistique des phonons dans le carbone. En effet, le libre parcours moyen des phonons dans le carbone peut être grand devant la taille caractéristique des parois. Un modèle purement diffusif, tenant compte de la densité et de la largeur apparente des parois de carbone, nous a permis d'estimer la résistance de constriction entre 1 et  $5 \times 10^{-9} \text{ K} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$  (voir calcul annexe IV). Cette résistance est faible devant  $G^{-1}$  ( $3,6 \cdot 10^{-8} \text{ K} \cdot \text{m}^2 \cdot \text{W}^{-1}$ ). Ceci indique que  $G^{-1}$  est essentiellement lié à la qualité cristalline de l'interface (présence éventuelle d'une couche amorphe) et à la diffusion des phonons aux extrémités des parois (voir Tableau 4- 7).

**Tableau 4- 7. Les propriétés thermiques calculées et estimées pour les films de CNWs.**

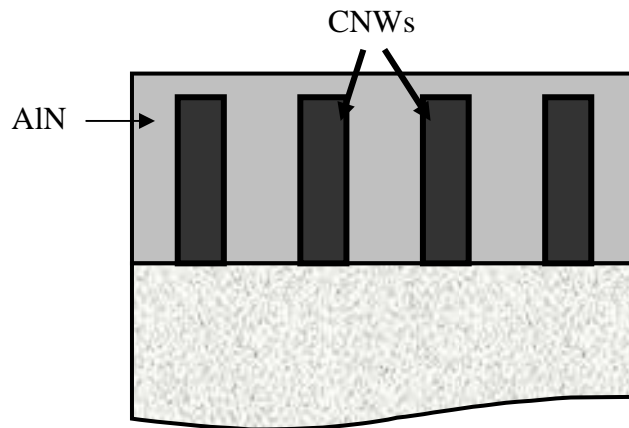
<i>Epaisseurs</i> [ $\mu\text{m}$ ]	<i>k(air+CNWs)</i> [ $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ]	<i>Cp·<math>\rho</math></i> (air+CNWs) [ $\text{MJ} \cdot \text{m}^{-3} \cdot \text{K}^{-1}$ ]	<i>p</i>	<i>G<sup>-1</sup><sub>Cons</sub> x10<sup>7</sup></i> [ $\text{m}^{-2} \cdot \text{K} \cdot \text{W}^{-1}$ ]	<i>K<sub>s</sub>(CNWs)</i> [ $\text{W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ ]
<i>0,7-4</i>	<i>5-18</i>	<i>0,4</i>	<i>0,22</i>	<i>0,04</i>	<i>22-80 ± 20 %</i>
<i>8,2</i>	<i>14</i>	<i>0,13</i>	<i>0,07</i>	<i>0,05</i>	<i>200 ± 100</i>
<i>14</i>	<i>400</i>	<i>0,37</i>	<i>0,20</i>	<i>0,04</i>	<i>2000 ± 1500</i>

### 4.3.4.2. Parois de carbone encapsulées dans du nitrure d'aluminium

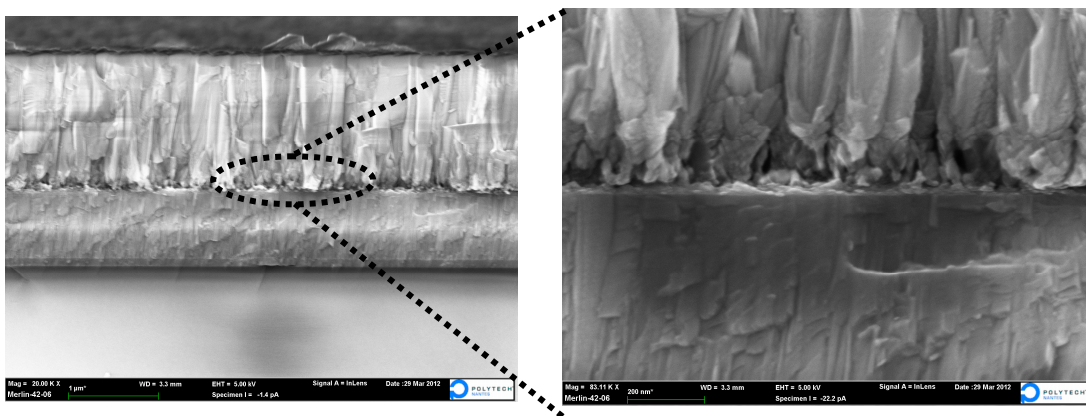
Nous venons d'identifier les nanoparois de carbone (CNWs) élaborées par plasma comme des nanostructures très conductrices ayant une conductivité thermique supérieure à  $2000 \text{ W} \cdot \text{m}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$ . Malheureusement, en pratique, ces films sont poreux, ce qui réduit considérablement la conductivité effective du matériau par la présence de vide. Ceci constitue un facteur limitant car la densification des films en carbone est difficile. Pour contourner ce problème, nous avons envisagé de synthétiser des films composites formés à partir de nanoparois de carbone et d'une encapsulation de ces parois avec du nitrure d'aluminium. Les vides sont ainsi remplacés par un matériau diélectrique bon conducteur thermique. La Figure 4- 21 montre une représentation d'un film composite formé de nano-parois de carbone, orientées perpendiculairement à la surface d'un substrat et encapsulées dans une matrice

## Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

d'AlN. La figure 4-24 montre une image en coupe réalisée par microscopie à balayage d'un film composite carbone/AlN de 1,5  $\mu\text{m}$  élaboré sur silicium. Cette figure montre le bon remplissage de l'AlN dans la structure poreuse, de l'interface jusqu'à la surface du film.



*Figure 4- 21. Représentation schématique d'un film composite formé à partir de nano-parois de carbone et d'une encapsulation avec du nitrure d'aluminium*



*Figure 4- 22. Image MEB en coupe d'un film composite carbone/AlN de 1, 5  $\mu\text{m}$  élaboré sur silicium*

Les Figures 4-23a et 4-24a montrent les signaux de température obtenus sur deux films de 1,5  $\mu\text{m}$  ayant des densités de carbone différentes. Les signaux calculés par le modèle sont en bon accord avec les signaux expérimentaux. L'étude de sensibilité montre que  $k$  et

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

Cp.ρ sont identifiables simultanément avec une précision satisfaisante (voir l'évolution des coefficients de sensibilité à ces deux paramètres sur les figures 4-25b et 4-26-b). Nous avons trouvé  $k = 20 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $C_{p\rho} = 1 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  pour le film le moins dense en carbone et  $k = 80 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$  et  $C_{p\rho} = 2,67 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  pour le plus dense. Ces résultats montrent que la conductivité thermique augmente avec le nombre de parois. Ces valeurs sont bien supérieures à celles obtenues sans encapsulation (Figure 4- 25). Ceci montre que l'AlN a un double effet, il permet d'accroître la conductivité de volume mais également de réduire la résistance d'interface (augmentation des aires réelles de contact).

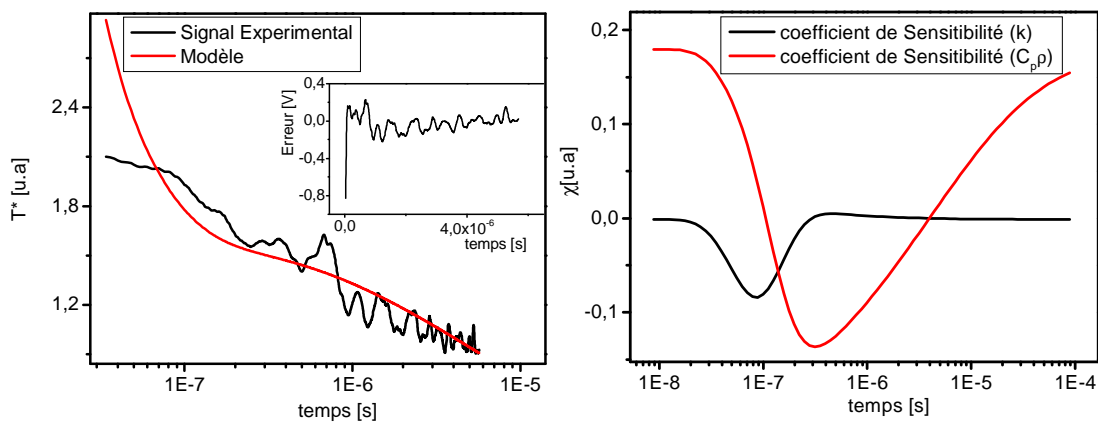


Figure 4- 23. Mesure sur CNWs peu denses encapsulées par l'AlN avec des CNWs (a) signal de mesure (b) coefficient de sensibilité. Valeurs mesurées:  $k = 20 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ , et  $C_{p\rho} = 1 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$

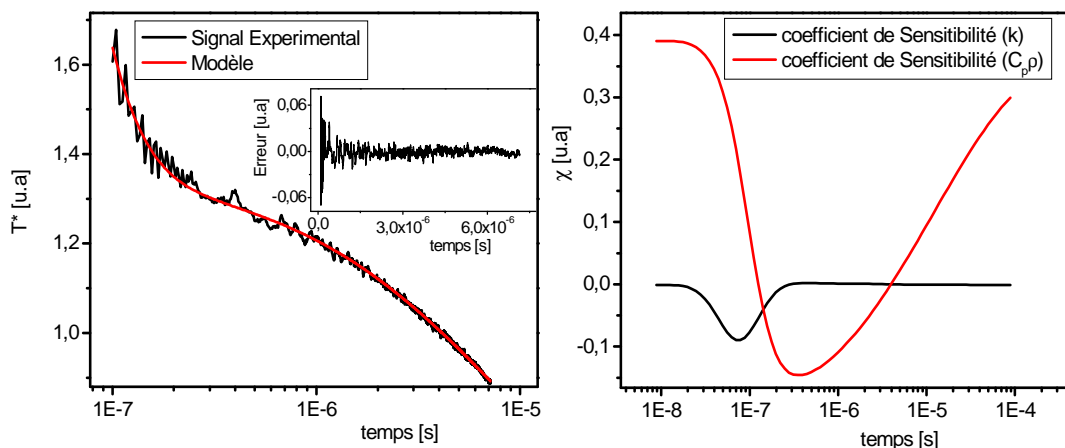


Figure 4- 24. Mesure sur CNWs plus denses encapsulées par l'AlN (a) signal de mesure (b) coefficient de sensibilité. Valeurs mesurées :  $k = 80 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ ,  $C_{p\rho} = 2,67 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

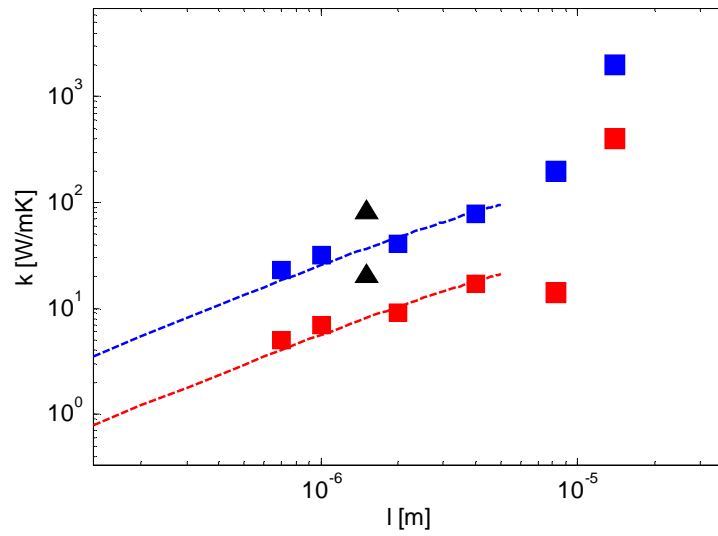


Figure 4- 25. Comparaison entre les valeurs estimées de la conductivité thermique de CNWs encapsulés par AlN et des CNWs seuls

#### 4.4. Conclusion

Dans ce chapitre nous avons présenté les mesures thermiques effectuées sur des films de nitrure d'aluminium et de nanostructures en carbone élaborés par des procédés plasma. Les propriétés thermiques ont été corrélées avec la microstructure, dans le volume des films et à l'interface des matériaux.

Nous avons mis en évidence la conductivité thermique élevée des films AlN élaborés par pulvérisation réactif magnétron en configuration déséquilibrée. Nous avons montré l'influence des conditions d'élaboration et de la nature du substrat sur la conductivité thermique et la morphologie des films. Nous avons établi que la conductivité thermique des films d'AlN dépend de la taille des grains, de la quantité d'oxygène et aussi de la qualité cristalline de l'interface avec le substrat. Nous avons aussi montré que la conductivité de volume augmente avec la taille des grains et diminue avec le taux en oxygène. En s'appuyant sur des analyses microstructurales, nous avons réussi à quantifier les résistances thermiques d'interfaces et mis en évidence le rôle majeur de la couche de transition microcristalline.

Par ailleurs, nous avons développé une nouvelle technique qui a permis de mesurer les propriétés thermiques des nano-parois de carbone élaborées par procédés plasmas. Nous avons mis en évidence la grande conductivité thermique et la qualité cristalline de ces matériaux. Nous avons trouvé une conductivité thermique supérieure à  $2000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  pour le carbone à 300 K avec une épaisseur de 20  $\mu\text{m}$ . On a mis également en évidence le rôle important de la résistance thermique d'interface. La forte réduction de résistance thermique, observée au dessus de 4  $\mu\text{m}$  d'épaisseur, suggère un effet de diffusion des phonons aux extrémités des parois, consécutif au caractère balistique du transport des phonons dans le carbone. Nous avons montré la bonne performance de l'encapsulation des nanoparois de carbone par du nitrure d'aluminium. Nous avons mis en évidence que la conductivité thermique du composite augmente avec le nombre de parois de carbone et que la matrice d'AlN permet à la fois d'accroître la conductivité en volume et de réduire très fortement la résistance d'interface par augmentation des aires de contact avec le substrat.



#### 4.5. Références

- [1]: A. Jacqot, B. Lenoir, A. Douscher, P. Verardi, F. Craciun, M. Stolzer, M. Gartner, et M. Dinescu, "Optical and thermal characterization of AlN thin films deposited by pulsed laser deposition", (2002). *Applied Surface Science* **186**, 507-512.
- [2]: G. A. Slack, R. A. Tanzilli, R. O. Pohl, et J. W. Vandersandc, "The Intrinsic Thermal Conductivity of AlN", (1987). *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **48**, 641-647.
- [3]: X. Li, E.T.L.T., "Laser induced chemical vapor deposition of AlN films", (1990). *Journal of Applied Physics* **68**, 5369-5371.
- [4]: A. Saxler, P. Kung, C. J. Sun, E. Bigan, et M. Razeghi, "High quality aluminum nitride epitaxial layers grown on sapphire substrates", (1994). *Applied Physics Letters* **64**, 339-341.
- [5]: T.i Yagi, N. Oka, T. Okabe, N. Taketoshi, T. Baba, et Y. Shigesato, "Effect of Oxygen Impurities on Thermal Diffusivity of AlN Thin Films Deposited by Reactive RF Magnetron Sputtering", (2011). *Japanese Journal of Applied Physics* **50**, 11RB01-11RB05.
- [6]: R. L. Keck, "LLE Review -Volume 49-, Quarterly Report", (1991).
- [7]: B-H. Hwang, C-S. Chen, H-Y. Lu, et T-C. Hsu, "Growth Mechanism of Reactively Sputtered Aluminum Nitride Thin Films", (2002). *Materials Science and Engineering A* **325**, 380-388.
- [8]: P.Verardi, M. Dinescu , C. Stanciu, C. Gerardi, L. Mirengi, et V. Sandu, "A parametric study of AlN thin films grown by pulsed laser deposition", (1997). *Materials Science and Engineering B* **50**, 223-227.
- [9]: P. Verardi, M. Dinescu, C. Gerardi, L. Mirengi, et V. Sandu, "AlN thin films deposition by laser ablation of Al target in nitrogen reactive atmosphere", (1997). *Applied Surface Science* **109-110**, 371-375.
- [10]: B. Abdallah, "Thèse de doctorat - Dépôt de couches minces de nitrures par pulvérisation magnétron (PVD)", *Université de Nantes* (2008).

#### Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

[11] : S. Duquenne, "Thèse de doctorat - Procédés Plasmas pour l'optimisation des matériaux intervenant dans le management thermique et la passivation de composants de puissance hyperfréquences à base de GaN et AlGaN", *Université de Nantes* (2008).

[12] : A. Soussou, "Thèse de doctorat - Synthèse de Couches Minces de Nitrures d'Aluminium et de Bore par Pulvérisation Cathodique Magnétron Classique et à Très Haute Puissance Pulsée pour la Gestion Thermique des Composants à Haute Température de Fonctionnement", *Université de Nantes* (2011).

[13] : B.D. Cullity, "Elements of X-Ray Diffraction", (1973). *Addison-Westey, Reading second ed.*, 281-285.

[14] : L. I. Berger, "Semiconductor Material, sCRC Press, Boca Raton, FL, 1997", (1997).

[15] : C. J. Glassbrenner, E.G.A.S., "Thermal Conductivity of Silicon and Germanium from 3°K to the Melting Point", (1964). *Physical Review* **134**, A1069-A1069.

[16] : Jen-Hao Song, Jow-Lay Huang, James C. Sung, Sheng-Chang Wang, Horng-Hwa Lu, Ding-Fwu Lii, "Interfacial Microstructure Evolution of (B, Al)N Films Grown on Diamond Substrates", (2011). *Thin Solid Films* **519**, 4212–4215.

[17] : G. A. Slack, "Nonmetallic crystals with high thermal conductivity", (1972). *Journal of Physics and Chemistry of Solids* **34**, 321-325.

[18] : G. A. Slack, L. J. Schowalter, D. Morelli, et Jaime A. Jr. Freitas, "Some effects of oxygen impurities on AlN and GaN", (2002). *Journal of Crystal Growth* **246**, 287-298.

[19] : G. A. Slack, "Thermal Conductivity of MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, MgAl<sub>2</sub>O<sub>4</sub>, and Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> Crystals from 3° to 300 K", (1962). *Physical Review* **126**, 427-442.

[20] : Y. Zhao, C. Zhu, S. Wang, J. Z. Tian, D. J. Yang, et C. K. Chen, "Pulsed photothermal reflectance measurement of the thermal conductivity of sputtered aluminum nitride thin films", (2004). *Journal of Applied Physics* **96**, 4563-45-67.

[21] : Y. Kurokawa, K. Utsumi, et H. Takamizawa, "Development and characterization of high thermal conductivity ceramics ", (1988). *Journal of the American Ceramic Society* **71**, 588–594.

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

[22] : J. H. Harris, R. A. Youngman, et R. G. Teller, "On the nature of the oxygen-related defect in aluminum nitride", (1990). *Journal of Materials Research* **5**, 1763-1773.

[23] : T. S. Pan, Y. Zhang, J. Huang, B. Zeng, D. H. Hong, S. L. Wang, H. Z. Zeng, M. Gao, W. Huang, et Y. Lin. Enhanced thermal conductivity of polycrystalline aluminum nitride thin films by optimizing the interface structure, (2012). *Journal of Applied Physics* **112**, 044905-1 - 044905-5.

[24] : A. Jacquot, B. Lenoir, A. Dauscher, P. Verardi, F. Craciun, M. Stolzer, M. Gartner, et M. Dinescu. Optical and thermal characterization of AlN thin films deposited by pulsed laser deposition, (2002). *Applied Surface Science* **186**, 507-512.

[25] : S. R. Choi, D. Kim, S. H. Choa, S. H. Lee, et J. K. Kim. Thermal Conductivity of AlN and SiC Thin Films, (2006). *International Journal of Thermophysics* **27**, 896-905.

[26] : Y. Zhao, C. Zhu, S. Wang, J. Z. Tian, D. J. Yang, C. K. Chen, H. Cheng, et P. Hing. Pulsed photothermal reflectance measurement of the thermal conductivity of sputtered aluminum nitride thin films, (2004). *Journal of Applied Physics* **96**: 4563-4568.

[27] : T. Yagi, N. Oka, T. Okabe, N. Taketoshi, T. Baba, et Y. Shigesato. Effect of Oxygen Impurities on Thermal Diffusivity of AlN Thin Films Deposited by Reactive RF Magnetron Sputtering, (2011). *Japanese Journal of Applied Physics* **50**, 11RB01-1 - 11RB1-5.

[28] : A. A. Balandin, "Thermal properties of graphene and nanostructured carbon materials", (2011). *Nature Materials* **10**, 569-581.

[29] : P. Kim, L. Shi, A. Majumdar, et P. L. Mc Euen, " Thermal transport measurement of individual multiwalled nanotubes", (2001). *Physical Review Letters* **87**, 215502-215504.

[30] : E. Pop, D. Mann, Q. Wang, K. Goodson, et H. Dai, "Thermal conductance of an individual single-wall carbon nanotube above room temperature", (2006). *Nano Letter* **6**, 96-100 .

[31] : P.G. Klemens, "Theory of the A-plane thermal conductivity of graphite", (2000). *Journal of Wide Bandgap Mater.* **7**, 332-339.

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

[32] : A. TAILLEUR, "Thèse de doctorat - Synthèse par procédé plasma et caractérisation de nanotubes : étude des mécanismes de croissance et applications électronique, biochimique et thermique", *Université de Nantes* (2011).

[33] : S.I. Vizireanu, B. Mitu, et G. Dinescu, "Nanostructured carbon growth by expanding RF plasma assisted CVD on Ni-coated silicon substrate, Surface", (2005). *Surface and Coatings Technology* **200**, 1132-1136.

[34] : S.I. Vizireanu, L. Nistor, M. Haupt, V. Katzenmaier, C. Oehr, G. Dinescu, "Carbon nanowalls growth by radiofrequency plasma beam enhanced chemical vapor deposition", (2008). *Plasma Processes and Polymers* **5**, 263-268.

[35] : S.P. Hepplestone, A.M. Ciavarella, C. Janke, G.P. Srivastava, "Size and temperature dependence of the specific heat capacity of carbon nanotubes", (2006). *Surface Science* **600**, 3633-3636.

Chapitre 4 : Propriétés thermiques du nitrure d'aluminium et de nanostructures de carbone élaborés par des procédés plasmas

## 5. Conclusion et perspectives

Ce travail de thèse a permis de développer des outils originaux pour la caractérisation des propriétés thermiques de couches minces. Ces outils ont permis de mettre en évidence l'effet des conditions d'élaboration de couches minces d'AlN et de nanostructures de carbone par procédés plasmas, de la microstructure de ces matériaux sur leurs propriétés thermiques. Nous avons observé une forte corrélation entre la qualité cristalline des matériaux et leur conductivité thermique. Ceci permet d'envisager l'utilisation des sondes thermiques pour mesurer la qualité cristalline. D'une manière générale, ce travail contribue à des avancées dans le domaine de la métrologie thermique. Les techniques développées permettent de caractériser de très faibles résistances thermiques ( $10^{-8}$  -  $10^{-9}$  K.m<sup>2</sup>.W<sup>-1</sup>), des résistances thermiques d'interface entre les matériaux et les propriétés thermiques de films selon différentes directions. Elles contribuent à une meilleure compréhension de l'effet de la microstructure et du procédé d'élaboration sur la conductivité thermique des couches minces.

Les sondes thermiques élaborées permettent de détecter des variations de température sur des échelles de temps extrêmement courtes ( $10^{-8}$  -  $10^{-5}$  seconde) et de mesurer les propriétés thermiques de très petits volumes de matière dont la dimension caractéristique se situe dans le domaine  $10^{-9}$  -  $10^{-4}$  m. Ces sondes sont donc bien adaptées à la mesure de la conductivité thermique des couches minces. Plusieurs modèles physiques nécessaires à l'estimation des paramètres ont été développés. Ces modèles décrivent les transferts de chaleur en régime non stationnaire dans des structures hétérogènes anisotropes. La résolution des équations par la technique des transformations intégrales a permis d'obtenir des temps de calcul raisonnables. Nous avons montré que la miniaturisation des sondes permettait d'améliorer la précision et la résolution spatiale de la mesure. Elle permet également de mesurer la capacité calorifique et la conductivité thermique de couches minces dans les directions perpendiculaire et parallèle au plan du substrat. L'intégration de ces sondes dans des dispositifs est envisageable.

Plusieurs types de sondes ont été fabriqués par les procédés de photo-lithographie et des dispositifs expérimentaux performants ont été développés. Un système de commutation rapide générant des impulsions de courant ultra-courtes avec un temps de montée de quelques 10 ns a été mis au point. Ce système permet d'effectuer des mesures sur des fenêtres de temps courts à partir d'environ 40 ns. Les propriétés thermiques mesurées sur différents matériaux de référence sont en très bon accord avec celles données dans la littérature. Nous avons montré que la mesure pouvait être réalisée dans un environnement à température variable et que des mesures répétitives à cadence élevée permettaient de suivre des évolutions rapides de propriétés.

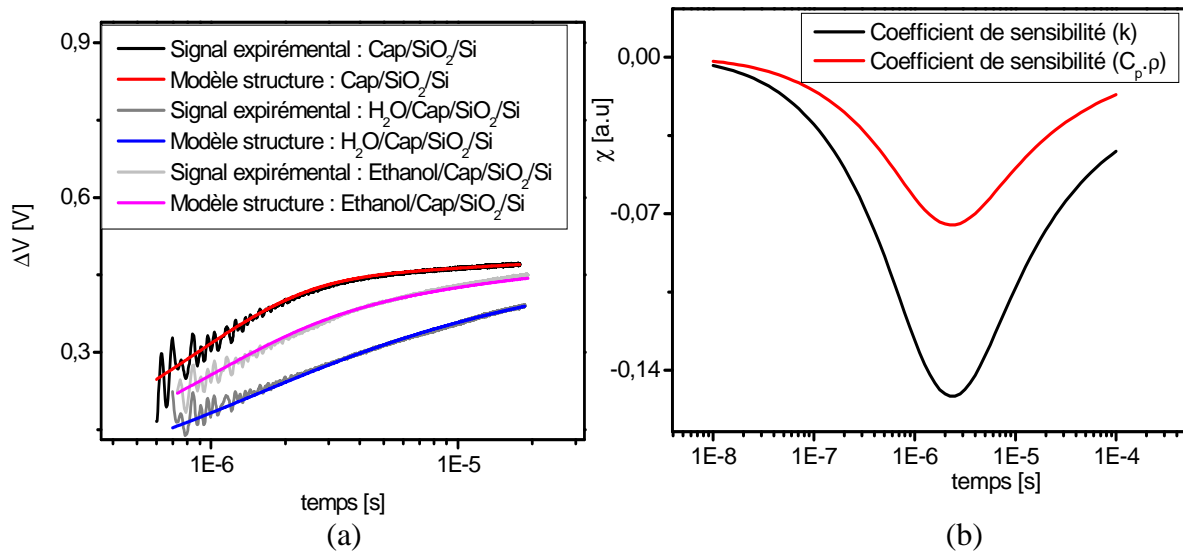
Ces travaux ont permis de mesurer les propriétés thermiques de films de nitrure d'aluminium et de nanostructures en carbone élaborés par des procédés plasmas. Ces propriétés ont été corrélées avec la microstructure. Nous avons mis en évidence la conductivité thermique élevée des films AlN élaborés par pulvérisation réactive magnétron en configuration déséquilibrée. Une conductivité thermique de volume aussi élevée que  $220 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  et une résistance d'interface aussi faible que  $3 \times 10^{-9} \text{ K}\cdot\text{m}^2\cdot\text{W}^{-1}$  à 300 K ont été mesurées. Nous avons montré l'influence des conditions d'élaboration et de la nature du substrat sur la conductivité thermique et la morphologie des films. Nous avons établi que la conductivité thermique des films d'AlN dépend de la taille des grains colonnaires, de la quantité d'oxygène, et de la qualité cristalline de l'interface avec le substrat. Nous avons montré que la conductivité de volume augmente avec la taille des grains et diminue avec le taux en oxygène. En s'appuyant sur des analyses microstructurales, nous avons quantifié les résistances thermiques d'interfaces et mis en évidence le rôle majeur de la couche de transition microcristalline. Par ailleurs, une nouvelle technique a été développée pour mesurer les propriétés thermiques des nano-parois de carbone élaborées par procédés plasmas. Nous avons mis en évidence la grande conductivité thermique et qualité cristalline de ces matériaux. Nous avons trouvé une conductivité thermique supérieure à  $2000 \text{ W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  pour le carbone à 300 K avec une épaisseur de 14  $\mu\text{m}$ . nous avons mis également en évidence le rôle important de la résistance thermique d'interface sur la conductivité thermique effective et nous avons montré que l'encapsulation des nanoparois de carbone par du nitrure d'aluminium augmente les propriétés thermiques. Nous avons mis en évidence que la conductivité thermique du composite augmente avec le nombre de parois de carbone. Dans le nanocomposite, la matrice d'AlN permet d'accroître la conductivité en volume et de réduire la résistance d'interface par augmentation des aires de contact avec le substrat.

Ce travail ouvre de nombreuses perspectives.

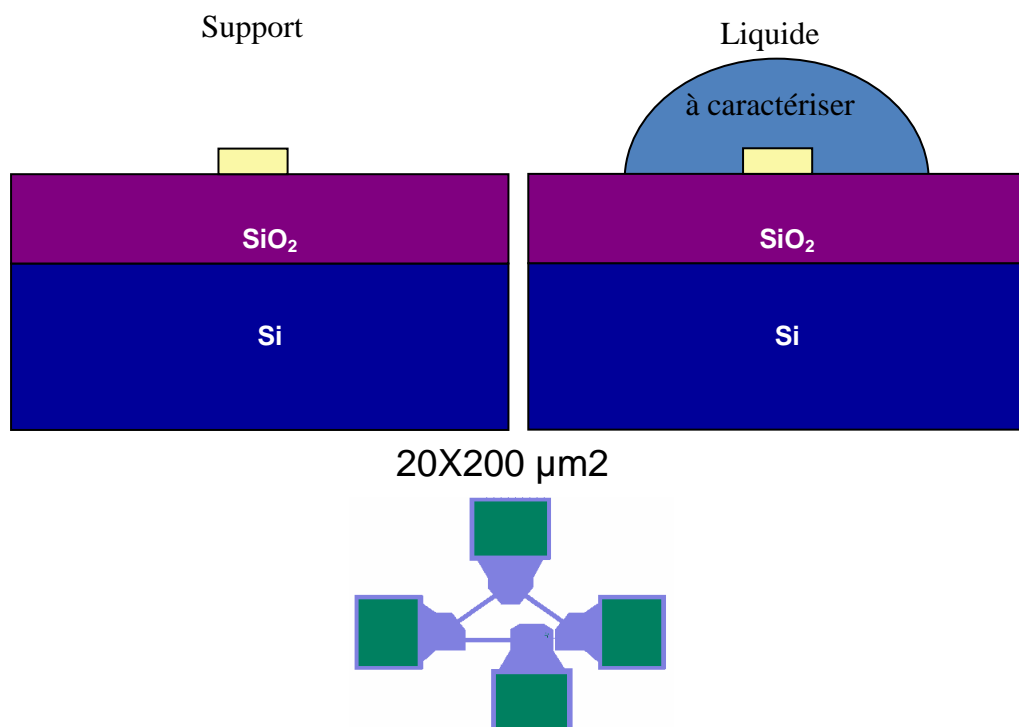
Nous envisageons tout d'abord d'étudier les propriétés thermiques et la qualité cristalline du nitrure d'aluminium et du nitrure de bore élaboré par les techniques plasmas pulsées (HIPIMS). Ces techniques de dépôt devraient permettre d'améliorer la qualité des interfaces et d'augmenter ainsi la conductivité effective des matériaux. Nous envisageons ensuite de caractériser les propriétés de couches minces AlN et BN dans les directions perpendiculaires et parallèles au plan des films. Différentes nanostructures (nanotubes et nanofils de carbone et de BN) et de nano-composites pourront être également étudiés en cherchant à mettre en évidence les effets de la microstructure et de la taille des systèmes.

Nous envisageons par ailleurs l'intégration et le développement de nano-capteurs thermiques pour la nano-caractérisation des matériaux et la détection de substances chimiques et biologiques. Les applications en micro-fluidique ou pour la détection la présence de molécules pourraient être intéressantes. Ces capteurs peuvent être constitués de résistances électriques thermosensibles, formées de films minces et/ou de nano-fils jouant le rôle d'éléments chauffants et de détecteurs de température, en contact avec la matière à caractériser. Les propriétés thermiques de la matière (conductivité thermique, capacité calorifique) peuvent être obtenues par analyse de l'évolution de l'élévation de la température des résistances sous impulsions ultra-brèves de courant. L'analyse aux temps courts doit permettre de sonder de petits volumes de matière (quelques nanomètres à micromètre d'épaisseur). Ce mode de fonctionnement est en rupture avec les techniques actuelles. Il présente une grande sensibilité ( $10^{-4}$  °C), un faible temps de réponse (10 ns). La mesure pourrait être répétée à raison de 100 000 fois par seconde. A titre d'exemple, nous présentons des mesures de conductivité thermique et de capacité calorifique effectuées sur de l'eau et de l'éthanol. La mesure consiste à mettre une goutte de liquide en contact avec une sonde de  $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$  reportée sur un film de  $1,2\ \mu\text{m}$  de  $\text{SiO}_2$  sur Si (Figure 2). L'estimation réalisée sur les signaux de la figure 1a donne pour l'eau ;  $k = 0,6\ \text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  et  $Cp.\rho = 4,1 \times 10^6\ \text{J}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$ , et pour l'éthanol ;  $k = 0,17\ \text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$  et  $Cp.\rho = 1,92 \times 10^6\ \text{J}\cdot\text{m}^{-3}\cdot\text{K}^{-1}$ . Ces valeurs sont en bon accord avec les valeurs données dans les références [1] et [2]. Les mesures font apparaître une bonne sensibilité (Figure 1-b).





*Figure 1. Tests de micro-sondes thermiques pour la caractérisation des propriétés thermo-physiques de l'eau et de l'éthanol (a) Signaux expérimentaux et signaux calculés pour l'eau et l'éthanol et (b) Evolution des coefficients de sensibilité à la conductivité thermique et à la capacité thermique*



*Figure 2. Micro-Sonde thermique pour la mesure des propriétés thermiques de goutte de liquide*

## **Référence**

[1]: X. Wang, X. Xu, and S. U. S. Choi, "Thermal Conductivity of Nanoparticle–Fluid Mixture", (1999). *Journal of Thermophysics and Heat Transfer* 13, 474-480.

[2]: M. Fujii, X. Zhang, N. Imaishi, S. Fujiwara, and T. Sakamoto, "Simultaneous measurement of thermal conductivity and thermal diffusivity of liquids under microgravity conditions", (1997). *International Journal of Thermophysics* 18, 327-339.



## 6. Annexes

6.	Annexes.....	149
6.1.	ANNEXE I : TECHNIQUE DE CARACTERISATION STRUCTURALE .....	150
6.1.1.	Microscope électronique à balayage (MEB) .....	150
6.1.2.	Microscope électronique à transmission (MET) .....	150
6.1.3.	Diffraction des rayons X (DRX).....	151
6.2.	ANNEXE II : THEORIE ASSOCIEE AU PONT DE WHEATSTONE .....	154
6.2.1.	Coefficients de température des résistances métalliques en couches minces.....	154
6.2.2.	Théorie du pont de Wheatstone.....	156
6.2.3.	Méthode de quadripôle thermique.....	158
6.2.4.	Transformée de Fourier finie .....	164
6.2.5.	Calcul numérique de la transformée inverse de Laplace .....	165
6.2.6.	Modèle simplifié pour un substrat semi infini .....	166
6.2.7.	Référence II : .....	170
6.3.	ANNEXE III : REALISATION DES MICRO-SONDES .....	171
6.3.1.	La lithographie .....	171
6.3.2.	THALES fabrication du microcapteur .....	175
6.3.3.	Les différentes générations des masques.....	177
6.4.	ANNEXE IV : INFLUENCE DE STRUCTURE DE L'ALN ET DE NANOSTRUCTURES DE CARBONE SUR LES MESURES 179	
6.4.1.	Validité de la notion de $k_f$ pour un film de structure hétérogène.....	179
6.4.2.	Calcul de la résistance thermique de constriction entre nanostructure et substrat ....	184
6.4.3.	Référence IV : .....	185

## 6.1. **Annexe I : Technique de caractérisation structurale**

Afin de pouvoir expliquer les mesures thermiques effectuées, les couches minces caractérisées l'ont également été d'un point de vue morphologique et physico-chimique. Différentes techniques ont donc été utilisées telles que la microscopie électronique à balayage, la microscopie électronique à transmission, et la diffraction des rayons X.

### 6.1.1. **Microscope électronique à balayage (MEB)**

Les images observations par la microscopie électronique à balayage (MEB) présentées dans cette étude ont été effectuées sur un MEB Merlin de chez ZEISS, avec ce MEB nous pouvons obtenir des grandissements jusqu'à 200000x. La tension d'accélération des électrons utilisée est de 7 kV, et la distance détecteur échantillon varie de 9 mm jusqu'à 14 mm.

Les échantillons sont préalablement collés sur des plots métalliques à l'aide de l'utilisation d'une couche de laque d'argent. Ils sont ensuite métallisés, cette couche métallique est généralement déposée par évaporation thermique sous vide, afin d'assurer le contact électrique entre l'échantillon et le support, et d'éviter toute accumulation de charges sur la surface de l'échantillon pendant l'analyse (évacuation des charges accumulées à la surface de l'échantillon).

### 6.1.2. **Microscope électronique à transmission (MET)**

Les images MET présentées dans ce travail de thèse, ont été obtenues sur un MET Hitachi *HF 2000* avec l'utilisation d'un canon à émission de champ. Les électrons sont accélérés sous 200 kV. La résolution de Scherzer (ponctuelle) de ce microscope est de 0,23 nm, et la résolution spatiale de 0,1 nm.

Les échantillons ont été amincis par amincissement mécanique jusqu'à 1  $\mu\text{m}$ , puis par amincissement ionique (Baltec sous flux d'argon 4 kV, 0,5 mA) jusqu'à 50 nm.

### 6.1.3. Diffraction des rayons X (DRX)

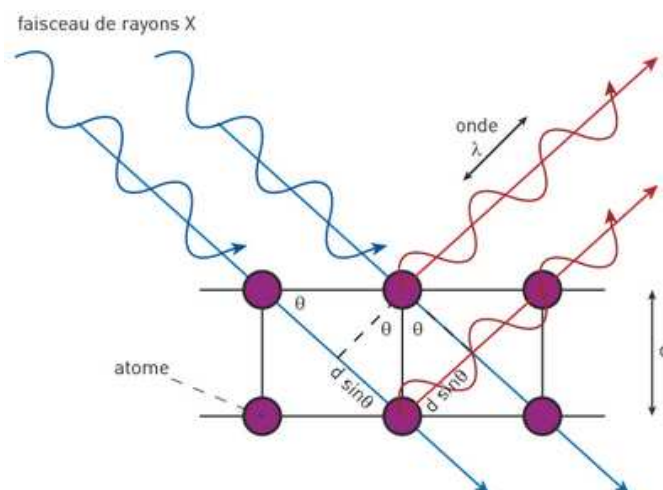
Pour l'étude de la qualité cristalline, des matériaux que nous avons caractérisés, nous avons utilisé la diffraction des rayons X (DRX). La structure cristalline d'un matériau caractérise la répartition des atomes sous forme de réseau. Ce réseau est constitué d'un empilement de plans parallèles et équidistants, qui sont appelés plans réticulaires. La distance  $d_{hkl}$ , qui sépare deux plans cristallins, est caractéristique de la structure du matériau. Lorsque un faisceau de rayons X de longueur d'onde  $\lambda$  atteint un matériau cristallisé, il est diffracté dans une direction donnée par les familles de plans réticulaires du matériau (voir Figure I-1). L'angle  $\theta$  entre cette direction et la surface de l'échantillon à analyser est relié à la distance entre les plans réticulaires du cristal selon la loi de Bragg :

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

*Equation I- 1*

où  $n$  est un nombre entier qui définit l'ordre de la réflexion et  $d_{hkl}$  les distances inter réticulaires permettent l'identification des phases cristallographiques constituant le matériau.

Le diffractomètre utilisé est un appareil « Siemens D5005 », il est constitué d'une source émettant des rayons X ( $\lambda_{\text{Cuivre}} = 0,154 \text{ nm}$ ) et d'un détecteur des rayons diffractés par l'échantillon, fonctionnant en configuration Bragg-Brentano ( $\theta/2\theta$ ) et en mode *Rocking-Curve* ( $\theta/\theta$ ).



*Figure I-1. Principe de diffraction de rayon X.*

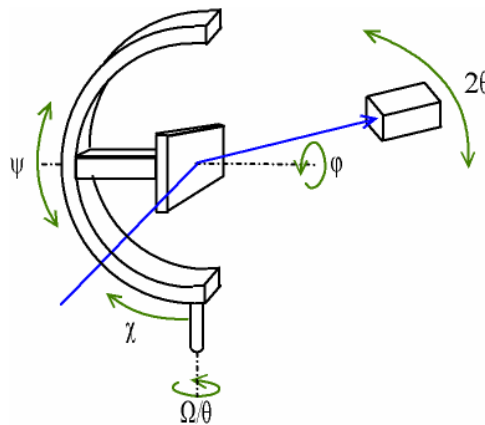
Les rayons sont émis par la source des rayons X et ceux qui sont diffractés par l'échantillon passent au travers de fentes de Solers qui permettent de limiter le phénomène de

divergence, et ainsi d'avoir une meilleure résolution spatiale. Le traitement des résultats consiste à indexer les raies à partir d'une base de données. Puis en précisant la nature des atomes présents dans le matériau, nous déterminons ensuite le type de phase en présence dans le matériau. Une mesure de la largeur à mi-hauteur, permet également de déterminer la taille moyenne des grains ( $W_g$ ), d'après la formule de Sherrer :

$$W_g = \frac{0,9.\lambda}{LMH.\cos(\theta)} \quad \text{Equation I- 2}$$

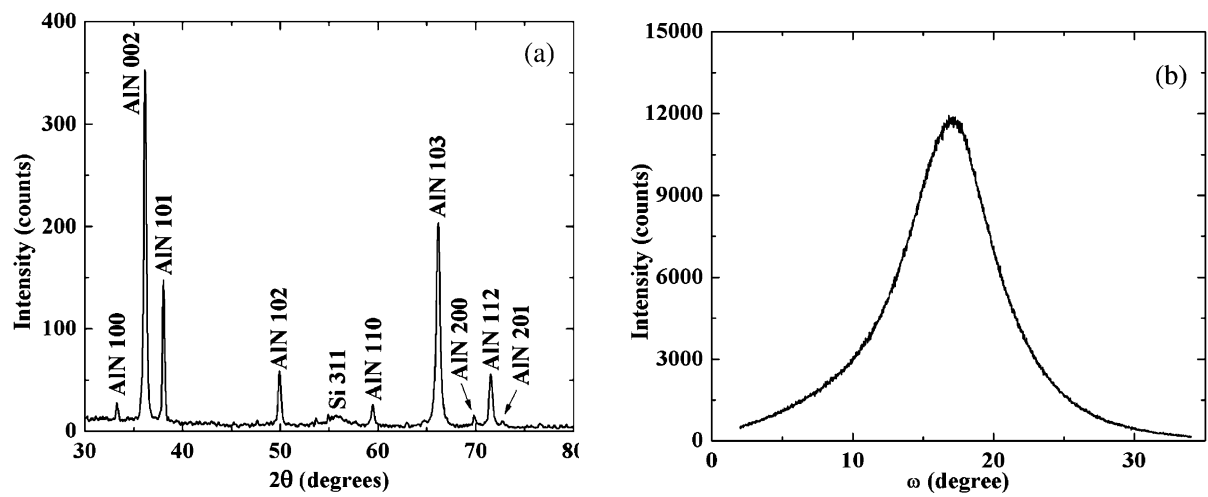
où  $LMH$  correspond à la largeur à mi-hauteur des pics de diffraction. Ce pic est un indicateur de la cristallinité du film, notamment de la taille des grains: plus le pic est fin, plus cette taille est grande.

Afin de déterminer la texture des films, nous utilisons fréquemment les figures de pole ou la technique du « *Rocking-Curve* » (voir Figure I-2). Ces analyses consistent à garder constant l'angle de diffraction  $2\theta$  correspondant à une famille de plans cristallins et à faire tourner l'échantillon suivant  $\psi$  et  $\phi$ , ce qui permet de connaître la répartition statistique de l'orientation des grains cristallins du polycristal. Dans le cas des couches minces, nous nous intéressons en général à l'orientation des grains par rapport à la surface du substrat.



**Figure I-2. Schéma illustrant les mouvements possibles d'un échantillon lors d'une analyse par diffraction des rayons**

La Figure I-3, présente un diagramme de diffraction X et un *Rocking-Curve* typique d'un film AlN polycristallin pour une orientation  $2\theta$  égale à  $36^\circ$  correspondant aux plans (002) de la phase hexagonale du cristal d'AlN.



*Figure I-3. Diagramme de diffraction des rayons X (a) et Rocking-Curve (b) associé d'un film AlN polycristallin obtenu par pulvérisation magnétron DC*



## 6.2. Annexe II : Théorie associée au pont de Wheatstone

### 6.2.1. Coefficients de température des résistances métalliques en couches minces

Du fait de sa définition en tant que dérivée d'une résistance en fonction de la température, la connaissance du paramètre  $\beta_R$  est, en général, compliquée. En couche mince, il apparaît de plus une dilatation induisant une variation de dimension, et donc de valeur, de la résistance. En effet, en supposant que chaque résistance est définie comme un parallélépipède rectangle de longueur  $L$ , de largeur  $l$  et d'épaisseur  $e_0$  formée d'un dépôt homogène de résistivité  $\rho$ , la résistance du ruban est donnée par  $R = \rho \cdot \frac{L}{l \cdot e_0} = \rho \cdot D$ , avec  $D$  un facteur géométrique ( $D = \frac{L}{l \cdot e_0}$ ) qui ne dépend que des dimensions du ruban. Dans ce cas, le coefficient de température est défini par :

$$\beta_R = \frac{1}{R} \cdot \frac{dR}{dT} = \frac{1}{\rho} \cdot \frac{\partial \rho}{\partial T} + \frac{1}{D} \cdot \frac{\partial D}{\partial T} = \beta + \frac{1}{D} \cdot \frac{\partial D}{\partial T} \quad \text{Equation II- 1}$$

Dans le cas d'un métal pur, nous pouvons négliger les effets de dilatations thermiques ( $\frac{1}{D} \cdot \frac{\partial D}{\partial T} = 0$ ) de telle sorte  $\beta_R = \beta$ . Dans le cas d'un métal déposé en couche mince, la résistivité peut être différente de celle du matériau intrinsèque du fait de la présence de défauts. La résistivité peut s'écrire comme la somme de la résistivité intrinsèque ( $\rho_m$ ) et d'une résistivité liée à la présence des défauts ( $\rho_d$ ). Cette relation est donnée par la loi de Matthiessen [1,2] par :

$$\rho(T) = \rho_m(T) + \rho_d \quad \text{Equation II-2}$$

La grandeur  $\rho_d$  est indépendante de la température mais est fortement liée aux conditions de dépôt. La valeur de  $\rho_m$  peut de plus être différente de celle du matériau massif en raison d'une possible limitation du libre parcours moyen des électrons aux frontières du

film. La relation de Matthiessen (Equation II-2) permet de trouver une formule mathématique qui relie la résistivité électrique et le coefficient de température.

$$\rho(T) = \rho_m(T) + \rho_d \Rightarrow \frac{\partial \rho(T)}{\partial T} = \frac{\partial \rho_m(T)}{\partial T}$$

$$\Rightarrow \rho(T) \cdot \beta = \rho_m(T) \cdot \beta_m \Leftrightarrow \frac{\beta_m}{\beta} = \frac{\rho(T)}{\rho_m(T)}$$

*Equation II- 3*

Selon cette formule, l'augmentation de la résistivité électrique du capteur en couche mince due aux défauts induit une diminution de la valeur du coefficient de température. Par conséquent, la mesure de la résistance électrique et la connaissance de la géométrie des rubans donnent accès à la résistivité du métal employé. En utilisant en outre les valeurs massives de la littérature, il devient possible d'estimer le coefficient de température de notre capteur. Les propriétés de quelques métaux sont présentées dans le Tableau II-1. Dans le cas général un recuit est toujours préférable de manière à permettre, de stabiliser les propriétés du métal (comme  $\beta$ ), de réduire le nombre de défauts et de relâcher les contraintes internes.

**Tableau II- 1 : Coefficients de température et résistivité électrique de quelques métaux sous forme massif à 300 K [2-4].**

Métaux	Cu	Ni	Al	Ti	Au	Pt
$\beta_m \times 10^3 K^{-1}$	3.9	6	4	X	3.4	3.92
$\rho_m \times 10^8 \Omega.m$	1.68	6.84	2.65	42	2.35	10.6

## 6.2.2. Théorie du pont de Wheatstone

La tension de sortie du pont ou « tension de déséquilibre » est donnée par  $V_{AB} = V_A - V_B$ , où  $V_A$  et  $V_B$  sont calculées par l'application du principe de diviseur de tension sur les deux branches du pont :

$$V_A = U \cdot \frac{R_1}{R_1 + R_2} \quad \text{Equation II- 4}$$

Et

$$V_B = U \cdot \frac{R_4}{R_4 + R_3} \quad \text{Equation II- 5}$$

Donc la tension de sortie  $V$  est donnée par :

$$V = V_{AB} = U \cdot \frac{R_1 \cdot R_3 - R_4 \cdot R_2}{(R_1 + R_2) \cdot (R_4 + R_3)} \quad \text{Equation II- 6}$$

Cette équation est la relation spécifique d'un pont de Wheatstone qui donne la tension de sortie du pont en fonction de la tension d'entrée et des résistances constitutives du pont.

Dans le cas d'une utilisation du pont du Wheatstone comme capteur, l'une au moins de ces résistances est variable en fonction d'un phénomène physique particulier, dans notre cas la température. Supposons que cet élément sensible soit la résistance  $R_1$ . La variation de  $R_1$  avec ce phénomène ( $R_1 = R_{10} + \Delta R$ ) provoque une variation sur la tension de sortie du pont ( $V = V_0 + \Delta V$ ) donnée par la relation :

$$\Delta V + V_0 = U \frac{(R_{10} + \Delta R) \cdot R_3 - R_4 \cdot R_2}{((R_{10} + \Delta R) + R_2) \cdot (R_4 + R_3)} \quad \text{Equation II- 7}$$

Dans notre cas, nous ne nous intéresserons qu'à de petites variations des grandeurs physiques, se traduisant donc par des variations faibles de la résistance par rapport à sa valeur initiale ( $R_{10} \gg \Delta R$ ). Par conséquent,  $(R_{10} + \Delta R) + R_2 = R_{10} + R_2$  et l'Equation II-7 devient :

$$\begin{aligned} \Delta V + V_0 &\approx U \frac{(R_{10} + \Delta R) \cdot R_3 - R_4 \cdot R_2}{(R_{10} + R_2) \cdot (R_4 + R_3)} \\ &= U \underbrace{\frac{\Delta R \cdot R_3}{(R_{10} + R_2) \cdot (R_4 + R_3)}}_{\text{composante 1}} + U \cdot \underbrace{\frac{R_{10} \cdot R_3 - R_4 \cdot R_2}{(R_{10} + R_2) \cdot (R_4 + R_3)}}_{\text{composante 2}} \end{aligned} \quad \text{Equation II- 8}$$

La relation donnée par l'Equation II-8, est divisée en deux composantes, l'une dépendante de la variation de la résistance sensible et l'autre constante. Pour augmenter la précision de la mesure, il faut par conséquent que le deuxième terme soit négligeable devant le premier, c'est ce que nous appelons la « condition d'équilibre du pont ».

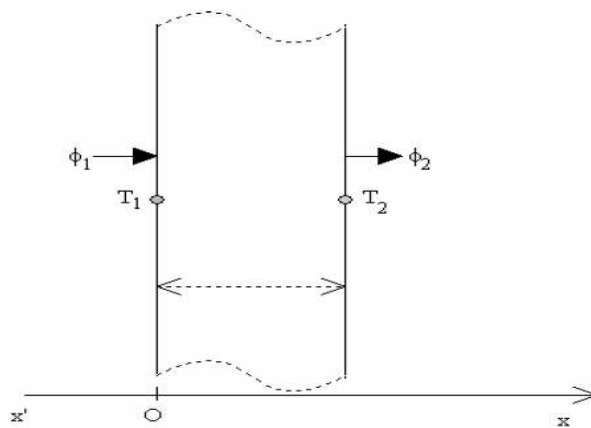
$$\begin{aligned} V_0 &= U \cdot \frac{R_{10} \cdot R_3 - R_4 \cdot R_2}{(R_{10} + R_2) \cdot (R_4 + R_3)} = 0 \\ &\Rightarrow \frac{R_2}{R_{10}} = \frac{R_3}{R_4} \end{aligned} \quad \text{Equation II- 9}$$

Lorsque le pont est initialement équilibré, on obtient donc une tension de déséquilibre ( $\Delta V$ ) directement liée à la variation de la résistance sensible par l'équation II-10 :

$$\begin{aligned} \Delta V &= U \frac{\Delta R \cdot R_3}{R_{10} \cdot \left(1 + \frac{R_2}{R_{10}}\right) \cdot R_4 \cdot \left(\frac{R_3}{R_4} + 1\right)} = \frac{\frac{R_2}{R_{10}}}{R_{10} \cdot \left(1 + \frac{R_2}{R_{10}}\right)^2} \cdot U \cdot \Delta R \\ &\Rightarrow \Delta V = \frac{R_2 \cdot R_{10}}{(R_{10} + R_2)^2} \cdot U \cdot \frac{\Delta R}{R_{10}} \end{aligned} \quad \text{Equation II- 10}$$

### 6.2.3. Méthode de quadripôle thermique

Dans la démonstration de la méthode de quadripôle thermique, nous concéderons un échantillon monocouche composé d'une seule couche d'épaisseur  $e$ , (sans source thermique interne et en équilibre thermique à une température  $T_0$ ) de conductivité thermique,  $k$ , de densité,  $\rho$ , et de capacité calorifique,  $Cp$ . Cet échantillon soumis à des conditions aux limites de flux et température d'entrée et de sortie, comme nous le montrons dans le schéma de la Figure II- 1. Nous supposons que les propriétés thermophysiques de ce dernier sont invariables.



*Figure II- 1. Schéma de la paroi monocouche.*

Ce système est défini par le système d'équations suivant:

$$\begin{cases} \frac{\partial T(x,t)}{\partial t} = a \cdot \frac{\partial^2 T(x,t)}{\partial x^2} \text{ avec } 0 < x < e \\ T(x,0) = T_0 \end{cases}$$

*Equation II- 11*

Avec  $T$  la température dans la couche et  $a$  la diffusivité thermique ( $a=k/(Cp.\rho)$ ).

En faisant un changement de variable ( $\theta = T - T_0$ ), le système d'Equation II-11 devient:

$$\begin{cases} \frac{\partial \theta(x,t)}{\partial t} = a \cdot \frac{\partial^2 \theta(x,t)}{\partial x^2} \text{ avec } 0 < x < e \\ \theta(x,0) = 0 \end{cases}$$

*Equation II- 12*

Soit  $\Theta$  la transformé de Laplace, de la température  $\theta$ , est donnée par :

$$\Theta(x, p) = \int_0^{+\infty} \theta(x, t) \cdot \exp(-p \cdot t) \cdot dt$$

*Equation II- 13*

A partir de cette relation, nous pouvons écrire l'Equation II-12 dans l'espace de Laplace par :

$$p \cdot \Theta = a \cdot \frac{\partial^2 \Theta}{\partial x^2}$$

*Equation II- 13*

La solution de cette équation dans l'espace de Laplace est de la forme :

$$\Theta(x, p) = K_1 \cdot \sinh(\xi \cdot x) + K_2 \cdot \cosh(\xi \cdot x)$$

*Equation II- 14*

Où  $\xi = \frac{p}{a}$  et  $K_1, K_2$ , sont des constantes qui dépendent des conditions aux limites.

La densité du flux thermique à un point d'abscisse  $x$  est donné par :

$$\varphi(x, t) = -k \cdot \frac{\partial \theta(x, t)}{\partial x}$$

*Equation II- 15*

$k$  est la conductivité thermique de la couche.

La transformée de Laplace de la densité du flux thermique noté  $\Phi$  est donnée par :

$$\Phi(x, p) = \int_0^{+\infty} \varphi(x, t) \cdot \exp(-p \cdot t) \cdot dt$$

*Equation II- 16*

Le calcul de la dérivée de l'équation II-15 donne la densité de flux dans l'espace de Laplace, l'expression devient :

$$\Phi(x, p) = \xi.K_1.\cosh(\xi.x) + \xi.K_2.\sinh(\xi.x) \quad \text{Equation II- 17}$$

Notons respectivement  $\Theta_1$  ,  $\Theta_2$  les transformées de Laplace des températures  $\theta_1 = T_1 - T_0$  ,  $\theta_2 = T_2 - T_0$  à l'entrée ( $x = 0$ ) et à la sortie ( $x = e$ ) de l'échantillon et  $\Phi_1, \Phi_2$  les transformées de Laplace des densités de flux.  $\varphi_1, \varphi_2$  à l'entrée et à la sortie aussi de l'échantillon.

Le système constitué par l'échantillon, est considéré comme un système linéaire. La relation linéaire entre les grandeurs d'entrée et de sortie sont donné par:

$$\begin{cases} \Theta_1 = A.\Theta_2 + B.\Phi_2 \\ \Phi_1 = C.\Theta_2 + D.\Phi_2 \end{cases} \quad \text{Equation II-18}$$

En système matriciel nous pouvons écrire :

$$\begin{bmatrix} \Theta_1 \\ \Phi_1 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A & B \\ C & D \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} \Theta_2 \\ \Phi_2 \end{bmatrix} \quad \text{Equation II- 19}$$

La matrice, qui est défini par les paramètres A, B, C et D, appelé la matrice de transfert du quadripôle, associé à l'échantillon. Pour déterminer les composés de cette matrice, il suffit de résoudre le système d'équations suivants:

$$\begin{cases} \Theta_1 = \Theta(x = 0) \\ \Theta_2 = \Theta(x = e) \\ \Phi_1 = -k. \frac{\partial \Theta}{\partial x} \Big|_{x=0} \\ \Phi_2 = -k. \frac{\partial \Theta}{\partial x} \Big|_{x=e} \end{cases} \quad \text{Equation II- 10}$$

Il vient des ces relations :

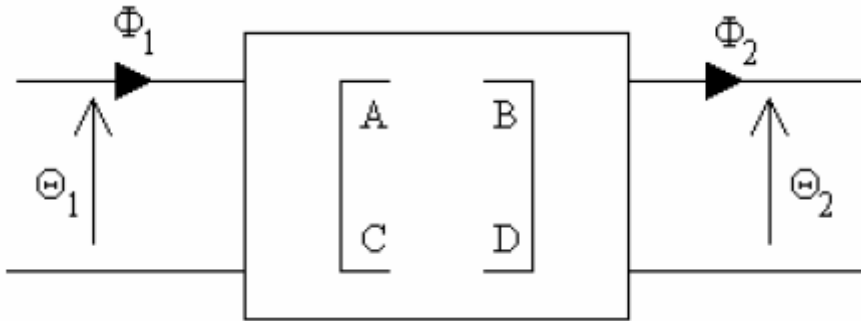
$$\begin{cases} \Theta_1 = \cosh(\xi.e).\Theta_2 + \frac{1}{k.\xi} \sinh(\xi.e).\Phi_2 \\ \Phi_1 = k.\xi.\sinh(\xi.e).\Theta_2 + \cosh(\xi.e).\Phi_2 \end{cases} \quad \text{Equation II- 11}$$

Et donc :

$$\begin{cases} A = D = \cosh(\xi \cdot e) \\ B = \frac{1}{k \cdot \xi} \sinh(\xi \cdot e) \\ C = k \cdot \xi \cdot \sinh(\xi \cdot e) \end{cases}$$

**Equation II- 12**

L'échantillon est considéré comme un système symétrie de déterminant égale à 1. Cet échantillon peut être représenté selon l'analogie électrique par le système suivant (Figure II-2) :



**Figure II- 2. Quadripôle représentatif d'un échantillon monocouche.**

Dans le cas d'une structure composé de plusieurs couches (comme nous le montrons dans la Figure II-3) nous pouvons donner la matrice globale, de l'ensemble, comme le produit des matériaux qui compose la structure :

$$\begin{bmatrix} \Theta_j \\ \Phi_j \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{(m,n)} & B_{(m,n)} \\ C_{(m,n)} & D_{(m,n)} \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \Theta_{j-1} \\ \Phi_{j-1} \end{bmatrix}$$

**Equation II- 13**

Avec

$$\begin{bmatrix} A_{(m,n)} & B_{(m,n)} \\ C_{(m,n)} & D_{(m,n)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cosh(\xi_{m,n} \cdot e) & \frac{1}{k \cdot \xi_{m,n}} \cdot \sinh(\xi_{m,n} \cdot e) \\ k \cdot \xi_{m,n} \cdot \sinh(\xi_{m,n} \cdot e) & \cosh(\xi_{m,n} \cdot e) \end{bmatrix}$$

**Equation II- 14**

$\xi_{m,n}$ , est donné par l'Equation II-25.



$$\xi_{m,n} = \sqrt{\left(\frac{n \cdot \pi}{L_y}\right)^2 + \left(\frac{m \cdot \pi}{L_z}\right)^2 + \frac{\rho}{a}} \quad \text{Equation II- 15}$$

La matrice de transfert d'une résistance d'interface  $R$  [ $\text{m}^2\text{KW}^{-1}$ ], prend la forme :

$$\begin{bmatrix} A_{(m,n)} & B_{(m,n)} \\ C_{(m,n)} & D_{(m,n)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 & R \\ 0 & 1 \end{bmatrix} \quad \text{Equation II- 16}$$

L'association en série des différentes couches permet d'exprimer les grandeurs d'entrée  $\Phi^e, \Theta^e$  en fonction des grandeurs de sortie  $\Phi^s, \Theta^s$  de la structure.

$$\begin{bmatrix} \Theta_{(m,n)}^e \\ \Phi_{(m,n)}^e \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{1(m,n)} & B_{1(m,n)} \\ C_{1(m,n)} & D_{1(m,n)} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} A_{2(m,n)} & B_{2(m,n)} \\ C_{2(m,n)} & D_{2(m,n)} \end{bmatrix} \cdot \dots \cdot \begin{bmatrix} A_{i-1(m,n)} & B_{i-1(m,n)} \\ C_{i-1(m,n)} & D_{i-1(m,n)} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} B_{i(m,n)} \\ D_{i(m,n)} \end{bmatrix} \cdot \Phi_{(m,n)}^s \quad \text{Equation II- 17}$$

$A_{(m,n)}, B_{(m,n)}, C_{(m,n)}, D_{(m,n)}$  sont les coefficients chaque couche.

Dans le cas d'un substrat semi-infini la matrice caractéristique devient :

$$\begin{bmatrix} B_{(m,n)} \\ D_{(m,n)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} 1 \\ k \cdot \xi_{m,n} \\ 1 \end{bmatrix} \quad \text{Equation II- 18}$$

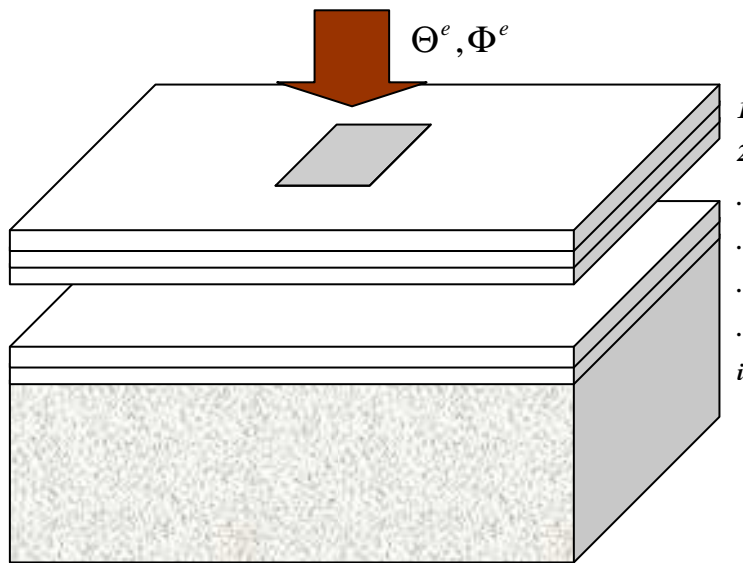
En notant :

$$\begin{bmatrix} \mathbf{m}_{1(m,n)} \\ \mathbf{m}_{2(m,n)} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} A_{1(m,n)} & B_{1(m,n)} \\ C_{1(m,n)} & D_{1(m,n)} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} A_{2(m,n)} & B_{2(m,n)} \\ C_{2(m,n)} & D_{2(m,n)} \end{bmatrix} \cdot \dots \cdot \begin{bmatrix} A_{i-1(m,n)} & B_{i-1(m,n)} \\ C_{i-1(m,n)} & D_{i-1(m,n)} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} B_{i(m,n)} \\ D_{i(m,n)} \end{bmatrix} \quad \text{Equation II- 19}$$

A partir du calcul du produit matriciel, l'expression final de la température d'entrée est donné par :

$$\Theta_{(m,n)}^e = \frac{m_{1(m,n)}}{m_{2(m,n)}} \cdot \Phi_{(m,n)}^e$$

Equation II- 20



$$\Theta^s, \Phi^s = 0$$

*Figure II- 3. Domaine de résolution de l'équation de la chaleur pour le calcul de l'impédance thermique pour un empilement de couche déposé sur un substrat.*

### 6.2.4. Transformée de Fourier finie

La transformée de Fourier finie de type cosinus pour un diffusion thermique bidirectionnel est défini par :

$$\tilde{\bar{\Theta}}(x, n, p) = \int_0^{L_y} \bar{\Theta}(x, y, p) \cdot \cos\left(\frac{n\pi}{L_y} \cdot y\right) dy$$

*Equation II- 31*

Le retour à l'espace réel, s'effectue tout d'abord au moyen de la transformé de Fourier inverse de type cosinus, cette formule d'inversion est défini par:

$$\bar{\Theta}(x, y, p) = 4 \sum_{n=0}^{\infty} \tilde{\bar{\Theta}}(x, n, p) \cdot \cos\left(\frac{n\pi}{L_y} y\right) / \left(\frac{n\pi}{L_y}\right)^2$$

*Equation II- 32*

Par analogie avec la transformé de Fourier finie de type cosinus qui correspond un diffusion thermique bidirectionnel, on peut défini une transformé de Fourier finie de type cosinus pour un diffusion thermique tridirectionnel comme :

$$\tilde{\bar{\Theta}}(x, n, m, p) = \int_0^{L_z} \int_0^{L_y} \bar{\Theta}(z, y, p) \cdot \cos\left(\frac{n\pi}{L_x} z\right) \cdot \cos\left(\frac{m\pi}{L_y} y\right) dz dy$$

*Equation II- 33*

Pour le retour à l'espace réelle on applique le double transformé de Fourier inverse de type cosinus :

$$\bar{\Theta}(x, n, m, p) = 4 \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{m=0}^{\infty} \tilde{\bar{\Theta}}(z, y, p) \cdot \cos\left(\frac{n\pi}{L_x} z\right) \cdot \cos\left(\frac{m\pi}{L_y} y\right) / \left[\left(\frac{n\pi}{L_x}\right)^2 \cdot \left(\frac{m\pi}{L_y}\right)^2\right]$$

*Equation II- 34*

### 6.2.5. Calcul numérique de la transformée inverse de Laplace

La transformée inverse de Laplace est obtenue, numériquement, en utilisant l'algorithme d'inversion de Gaver-Stehfest. Cet algorithme de Gaver-Stehfest est une Méthode basée sur l'approximation de la fonction temporelle,  $\Delta T(t)$ , à partir de l'expression de fonction complexe,  $\overline{\Delta T}(s)$ , (dans l'espace de Laplace). Dans le cas général, cette transformée inverse est donnée par :

$$\Delta T(t) = \frac{\ln(2)}{t} \cdot \sum_{i=1}^N C_i \cdot \overline{\Delta T} \left( s = \frac{i \cdot \ln(2)}{t} \right) \quad \text{Equation II- 35}$$

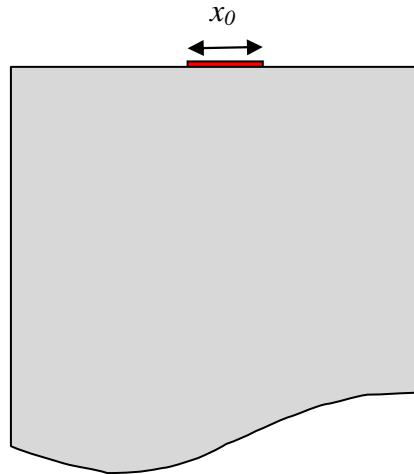
Avec  $C_i$  sont donnés par :

$$C_i = (-1)^{i+N/2} \cdot \sum_{k=\text{Int}(i+1)/2}^{\text{Min}(N/2,i)} \frac{k^{N/2} \cdot (2k)!}{(N/2 - k)! \cdot k! \cdot (k-1)! \cdot (2k-i)!} \quad \text{Equation II- 36}$$

Plus  $N$  est grand, plus  $\Delta T(t)$  est précis. En pratique nous avons travaillé, dans le passage de  $\overline{\Delta T}(s)$  à  $\Delta T(t)$ , avec  $N = 10$ . Où  $C_1 = 1/12$ ,  $C_2 = -385/12$ ,  $C_3 = 1279$ ,  $C_4 = -46871/3$ ,  $C_5 = 505465/6$ ,  $C_6 = -473915/2$ ,  $C_7 = 1127735/3$ ,  $C_8 = -1020215/3$ ,  $C_9 = 328125/2$ , et  $C_{10} = -65625/2$ .

### 6.2.6. Modèle simplifié pour un substrat semi infini

On détermine la fonction de transfert d'un matériau homogène par résolution de l'équation bidimensionnelle de la chaleur dans un parallélépipède rectangle de dimensions  $L_x \times L_y$ , (Figure II-4).



**Figure II- 4. Domaine de résolution de l'équation de la chaleur avec  $x_0$  et  $L$  sont respectivement, la largeur et la longueur du microruban**

Le champ de température satisfait l'équation de la chaleur :

$$\frac{\partial^2 T}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 T}{\partial z^2} = \frac{1}{a} \cdot \frac{\partial T}{\partial t} \quad \text{Equation II- 37}$$

Les conditions aux frontières sont données par les relations

$$z = 0 : -k \cdot \left. \frac{\partial T}{\partial z} \right|_{z=0} = \varphi \quad \text{Equation II- 38}$$

$$x = L_x : T(x = L_x, z, t) = 0 \quad \text{Equation II- 39}$$

$$y = L_y : T(y = L_y, z, t) = 0 \quad \text{Equation II- 40}$$

La condition initiale est :

$$t = 0 : T(x, z, t = 0) = 0 \quad \text{Equation II- 41}$$

L'équation de diffusion de la chaleur, dans l'espace de Laplace, devient :

$$\frac{\partial^2 \bar{T}}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 \bar{T}}{\partial z^2} = \frac{s}{a} \bar{T} \quad \text{Equation II- 42}$$

Nous avons aussi appliqué la transformé de Fourier finie en cosinus dans suivent  $L_x$  avec :

$$\tilde{T}(z, n, p) = \int_0^{L_y} \bar{T}(x, z, s) \cdot \cos(\alpha_n x) dx \quad \text{Equation II- 43}$$

Avec:

$$\alpha_n = \frac{n \cdot \pi}{L_x} \quad \text{Equation II- 44}$$

Après l'application de l'Equation II-34 sur l'Equation II-33 on trouve :

$$\frac{\partial^2 \tilde{T}}{\partial z^2} + \zeta_n^2 \tilde{T} = 0 \quad \text{Equation II- 45}$$

$$\text{Avec } \zeta_n = \sqrt{\alpha^2 + \frac{s}{a}}.$$

La résolution de l'Equation II-36 dans pour un substrat semi-infini pour  $z = 0$ , est de la forme suivant :

$$\tilde{T}(n, s) = \tilde{\varphi} \cdot \frac{1}{k \cdot \zeta_n} \quad \text{Equation II- 46}$$

Pour le retour à l'espace de Laplace, nous appliquons la transformé inverse de Fourier fini en cosinus :

$$\bar{T}(x, s) = \frac{\bar{\varphi}}{\pi.k.L_x} \int_0^{\infty} \frac{\cos(\alpha.x). \sin(\alpha.x_0)}{\alpha.x_0.\zeta_n} .d\alpha \quad \text{Equation II- 47}$$

La température moyenne du ruban, cette température est donnée par :

$$\bar{T}_m(s) = \frac{1}{x_0} \int_{-x_0/2}^{x_0/2} \bar{T}(s).dx \quad \text{Equation II- 48}$$

L'équation (39) devient après l'application de l'Equation II-48 :

$$\bar{T}_m(s) = \frac{\bar{\varphi}}{\pi.k.L_x} \int_0^{\infty} \frac{\sin^2(\alpha.x_0)}{(\alpha.x_0)^2 .\zeta_n} .d\alpha \quad \text{Equation II- 49}$$

La solution de cette équation (Equation II-49) analytiquement est impossible. Cependant, une solution approximative est obtenue si la largeur de l'élément chauffant est très étroite comparée à la longueur d'onde thermique ( $= |s/\alpha|^{-1/2}$ ), avec  $x_0 \ll |s/\alpha|^{-1/2}$ . Si c'est le cas, l'intégrale peut être effectuée en utilisant la première approximation ( $\frac{\sin(\alpha.x_0)}{\alpha.x_0} \rightarrow 0$ ), et l'intégrale dans toute la largeur du microruban (de  $-x_0/2$  à  $x_0/2$ ). La relation (II-49) devient :

$$\bar{T}_m(s) = \frac{\bar{\varphi}}{\pi.k.L_x} \int_{-x_0/2}^{x_0/2} \frac{1}{\sqrt{\alpha^2 + s/a}} .d\alpha \quad \text{Equation II- 50}$$

L'intégrale de la relation (II-50) est :

$$\bar{T}_m(s) = \frac{\bar{\varphi}}{\pi.k.L_x} \left[ 1/2 . \ln\left(\frac{a}{x_0^2}\right) - 1/2 . \ln(s) + 0.923 \right] \quad \text{Equation II- 51}$$

Supposant qu'il n'y a pas de perte de chaleur au niveau de la surface et la puissance générée par l'élément chauffant est homogène. D'autre part, on suppose que les pertes de chaleur par rayonnement peuvent être négligées car l'élévation de la température est généralement faible, les dimensions de l'élément chauffant sont très petites et aussi le temps de mesure est très court. Mais l'épaisseur de l'élément chauffant est très mince. Ce qui nous amène à exprimer la condition sur la partie supérieure du substrat  $\bar{\varphi} = \frac{Q_0}{s}$ , donc l'Equation

II-51 devient :

$$\bar{T}_m(s) = \frac{Q_0}{\pi.k.L_x.s} \left[ 1/2.\ln\left(\frac{4.a}{x_0^2}\right) - 1/2.\ln(s) + 0.923 \right] \quad \text{Equation II- 51}$$

La transformé de Laplace inverse de la relation II-34 s'exprimée sous forme :

$$\bar{T}_m(s) = \frac{Q_0}{\pi.k.L_x} \left[ 1/2.\ln\left(\frac{4.a}{x_0^2}\right) - 1/2.\ln(t) + 0.923 \right] \quad \text{Equation II- 52}$$

Modèle de diffusion de la chaleur 2D pour un film mince déposé sur un substrat semi infini :

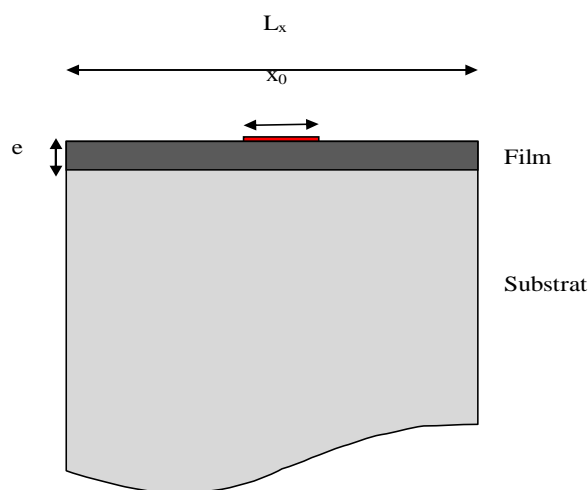


Figure II- 5. Domaine de résolution de l'équation de la chaleur pour une structure bicouche



Pour un certain temps, la diffusion de la chaleur sous comporte comme une résistance thermique qui dépend seulement de l'épaisseur ( $e$ ) et de la conductivité thermique ( $k$ ) (voir Figure II-5). Donc on peut exprimer la température moyenne au niveau du microruban dans le domaine temporel, sous la forme suivante :

$$\bar{T}_m(s) = \frac{Q_0}{\pi \cdot k_s \cdot L_x} \left[ 1/2 \cdot \ln\left(\frac{4 \cdot a_s}{x_0^2}\right) - 1/2 \cdot \ln(t) + 0.923 \right] + \frac{Q_0}{L_x \cdot x_0} \cdot \frac{e}{k} \quad \text{Equation II- 53}$$

### 6.2.7. Référence II :

- [1] : A. Matthiessen, "Annals of Physics", (1864).
- [2] : M. J. Aus, B. Szpunar, U. Erb, et A. M. El-Sherik, "Electrical resistivity of bulk nanocrystalline nickel", (1994). *Journal of Applied Physics* **75**, 3632-3634.
- [3] : X. Chen, B. Tao, et Z. Yin, "Investigation of Bulk Resistance for Metal-Coated Polymer Particles Used in Anisotropic Conductive Adhesive", (2001).
- [4] : J. M. Camacho, E.A.O., "Surface and grain boundary contributions in the electrical resistivity of metallic nanofilms", (2006). *Thin Solid Films* **515**, 1881–1885.

## 6.3. Annexe III : Réalisation des micro-sondes

### 6.3.1. La lithographie

La technique photolithographie est une technique pour la réalisation des dispositifs électroniques intégrés. La lithographie consiste à définir des motifs sur la surface du matériau à caractériser, ces motifs serviront ensuite pour l'étape de gravure ou de dépôt. Le procédé consiste, dans un premier temps, à recouvrir l'échantillon avec un polymère sensible, appelé résine. Il y a deux types lithographies:

- Lithographie optique, avec l'utilisation d'une résine sensible aux rayons ultraviolets (UV) (résine photosensible).
- Lithographie électronique, avec l'utilisation d'une résine sensible aux électrons.

Le choix de la résine se fait non seulement en fonction du type d'insolation, optique ou électronique, mais aussi en fonction du procédé auquel devra servir le masque de résine, gravure chimique ou sèche, implantation ionique, métallisation.... Le matériau photosensible appelé aussi photorésine est divisé en deux grandes parties :

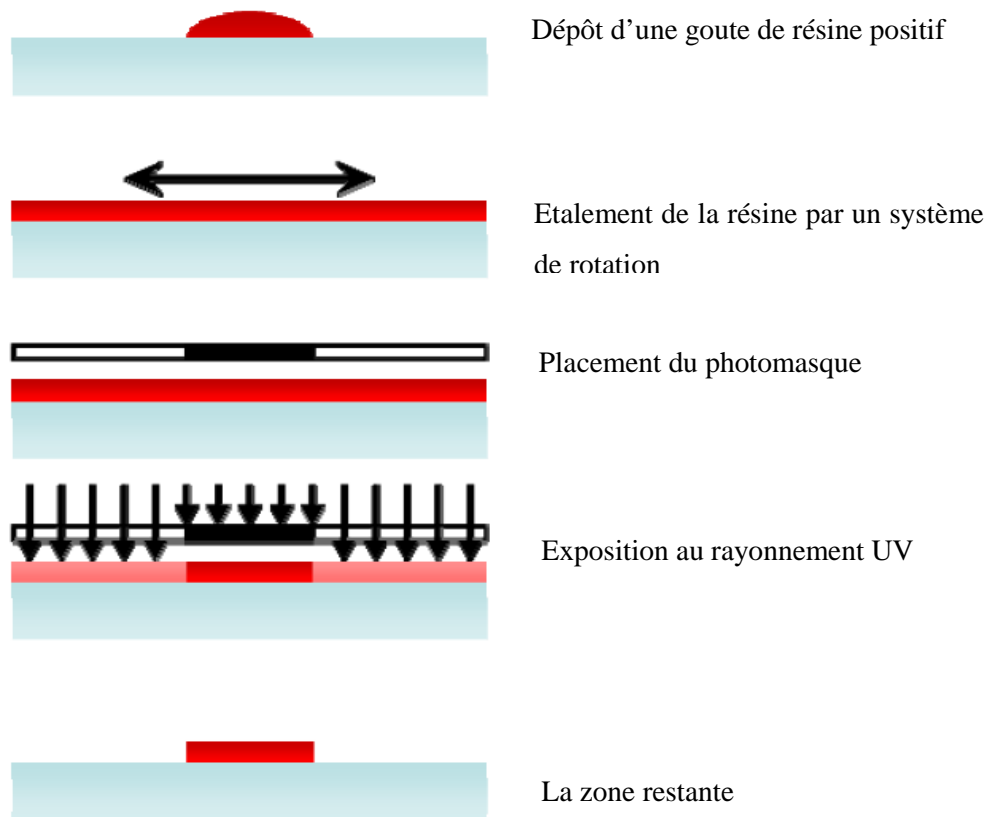
La première partie, la résine positive, est un type de résine photosensible pour laquelle la partie exposée à la lumière ultraviolet (UV) devient soluble au révélateur et la portion de résine photosensible non exposée reste insoluble.

La deuxième partie, la résine négative, est aussi une résine photosensible pour laquelle la partie exposée à la lumière devient insoluble au révélateur et la portion de résine photosensible non exposée reste soluble.

#### 6.3.1.1. La lithographie optique

Les étapes du procédé de photolithographie commencent d'abord, par le dépôt par centrifugation de la photorésine (spin-coating) afin de réaliser une couche homogène de résine à la surface de l'échantillon (Voir Figure III-1). En second lieu, un photomasque positif, contenant les dispositifs que nous souhaitons transférer à la résine photosensible, est placé au-dessus du substrat. En exposant le substrat avec le photomasque au rayonnement UV (pour quelques minutes), la partie exposée de résine photosensible deviendra soluble. La photorésine est alors développée avec le révélateur, il reste la partie non exposée cachée par la

résine. Le modèle de la résine photosensible peut être employé en deux différentes manières photolithographie classique (gravure chimique) ou lift-off.

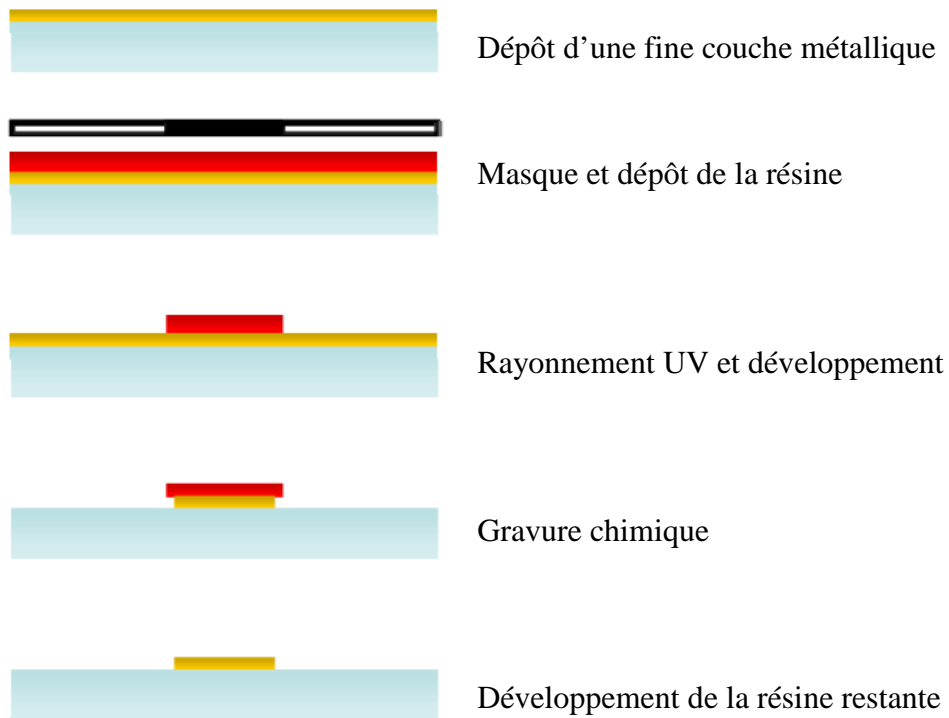


*Figure III-1. Déception de processus de photolithographie avec l'utilisation d'un masque et une résine positif. Avec en bleu le substrat et en rouge la résine photosensible.*

### **6.3.1.2. Photolithographie classique**

Pour la technique photolithographie classique la couche métallique est déjà déposée à la surface de l'échantillon avant de commencer les processus de lithographie (voir Figure III-2). Après le dépôt de la fine couche métallique, nous déposons la résine photosensible et le masque à la surface de ce dernier nous exposons l'ensemble au rayonnement UV après nous mettons l'échantillon dans le révélateur jusqu'à la disparition de la résine soluble par la suite nous le mettrons dans un bain qui contient des acide chimique qui va attaquer la zones non protégé par la résine et finalement nous enlevons la résine qui reste.

Cette technique présente beaucoup d'inconvénients, et notamment celui de la gravure latérale d'une partie de la zone cachée par la photorésine ce qui rend difficile d'avoir des lignes uniforme très minces. De plus, l'influence de la gravure latérale étant différente sur les micro et les macro-rubans, il s'ensuit un possible déséquilibre du pont.

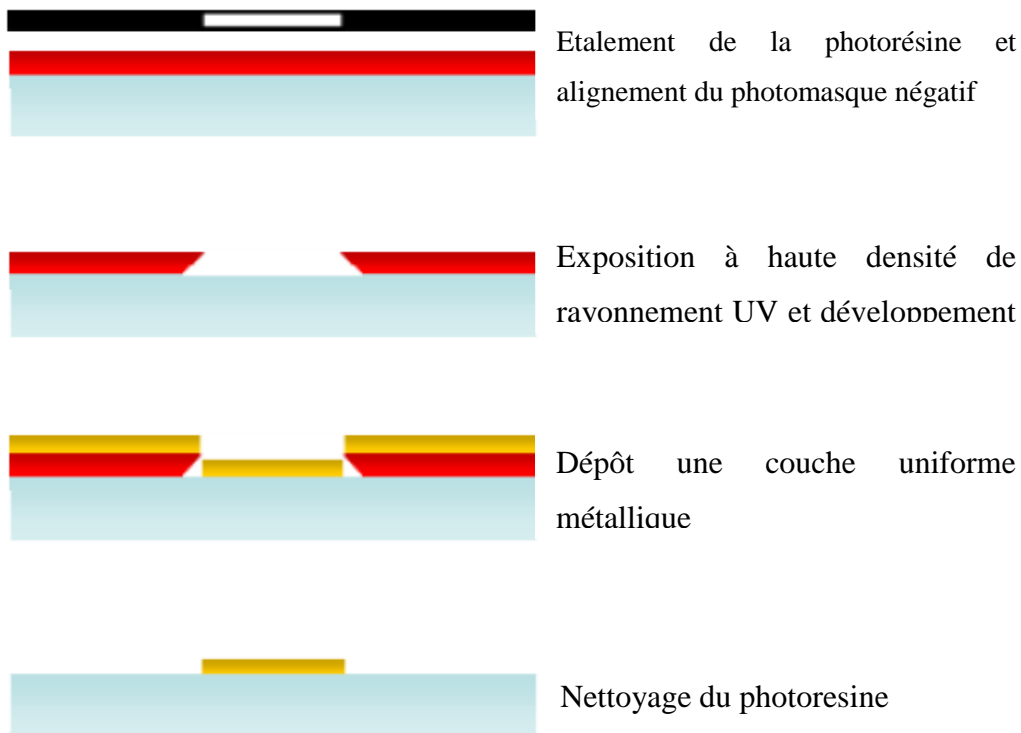


*Figure III-2. Technique photolithographie classique (par gravure chimique) utilisée pour graver une bande métallique sur un substrat*

### 6.3.1.3. Lift-Off

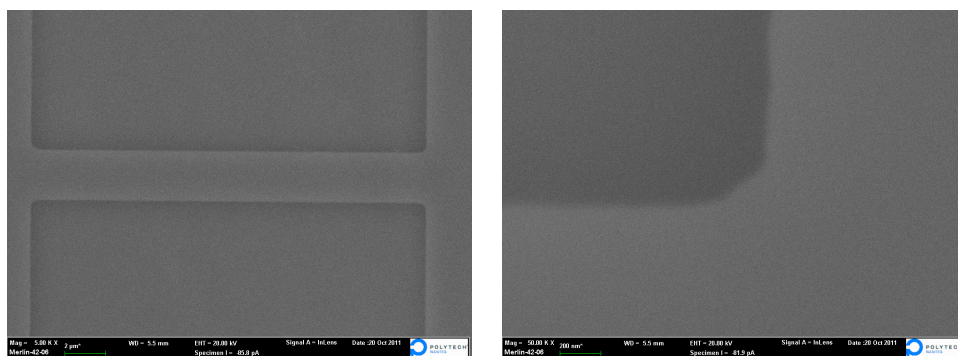
D'autre part, la technique lift-off fonctionne d'une façon opposée au processus classique, car dans la technique classique nous déposons la couche métallique lors du processus technologique mais par contre la technique lift-off nous faisons le processus technologique avant le dépôt de la couche métallique (voir Figure III-3). Et au lieu d'utiliser un photomasque positif (technique classique), nous utilisons un masque négatif. D'autre part,

l'intensité du rayonnement UV est augmentée afin de dégrader les parois des côtés du masque pour faciliter le processus de lift-off.



**Figure III-3. Processus de Lift-Off.** Avec le jaune c'est la couche métallique, en rouge la résine et en bleu l'échantillon

Avec ce processus, Lift-Off, la qualité de gravure est presque parfaite, nous constatons la forme des bords est bien rectiligne et la largeur est bien homogène sur toute la longueur du microruban (voir Figure III-4).



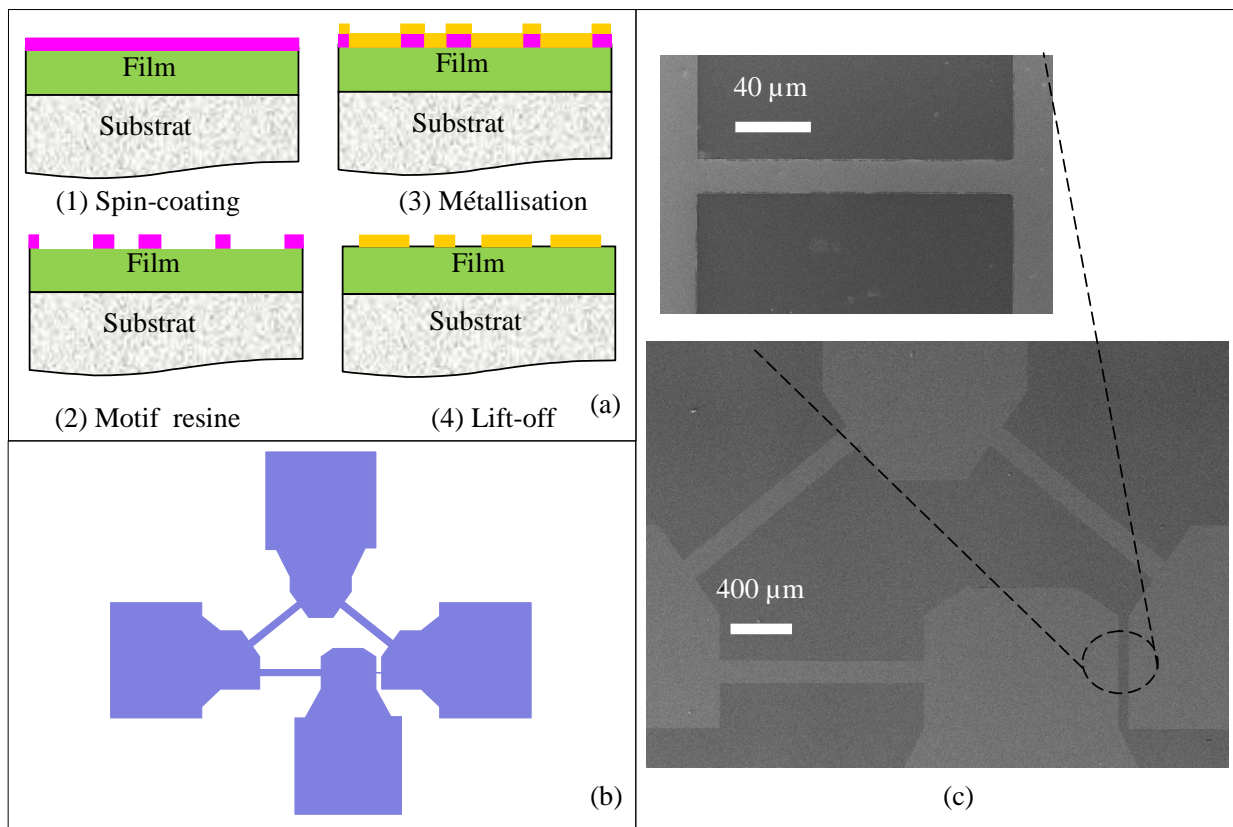
**Figure III-4. Image macroscopique MEB d'un microruban de 2 μm x 20 μm réalisé par Lift-Off.**

### 6.3.2. THALES fabrication du microcapteur

Dans le procédé de fabrication du microcapteur nous avons utilisé deux techniques la lithographie classique et lift-off.

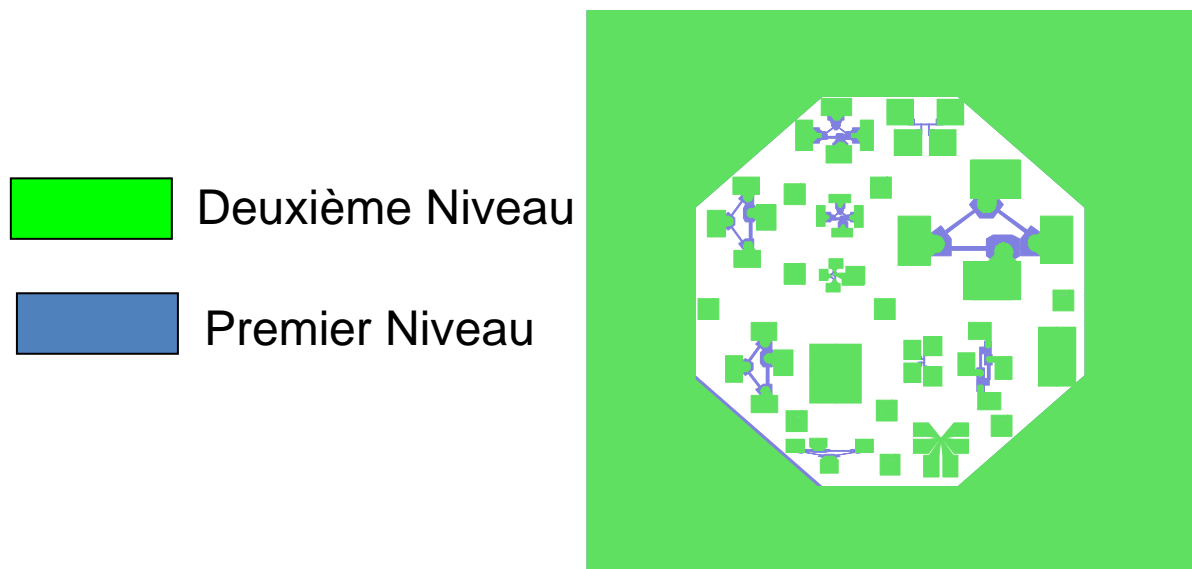
Un processus par lift-off est présenté schématiquement dans la Figure III-5 avec un microcapteur intégré. La réalisation a été faite en collaboration avec le laboratoire *THALES* de paris sous un projet *ANR NanoThermic*. Dans la réalisation nous avons commencé par le nettoyage des échantillons avec l'utilisation d'un bain à ultrasons d'éthanol, puis dans de l'acétone. Le processus photolithographie a été fait en utilisant une couche de résine "*S1818*" déposé par de *spin-coating* à la surface de échantillon à caractériser. Pour le premier niveau des micicapteurs nous avons utilisé une structure bicouche composé, *Ti/Au (10/40nm)* déposé par évaporation, et pour le deuxième niveau nous avons utilisé une structure composé de trois couches, *Ti/Pt/Au (50/75/250nm)* déposé par magnétron Sputtering.

Ce microcapteur montré ci-dessous a été réalisé sur une couche de silice déposée sur un substrat de silicium. La Figure III-5c montre la vue en plan de microscopie électronique à balayage (*MEB*) avec  $20\ \mu\text{m} \times 200\ \mu\text{m}$  de dimensions pour élément thermosensible (microruban).



**Figure III-5. Réalisation d'un microcapteur par lift-off (montre quatre bandes métalliques), avec (a) Processus de fabrication, (b) l'architecture du masque utilisé et (c) une image MEB d'un capteur à pont simple**

Mais pour les capteurs qui ont été réalisés par lift-off sur  $1,2 \mu\text{m}$   $\text{SiO}_2/\text{Si}$  nous avons utilisé pour le premier niveau de capteur une bicouche composée de titane (Ti)  $10 \text{ nm}$  d'or (Au)  $40 \text{ nm}$  (Ti est utilisé comme une couche d'accrochage), ce niveau de masque a été déposé par évaporation. Dans le deuxième niveau de masque nous avons utilisé une triple couche composé Ti  $50 \text{ nm}$  / Pt  $75 \text{ nm}$  / Au  $250 \text{ nm}$ . Le masque que nous avons utilisé est présenté dans la Figure III-6.



*Figure III-6. La troisième génération de masque, Premier niveau: Dépôt par évaporation Ti10 nm /Au 40 nm et Deuxième niveau: Dépôt par sputtering Ti 50 nm / Pt 75 nm / Au 250nm*

Dans la première étape de fabrication, qui consiste à définir la géométrie des motifs, nous allons définir la géométrie et l'architecture de ces composants. Pour nous avons passé par une étape de réalisation des masques adapté au processus de lithographie. Dans la deuxième étape c'est la gravure, dans cette étape allons utiliser un bain en acide pour enlever les zones indésirables.

Plusieurs méthodes de lithographie existent au sein des laboratoires, la première est la lithographie optique et la seconde la lithographie électronique.

### **6.3.3. Les différentes générations des masques**

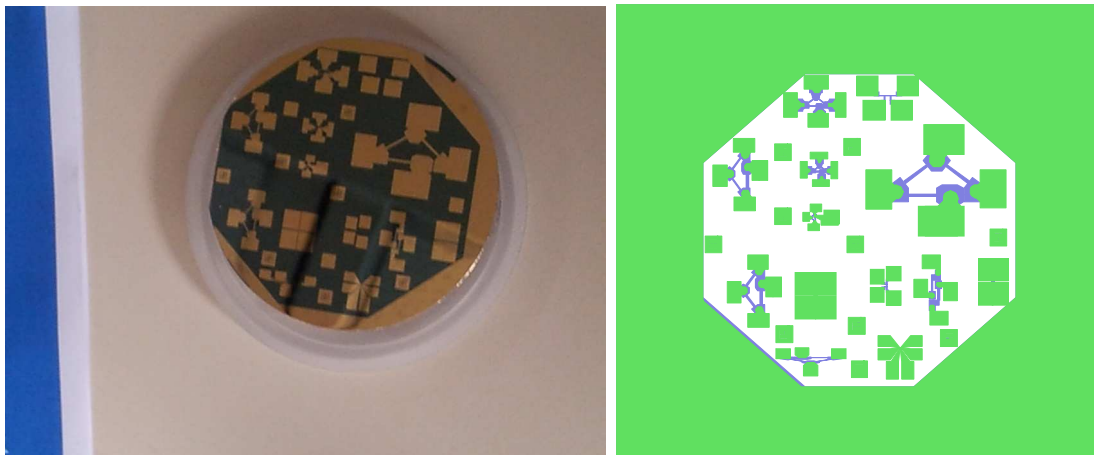
Pour réaliser des microcapteurs à pont intégré sur les échantillons à caractériser, nous avons réalisé trois génération de masques. Dans chaque masque, nous avons dessiné différentes architectures et des différentes tailles. Ces masques ont été réalisés sur quartz pour avoir une résolution inférieure à  $0,5 \mu m$ , par la Boite PHOTOMASK à Paris. Les masques contiennent plusieurs motifs de microcapteur avec différentes géométries. Pour chaque microcapteurs, la largeur du microruban est compris entre 1 et  $20 \mu m$ .



Chaque masque, que nous avons réalisé, contient deux niveaux, le premier niveau correspond à la partie thermosensible (le microcapteur), et le deuxième niveau correspond à l'épaissement des plots de contacts (pour prendre des connectiques).

Dans la première génération de masque, nous l'avons conçu pour la photolithographie classique avec une gravure chimique. En utilisant cette génération de masque nous avons constaté plusieurs problèmes néanmoins sur la vitesse de gravure des micro et macrorubans dans le même motif et aussi sur les différents motifs. Nous avons constaté aussi avec ce processus nous ne pouvons pas descendre à  $2\ \mu m$  avec une résolution de 80 %.

Suite à des problèmes de la lithographie classique nous avons décidé de passer sur le lift-off, car ce processus permet de bien contrôler les dimensions des motifs avec plus de précision. Pour ce processus de réalisation de nous avons réalisé deux masques sur trois pouces, l'un des masques est réalisé avec une zone active de deux pouces (2") et l'autre sur trois pouces (3"). Avec celui de 2" a été conçu pour s'adapter au processus du laboratoire *TALAS III-V Lab* à Paris (voir Figure III-7) et pour celui de 3" pour le laboratoire IETR de Rennes.



*Figure III-7. Exemple de masque et exemple de réalisation sur 2".*

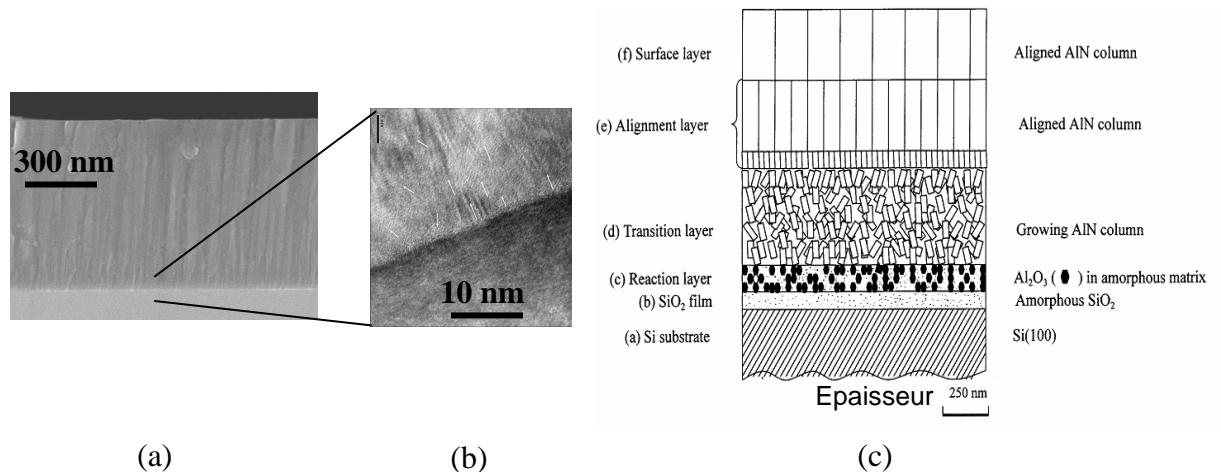
## 6.4. Annexe IV : Influence de structure de l'AlN et de nanostructures de carbone sur les mesures

### 6.4.1. Validité de la notion de $k_i$ pour un film de structure hétérogène

L'AlN en couche mince est un matériau diélectrique qui a une structure colonnaire hétérogène. La structure de l'AlN évolue et s'accroît en cours de croissance passant d'une couche d'interface amorphe à des colonnes organisées d'AlN de meilleure qualité cristalline, comme illustré sur la Figure IV-1. Ainsi, plus on s'éloigne de l'interface, meilleure est la qualité de l'AlN. En outre, la présence d'oxyde d'aluminium aux premiers instants de la croissance a également été observée par B-H Hwang et *al* [1]. Cette couche de transition est principalement due à la présence de l'oxyde natif à l'interface AlN/Si qui va contaminer l'AlN déposé aux premiers instants. Cette contamination de l'AlN va former une couche amorphe d'oxyde d'aluminium ( $Al_2O_3$ ) ou d'AlN amorphe.

Le dépôt de nitrure d'aluminium peut alors être schématisé comme une succession de couches, comme nous les présentons dans la Figure IV- 1 :

- une zone d'interface composée d'une matrice amorphe de silice et de grains dispersés de  $\alpha-Al_2O_3$  de 5 à 10 nm
- une zone de transition, composée de cristaux d'AlN aléatoirement orientés et organisés de manière colonnaire, cette zone correspondant à l'alignement de cristaux AlN entre eux
- une zone colonnaire dans laquelle les colonnes sont constituées de cristaux très orientés apparaît.



**Figure IV- 1. Structure d'une couche mince d'AlN.**

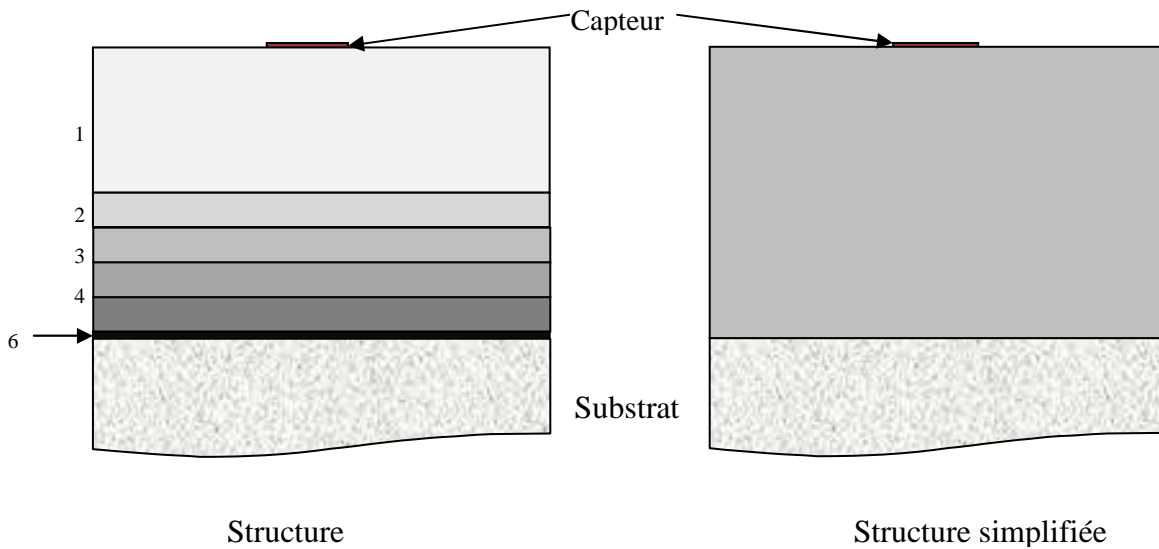
**(a) observation MEB d'une couche de 900 nm, (b) détail de l'interface AlN/Si (observation TEM) et (c) représentation schématique de l'empilement décrivant l'AlN en couche mince**

L'évolution structurelle de l'AlN dans l'épaisseur du film mince peut être modélisée thermiquement par un empilement de couches dont la conductivité thermique augmente au fur et à mesure que l'on s'éloigne de l'interface avec le substrat. La Figure IV- 2a illustre le modèle de couches, au nombre de 6 dans notre cas, utilisé pour représenter thermiquement un film mince d'AlN. La sixième couche correspond à la couche amorphe AlN/substrat, c'est à dire aux premiers instants du dépôt. A partir de cette couche, l'AlN se cristallise progressivement dans la zone de transition, ce qui est représenté par les couches 2 à 5. Enfin, la première couche représente la couche de surface, de bonne qualité cristalline et dont les propriétés sont donc proches de celles de l'AlN massif. Nous appellerons d'ailleurs dans ce qui suit cette couche la « zone massive » de notre film.

Ce modèle à 6 couches étant assez complexe à utiliser pour estimer les propriétés thermiques de chaque couche. Ce problème nous a conduis à utiliser un modèle simplifié, Figure IV- 2b, composé par une seule couche homogène (une couche effective de ces 6 couches) de même épaisseur que l'empilement, et dont la conductivité thermique correspond à la conductivité thermique effective du film mince d'AlN dans son ensemble. Ce modèle simplifié donne accès à deux grandeurs effectifs (conductivité thermique effective). Ainsi avec cette méthode (modèle) nous pouvons avoir la conductivité thermique intrinsèque du l'AlN et leur résistance d'interface, avec des mesures pour différentes épaisseurs.

Les valeurs estimées, la conductivité thermique intrinsèque et la résistance d'interface, avec ce modèle simplifié donne des informations globale de l'ensemble des couches

composant le film d'AlN. Pour savoir plus à quoi représentent la conductivité intrinsèque et la résistance d'interface mesurée véritablement, nous proposons une simulation thermique de ces 6 couches avec la variation au fur à et mesure de l'épaisseur de la couche 1 (comme nous faisons expérimentalement). En parallèle on extrait la conductivité thermique effective au moyen du modèle simplifié, pour chaque variation de l'épaisseur (Tableau IV- 1).



**Figure IV- 2. Modèle d'empilement à 6 couches utilisé pour représenter thermiquement l'évolution structurelle en épaisseur de l'AlN**

Nous avons utilisé ce principe pour étudier théoriquement la structure de l'AlN pour regarder la résolution de cette technique sur l'effet de l'interface et l'effet de la partie massif.

**Tableau IV- 1. Paramètres de la simulation de la structure de l'AlN.**

	N° des Couches	Epaisseur nm	$k$ $W.m^{-1}.K^{-1}$		$l$ nm	$k_f$ estimée $W.m^{-1}.K^{-1}$
	<b>Modèle Réel</b>	1	500-3000		300	<b>Modèle Simplifié</b>
2		50	120			
3		50	90			
4		50	60			
5		50	30			
6		5	2			
Substrat (Si)		500000	148	500000	148	

Nous avons estimé la conductivité thermique effective pour la structure présentée dans la Figure IV-3 pour différente épaisseur de la couche massive (couche 1) du film (nous avons varié l'épaisseur de la couche massive avec, 500 nm, 1000 nm, 2000 nm, et 3000 nm).

A partir de l'utilisation de la relation qui relie la conductivité thermique intrinsèque et la résistance thermique d'interface, cette relation est donnée par [2] :

$$\frac{l}{k_f} = \frac{l}{k_i} + R_C \quad \text{Equation IV- 1}$$

avec,

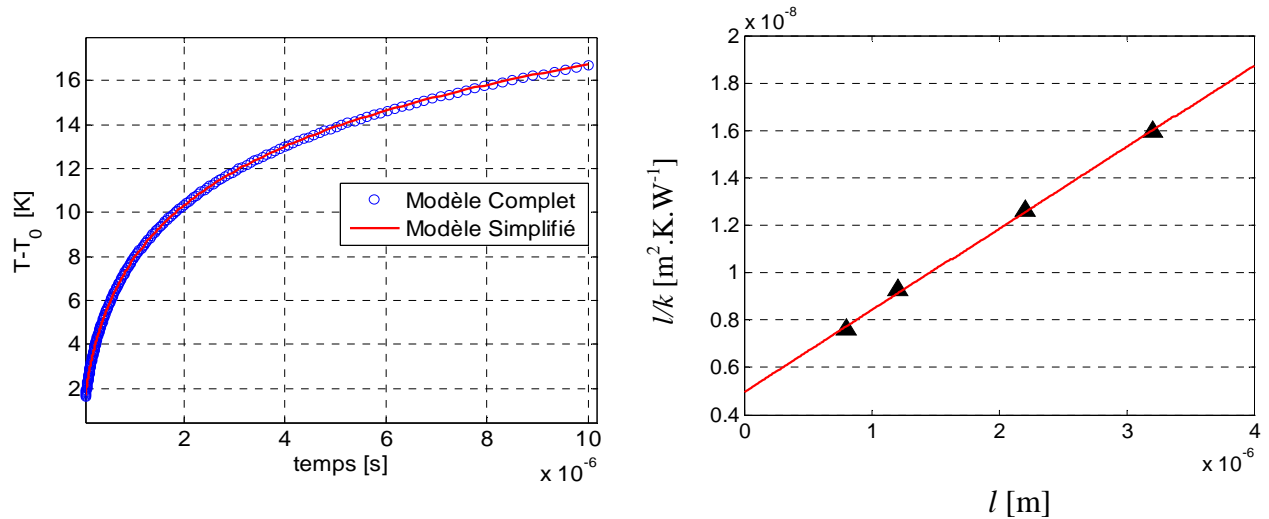
$k_i$ , la conductivité thermique intrinsèque, qui ne dépend pas de l'épaisseur du film  $k_f$ , la conductivité thermique effective,

$R_C$  : la résistance thermique d'interface entre le film et le substrat,

et  $l$ , l'épaisseur du film.

Cette relation considère que la résistance totale d'un film est la somme de la résistance thermique de l'interface et de la résistance de la zone restante (hors d'interface).

L'étude, que nous avons faite, montre l'influence de l'épaisseur sur la mesure de la conductivité thermique effective.



**Figure IV- 3. Exemple d'étude sur le capteur  $20 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$ , avec (a) signal de la structure complet pour un épaisseur de la zone 1 de 3000 nm et le modèle simple de fit et (b) la variation de la résistance globale du film en fonction de leur épaisseur**

Nous constatons à partir de la Figure IV- 3 que la résistance globale du film de l'*AlN* vari linéairement en fonction de l'épaisseur. Nous avons tracé la courbe d'optimisation pour ces 4 épaisseurs, nous avons trouvé un conductivité intrinsèque,  $k_i$ , de  $290 \pm 5 \% W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$  et une résistance thermique d'interface,  $R_c$ , de l'ordre de  $5 \cdot 10^{-9} \pm 10 \% m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$ . Ces valeurs, que nous avons estimée, montrent d'une part que la conductivité intrinsèque correspond parfaitement à la partie massive ( $k_i = 300 W \cdot m^{-1} \cdot K^{-1}$ ) du film, et d'autre part que la résistance thermique d'interface correspond à la somme de résistance de la couche amorphe et celles des couches de transistions ( $R_c = 5,9 \cdot 10^{-9} m^2 \cdot K \cdot W^{-1}$ ).

### 6.4.2. Calcul de la résistance thermique de constriction entre nanostructure et substrat

Dans le cas de l'étude de nanostructures, il est nécessaire d'introduire une caractéristique supplémentaire : la résistance thermique de construction ( $R_{Cons}$ ). Cette résistance est induite par l'effet des courbures des lignes de flux sous l'effet des dimensions. Le développement des lignes de construction est localisé dans une région plus proche de la section de passage, cette section est limitée à un volume inférieur à la profondeur de  $D/2$  (voir Figure IV-4).

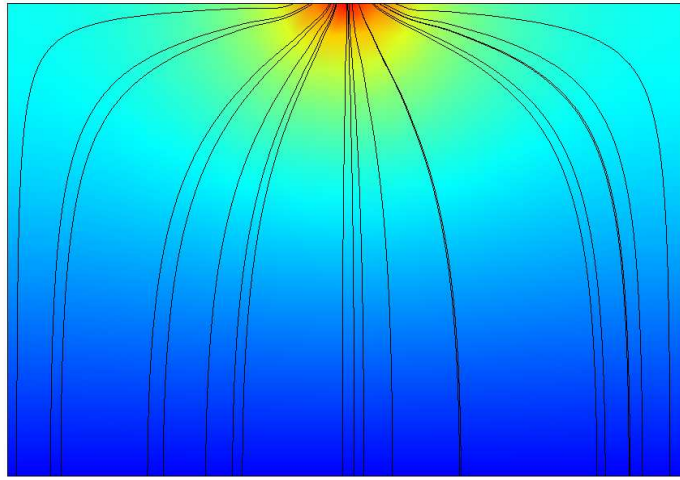


Figure IV- 4. Forme des lignes de construction

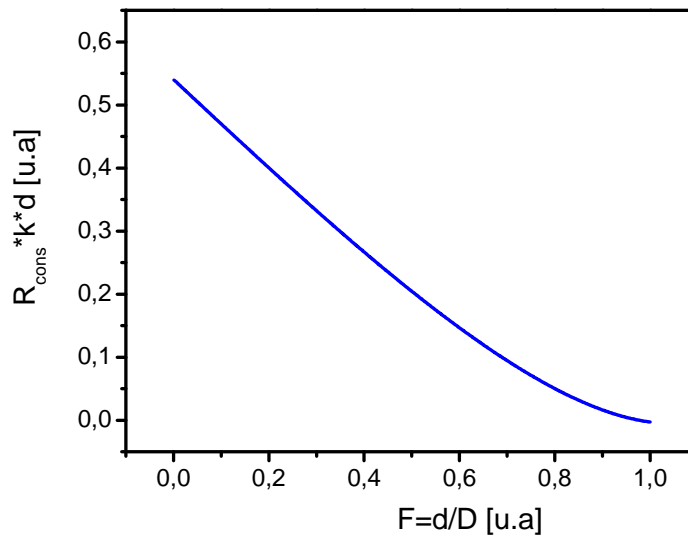
De nombreuses expressions de la résistance de construction existent dans la littérature [3]. Dans le cas d'un contact circulaire et isoflux, elle est calculée analytiquement par :

$$R_{Cons} = \frac{32}{k.d.F.\pi^{3/2}} \sum_{n=1}^{\infty} \frac{J_1^2(\gamma_n.r)}{\gamma_n^3 J_0^2(\gamma_n.r)} \quad \text{Equation IV- 2}$$

avec  $F = d/D$ ,  $\gamma_n$ , et  $J_x$  sont respectivement, le ratio de forme entre la source et la surface totale,  $F$  (fraction solide), les racines positives de l'équation  $J_1(\gamma_n) = 0$ , et la fonction de Bessel de l'ordre 7. Cette résistance peut être approximée selon [4] par :

$$R_{Cons} = \frac{2}{k.d.F.\pi^{1/2}} \left[ \frac{0.47890 - 0.62498.F + 0.11789.F^3}{-0.000071.F^5 + 0.02582.F^7} \right] \quad \text{Equation IV- 3}$$

Dans le cas des nanotubes de carbone l'effet de cette résistance est considérable et va influencer fortement sur la mesure de la conductivité thermique, et ce d'autant plus que la densité du film est faible. L'évolution de cette résistance thermique de construction en fonction de la fraction solide (rapport des surfaces) est présentée dans la Figure IV-5.



*Figure IV- 5. Résistance de construction en fonction de la fraction solide (F)*

### 6.4.3. Référence IV :

[1] : B-H. Hwang, C-S. Chen, H-Y. Lu, et T-C. Hsu, "Growth Mechanism of Reactively Sputtered Aluminum Nitride Thin Films", (2002). *Materials Science and Engineering A* **325**, 380-388.

[2] : S. M. Lee, E.D.G.C., "Heat transport in thin dielectric films", (1997). *Journal of Applied Physics* **81**, 2590-2595.

[3] : K. J. Negus, M. M. Yovanovich, et J. V. Beck, "On the nondimensionalization of constriction resistance for semi-infinite heat flux tubes", (1989). *ASME, Journal Heat Transfer* **111**, 804-807.

[4] : B. T. Draine, E.H.M.L., "Optical properties of interstellar graphite and silicate grains", (1984). *Astrophysical Journal, Part 1* **285**, 89-108.







