



REPUBLIQUE ALGERIENNE DEMOCRATIQUE ET POPULAIRE
MINISTRE DE L'ENSEIGNEMENT SUPERIEUR ET DE LA RECHERCHE SCIENTIFIQUE

UNIVERSITE ABOU-BEKR BELKAID - TLEMCCEN

THÈSE

Présentée à :

FACULTE DES SCIENCES – DEPARTEMENT DE PHYSIQUE

Pour l'obtention du diplôme de :

DOCTORAT EN SCIENCES

Spécialité : Physique Théorique

Par :

Mr GUERMOUDI Amine Abdelkader

Sur le thème

Mesure de la conductivité thermique de matériaux en films minces par la méthode 3-oméga et caractérisation des résistances thermiques interfaciales substrat/film

Soutenue publiquement le 23 Octobre 2021 à Tlemcen devant le jury composé de :

Mr MERAD Abdelkarim	Professeur	Université de Tlemcen	Président
M ^{me} OULD ABBAS Amaria	Professeur	Université de Tlemcen	Directrice de thèse
M ^{me} MANSOUR-MAZARI Halima	Professeur	Université de Sidi Bel Abbès	Examinatrice
Mr LASRI Boumediene	Professeur	Université de Saida	Examinateur
Mr AMARA Sofiane	Professeur	Université de Tlemcen	Examinateur
M ^{me} AMEUR Kheira	MCA	Université de Sidi Bel Abbès	Examinatrice
Mr LASRI Tuami	Professeur	Université de Lille (France)	Invité

*Unité de Recherche Matériaux et Energies Renouvelables (URMER)
BP 119, 13000 Tlemcen - Algérie*

AVERTISSEMENT



Ce document est le fruit d'un long travail approuvé par le jury de soutenance et mis à disposition de l'ensemble de la communauté universitaire élargie.

Il est soumis à la propriété intellectuelle de l'auteur. Ceci implique une obligation de citation et de référencement lors de l'utilisation de ce document.

D'autre part, toute contrefaçon, plagiat, reproduction illicite encourt une poursuite pénale.

Remerciements

Tout d'abord je tiens à remercier ALLAH le tout puissant de m'avoir donné la santé, la volonté, le courage et la patience pour mener à terme ma formation et pourvoir réaliser ce travail de recherche.

Les travaux présentés dans cette thèse ont été mené au sein de l'Institut d'Electronique de Microélectronique et de Nanotechnologie (IEMN), Université de Lille (France).

La présente étude n'aurait pas été possible sans le bienveillant soutien de certaines personnes. Et je ne suis pas non plus capable de dire dans les mots qui conviennent, le rôle qu'elles ont pu jouer à mes côtés pour en arriver là. Cependant, je voudrais les prier d'accueillir ici tous mes sentiments de gratitude qui viennent du fond de mon cœur, en acceptant mes remerciements.

Je tiens à exprimer plus particulièrement ma profonde gratitude à Monsieur Tuami LASRI, responsable du groupe Micro technologie et Instrumentation pour la Caractérisation Thermique et Electromagnétique (MITEC) et Professeur de l'Université de Lille (France), de m'avoir accueilli au sein du groupe. Je remercie profondément pour son professionnalisme, sa disponibilité, sa rigueur scientifique, ses encouragements et ses conseils très précieux tout au long de mes recherches en thèse.

Je remercie également mon encadrante Madame Amaria BENSAOULA Née OULD ABBAS, Professeur à l'Université Abou Bekr Belkaid de Tlemcen, pour sa disponibilité, ses encouragements, ses conseils très précieux, la liberté et la confiance qu'elle m'a accordée tout au long de cette thèse.

J'adresse profondément mes remerciements à Monsieur Pierre-Yves CRESSON, Maître de conférences à l'Université d'Artois, membre du groupe MITEC, pour son aide et les remarques judicieuses qu'il m'a indiquées, pour ses conseils précieux et son écoute qui ont été prépondérants pour la bonne réussite de ce travail.

J'adresse également mes remerciements à Monsieur Abdelkarim MERAD, Professeur à l'Université Abou Bekr Belkaid de Tlemcen, qui m'a fait l'honneur de présider ce jury de thèse.

Je suis très reconnaissant envers Mme Halima MANSOUR-MAZARI, Professeur à l'Université Djillali Liabès de Sidi Bel Abbès, Mr Boumediene LASRI, Professeur à l'Université Dr Tahar Moulay de Saïda, Mr Sofiane AMARA, Professeur à l'Université Abou Bekr Belkaid

de Tlemcen et Mme AMEUR Kheira, MCA à l'Université Djillali Liabès de Sidi Bel Abbès qui ont accepté d'examiner mon travail et de participer au jury.

Tout particulièrement, je tiens à remercier ma famille qui m'a toujours soutenue pendant ce travail.

Enfin, Je remercie également tous les amies, les thésards et les autres membres de l'IEMN, notamment ceux avec qui j'ai eu l'occasion de travailler et les autres simplement pour les bons moments partagés, pour leur soutien et la force de caractère qu'ils m'ont forgée.

Table des matières

Remerciements	i
Table des matières	ii
Liste des figures.....	vi
Liste des tableaux	xiv
Liste des caractères latins et symboles grecs.....	xiiv
INTRODUCTION GENERALE.....	1
CHAPITRE N°1 : Généralités	5
1.1 INTRODUCTION	6
1.2 MODE DE TRANSFERT DE CHALEUR	6
1.2.1 Transfert de chaleur par conduction	7
1.2.2 Transfert de chaleur par convection	8
1.2.3 Transfert de la chaleur par rayonnement	9
1.3 PROPRIETES THERMIQUES DES MATERIAUX	10
1.3.1 La conductivité thermique	10
1.3.2 La chaleur spécifique	11
1.3.3 La diffusivité thermique	11
1.3.4 L'effusivité thermique	12
1.4 LA THEORIE CINETIQUE DES GAZ.....	13
1.5 METHODES DE CARACTERISATION THERMIQUE.....	15
1.5.1 Méthodes en régime transitoire	15
1.5.1.1 Méthode du fil chaud.....	16
1.5.1.2 Méthode laser-flash.....	17
1.5.1.3 Méthode 3-oméga (3ω)	18
1.5.1.4 Microscopie thermique à sonde locale (S _{ThM}).....	20
1.5.2 Méthodes en régime permanent	21
1.5.2.1 Méthode de la plaque chaude gardée.....	22
1.5.2.2 Méthode flux thermique radial (cellule à cylindres coaxiaux)	23
1.5.2.3 Méthode de spectroscopie Raman	24
1.6 CHOIX D'UNE METHODE DE MESURE DES PROPRIETES THERMO PHYSIQUES	26
1.7 CONCLUSION	27
1.8 BIBLIOGRAPHIE	28

CHAPITRE N°2 : Description théorique de la méthode 3-oméga	33
2.1 INTRODUCTION	35
2.2 PRINCIPE DE LA METHODE 3ω	36
2.3 MODELE THERMIQUE « MODELE DE CAHILL »	44
2.3.1 Elément chauffant unidimensionnel (1D).....	44
2.3.1.1 Ligne de chauffe à l'intérieur d'un milieu infini (solution 1D).....	44
2.3.1.2 Ligne de chauffe sur la surface d'un milieu semi-infini	50
2.3.2 Elément chauffant bidimensionnel (solution 2D).....	52
2.3.2.1 Effet de la largeur finie de la ligne de chauffe (solution 2D).....	52
2.3.2.2 Solution approximative	55
2.4 REGIMES THERMIQUES	57
2.4.1 Régime linéaire	58
2.4.2 Régime planaire	64
2.5 CONCLUSION	66
2.6 BIBLIOGRAPHIE	68
CHAPITRE N°3 : Validation du dispositif de mesure basé sur la technique 3-oméga 71	
3.1 INTRODUCTION	73
3.2 DISPOSITIF EXPERIMENTAL	74
3.2.1 Amplificateur à verrouillage (Lock-in amplifier).....	74
3.2.2 Micro-positionneurs (micromanipulateurs).....	75
3.2.3 Circuits à amplificateurs différentiels.....	76
3.2.4 Aménagement du dispositif expérimental et précautions de manipulation	77
3.2.5 Mode de fonctionnement du banc de mesures de la technique 3-oméga	77
3.3 MESURE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE DE MATERIAUX DE REFERENCE	80
3.3.1 Réalisation des éléments chauffants par la technologie photolithographie.....	81
3.3.1.1 Masques contenant les motifs des éléments chauffants	82
3.3.1.2 Procédures de dépôts des lignes de chauffe sur la surface de l'échantillon.....	83
3.4. MESURE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE D'UN SUBSTRAT SEUL ...	89
a) Limites fréquentielles de la zone linéaire :	93
b) Mesure expérimentales et discussions	95
3.4.1 Mesure du coefficient de température en résistance β_h (TCR).....	102
3.4.2 Précision et erreurs de mesure sur la conductivité thermique d'un substrat seul	105
3.5 ANALYSE NUMERIQUE BASEE SUR LA METHODE DES ELEMENTS FINIS (FEM).....	107
3.5.1 Introduction	107
3.5.2 Processus de modélisation et de simulation sous Comsol Multiphysics.....	109
3.5.3 Modélisation et simulation numérique par FEM de la technique 3ω	109

3.5.3.1 Description de la structure en 2D (géométrie et conditions aux limites).....	110
3.5.3.2 Module de transfert thermique	110
3.5.3.3 Source de chaleur	111
3.5.3.4 Maillage de la structure	111
3.5.3.5 Détermination de l'oscillation de la température ΔT_{AC}	113
3.5.3.6 Profil de diffusion thermique en profondeur de l'échantillon.....	116
3.6 VALIDATION DU MODELE DE SIMULATION PAR FEM SOUS COMSOL ..	119
3.7 CONCLUSION	124
3.8 BIBLIOGRAPHIE	126
CHAPITRE N°4 : Caractérisation de la conductivité thermique des couches minces.....	130
4.1 INTRODUCTION	132
4.2 MODELE BICOUCHE (FILM MINCE/SUBSTRAT)	133
4.2.1 Approche différentielle	134
4.2.1.1 Effets de l'addition d'un film mince sur un substrat	136
4.2.1.2 Effet de l'épaisseur du film sur la variation de température.....	138
4.2.1.3 Effet de la largeur de ligne de chauffe sur la variation de température.....	139
4.2.2 L'anisotropie de la conductivité thermique d'un film mince.....	140
4.3 SYSTEME MULTICOUCHEs	141
4.4 MESURE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE D'UN FILM MINCE SUR UN SUBSTRAT	145
4.4.1 Le dépôt chimique en phase vapeur (CVD) des films minces.....	146
4.4.2 Etude d'un système bicouche : dioxyde de silicium/silicium (SiO ₂ /Si).....	147
4.4.2.1 Procédure de dépôt d'un film de SiO ₂ sur la surface d'un substrat de Si	148
4.4.2.2 Mesure de la conductivité thermique d'un film de SiO ₂ sur un substrat de Si.....	151
4.4.3 Etude d'un système bicouche : nitrite de silicium/silicium (Si ₃ N ₄ /Si)	157
4.4.3.1 Procédure de dépôt d'un film de Si ₃ N ₄ sur un substrat de Si	158
4.4.3.2 Mesure de la conductivité thermique d'un film de Si ₃ N ₄ sur un substrat de Si...	159
4.5 SIMULATION NUMERIQUE D'UN MODELE BICOUCHE PAR FEM	164
4.6 CONCLUSION	172
4.7 BIBLIOGRAPHIE	174
CHAPITRE N°5 : Mesure de la conductivité thermique et l'effet interfacial d'un film de parylène-C	181
5.1 INTRODUCTION	183
5.2 LES PARYLENES	184
5.2.1 Propriétés des parylènes	186
5.2.2 Parylène de type C	188

5.2.3 Conductivité thermique des polymères	189
5.3 PREPARATION DES ECHANTILLONS	190
5.3.1 Préparation des substrats	190
<i>a) Nettoyage des substrats</i>	190
<i>b) Promoteur d'adhérence</i>	191
5.3.2 Dépôt d'une couche mince de parylène C	192
<i>a) Bâtis de dépôts CVD pour le parylène C</i>	192
<i>b) Etapes de dépôt du parylène C par CVD</i>	193
5.3.3 Dépôt des lignes de chauffe métalliques	197
5.4 RESULTATS ET DISCUSSION	199
5.4.1 Mesure de la conductivité thermique du film mince et du substrat	199
5.4.2 Détermination de la résistance thermique interfaciale	204
5.5 MODELE NUMERIQUE ET SIMULATION PAR FEM	209
5.6 CONCLUSION	214
5.7 BIBLIOGRAPHIE	216
CONCLUSION GENERALE	224
Annexe A.....	230
Annexe B.....	231
Annexe C.....	233
Annexe D.....	234
Annexe E.....	237
Annexe F.....	242
Résumé	247

Liste des figures

Figure n°	Titre	Page
Chapitre n°1 Généralités		
Figure 1.1	Schéma du transfert thermique provoqué par une différence de température entre deux régions d'un même milieu.	7
Figure 1.2	Exemple d'un transfert de chaleur par convection.	8
Figure 1.3	Schéma descriptif de principe la méthode du fil chaud	16
Figure 1.4	Schéma de principe de la méthode laser-flash.	17
Figure 1.5	Schéma descriptif de la méthode 3-oméga.	19
Figure 1.6	Schéma d'une sonde SThM en contact avec l'échantillon.	20
Figure 1.8	Schéma descriptif de principe généralement utilisé dans la méthode de la plaque chaude gardée	22
Figure 1.9	Schéma du principe de la méthode du flux thermique radial.	23
Figure 1.10	Représentation schématique du principe de fonctionnement du système de mesure de spectrométrie Raman	25
Chapitre n°2 Description théorique de la méthode 3-oméga		
Figure 2.1	Schémas pour deux lignes métalliques, chauffantes, (a) à 2 contacts (pads) et (b) à 4 contacts. Les contacts sont les connexions pour les amenées de courant (I+, I-) et pour les prises de potentiel (V+, V-).	37
Figure 2.2	Ligne de chauffe à 2 contacts déposée sur la surface d'un échantillon.	38
Figure 2.3	L'élévation de la température de l'élément chauffant en fonction du temps.	40
Figure 2.4	Dépendance en température du coefficient β_h pour des résistances fabriquées à partir d'or + chrome, nickel, d'aluminium et de chrome	41
Figure 2.5	Montages électriques utilisés pour la suppression du mode commun, qui permet d'annuler la contribution de la tension en provenance du générateur, a) à pont de Wheatstone et b) à 2 amplificateurs différentielles.	42
Figure 2.6	Géométrie pour le modèle de ligne de chauffe, sous forme cylindrique de longueur l infini et de rayon r , en milieu infini.	45
Figure 2.7	Fonctions de Bessel modifiées de première et deuxième espèce à l'ordre zéro.	48
Figure 2.8	Géométrie de la ligne de chauffe pour un milieu semi-infini (demi-cylindre)	51
Figure 2.9	Schéma décrivant la géométrie de la solution 2D d'un élément chauffant de largeur $2b$ déposé sur un échantillon.	52
Figure 2.10	Représentation schématique de la température à l'intérieur de l'échantillon à un certain point M, qui résulte du flux de chaleur de toutes les sources linéaires unidimensionnelles (1D) qui constituent un élément chauffant de largeur finie.	52

Figure 2.11	Représentation graphique de la solution analytique de Cahill (Eq. 2.43). Composantes en phase et en quadrature de phase des variations de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$. ($P_{rms}/l = 1$ W/m, $b = 10$ μ m, $k = 1$ W/m.K et la diffusivité $D = 1$ mm ² /s)	55
Figure 2.12	Les composantes en phase et en quadrature de phase des variations de la température en fonction de la fréquence d'excitation thermique 2ω ainsi que la Lpt. Pour $P_{rms}/l = 1$ W/m, $b = 10\mu$ m, $k = 1$ W/m.k et la diffusivité $D = 1$ mm ² /s	56
Figure 2.13	Schéma d'une coupe transversale de l'échantillon, distinction de différents régimes en fonction de l'épaisseur de substrat et de la demi-largeur de la ligne métallique	58
Figure 2.14	Comparaison entre la solution analytique de Cahill et la solution approximative (linéaire) de la variation de la température sur une large bande fréquentielle. ($P_{rms}/l = 1.4$ W/m, $b = 5\mu$ m et la diffusivité $D = 8.12$ e-7 m ² /s)	59
Figure 2.15	Une comparaison de la solution analytique de Cahill et sa solution approximative de la 3ème harmonique de la tension en fonction de la fréquence d'excitation 2ω . ($P_{rms}/l = 1.4$ W/m, $V_0 = 1$ V, $b = 5\mu$ m et la diffusivité $D = 8.12$ e-7 m ² /s)	60
Figure 2.16	Variation des limites de la zone linéaire en fonction de largeur de la ligne métallique pour un échantillon SiO ₂ d'épaisseur $d_s = 750$ μ m et une puissance linéaire $P_{rms} = 0.5$ W/m.	63
Figure 2.17	Variation de la zone linéaire en fonction de l'épaisseur de SiO ₂ . Pour un substrat d'épaisseur 45 μ m il y a une inversion de la limite fréquentielle minimale et il est en fait une limite maximale de la zone linéaire.	64
Figure 2.18	Comparaison de la solution analytique du modèle de Cahill par rapport aux solutions simplifiées de la variation de la température obtenues en régime linéaire et en régime planaire. ($P_{rms}/l = 1$ W/m, $b = 15$ μ m et la diffusivité $D = 1e-7$ m ² /s)	66
Chapitre n°3 Validation du dispositif de mesure basé sur la technique 3-oméga		
Figure 3.1	Amplificateur à verrouillage modèle Lock-in SR830 (affiche simultanément la phase et l'amplitude du signal).	75
Figure 3.2	Photographie d'un micro-positionneur à 3 axes (à gauche) et une boîte de microsondes (à droite) utilisés dans le banc de mesure 3-oméga.	75
Figure 3.3	a) Schéma pour le circuit utilisé dans le banc de mesure 3-oméga et b) carte d'acquisition (d'amplificateur différentiel, résistance variable,)	76
Figure 3.4	Photographie d'ensemble du banc 3-omega permettant la mesure de la conductivité thermique de matériaux.	78
Figure 3.5	a) Photographie d'un microscope optique pour pouvoir observer/connecter les 4 points à travers les 4 micro-positionneurs (type Cascade Micro Tech DPP105-AI-S) b) Zoom au microscope optique pour la mise en contact d'une ligne à deux points par 4 microsondes.	79
Figure 3.6	Schématisme du masque optique pour le dépôt des lignes métalliques sur la surface de l'échantillon sous test (zones marquées en rouge). a) masque utilisé lors de dépôt ligne métallique sur le substrat flexible en	82

	Kapton et b) masque utilisé lors de dépôt des lignes de chauffes dans la majorité des échantillons étudiés.	
Figure 3.7	Images réalisées grâce un microscope optique de l'élément chauffant sur le substrat (Kapton) avant le dépôt de la couche métallique (d'Au/Cr).b) Zoom de l'extrémité de la ligne de chauffe.	85
Figure 3.8	a) Schéma et b) photographie d'une chambre d'évaporation du métal dans laquelle s'effectue le dépôt de couches minces métalliques (or) par évaporation.	86
Figure 3.9	Vue au microscope optique des lignes de chauffe déposées sur la surface d'un substrat après le dépôt de la couche métallique a) un substrat flexible (Kapton) avec des lignes à 2 pads et b) un substrat de GaAs avec des lignes à 4 pads.	87
Figure 3.10	Vue par une microscopie électronique à balayage (MEB) d'une ligne de chauffe mal formée (discontinue).	88
Figure 3.11	Procédé de fabrication des lignes de chauffe sur la surface de l'échantillon par la technique de lithographie optique. La couleur bleue représente le substrat, le rouge et le jaune sont la couche d'accroche en chrome et la couche en or, respectivement.	88
Figure 3.12	Photographie d'un substrat de Borosilicate (BrSiO ₂).	90
Figure 3.13	Photographie d'un film de Kapton [®] MT.	91
Figure 3.14	Photographie par microscope optique des lignes métalliques déposées par photolithographie à la surface de Kapton [®] MT.	91
Figure 3.15	Réseau cristallin du GaAs (blende de zinc).	92
Figure 3.16	Photographie d'un wafer, de 2 pouces de diamètre, d'Arséniure de gallium GaAs (100).	93
Figure 3.17	Résultats expérimentaux de la 3 ^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ (composantes en phase et en quadrature de phase) en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 1 (pour différentes puissances).	96
Figure 3.18	Résultats expérimentaux de variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ (composantes en phase) pour la ligne 5 (pour différentes puissances).	96
Figure 3.19	Résultats expérimentaux de la composantes en phase de la 3 ^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 9 (pour différentes puissances).	97
Figure 3.20	Composantes en phase et en quadrature de phase de la 3 ^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 2. (Pour le BrSiO ₂)	97
Figure 3.21	Composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 3. (pour le BrSiO ₂)	98
Figure 3.22	Composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 4. (pour le Kapton)	98
Figure 3.23	Composantes en phase et en quadrature de phase de la 3 ^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 6. (pour le Kapton)	98

Figure 3. 24	Composantes en phase et en quadrature de phase de la 3 ^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 7 (avec $P_{rms} = 3.8422$ W/m). (pour le GaAs)	99
Figure 3.25	Comparaison entre les résultats obtenus expérimentalement et la simulation analytique de Cahill. Les composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 8 (avec $P_{rms} = 5.9164$ W/m), (pour le GaAs).	99
Figure 3.26	a) Photographie d'une plaque chauffante b) Photographie de l'échantillon au-dessus de la plaque chauffante avec 2 fils de thermocouple pour la mesure de TCR.	102
Figure 3.27	Thermomètre à balayage pour la mesure la température à l'aide de thermocouples (type Digi-Sense).	103
Figure 3.28	Mesure de la variation de la température d'une ligne de chauffe de largeur $2b = 20$ μm et de longueur $l = 3$ mm déposée sur un substrat de BrSiO_2 ($R_0 = 10.034$ Ω et $\beta_h = 2.919 \times 10^{-3}$ $^\circ\text{C}^{-1}$).	103
Figure 3.29	Mesure du TCR pour la ligne 4 de largeur $2b = 4$ μm et de longueur $l = 2.4$ mm déposée sur un substrat flexible de Kapton ($R_0 = 31.927$ Ω et $\beta_h = 3.194 \times 10^{-3}$ $^\circ\text{C}^{-1}$).	103
Figure 3.30	Mesure du TCR pour une ligne métallique de largeur $2b = 10$ μm et de longueur $l = 5$ mm déposée sur un substrat de GaAs. ($R_0 = 49.541$ Ω et $\beta_h = 3.082 \times 10^{-3}$ $^\circ\text{C}^{-1}$).	104
Figure 3.31	Géométrie en 2D de la structure simulée par FEM qui contient un élément chauffant de largeur $2b$ au-dessus d'un échantillon d'épaisseur d_s (Sous conditions aux limites).	110
Figure 3.32	a) Maillage 2D utilisé au cours de la simulation par la FEM sous Comsol de la ligne 5.a déposée sur Kapton, b) représentation de la qualité du maillage utilisé pendant la simulation par la FEM.	112
Figure 3.33	Evolution temporelle de la température $\Delta T_{AC}(t)$ de la ligne 5.a déposée sur un film de Kapton pour une fréquence $f = 35$ Hz obtenue par la simulation FEM.	113
Figure 3.34	Le tracé de l'évolution temporelle de la température $\Delta T_{AC}(t)$, de la ligne 5.a, pour une fréquence $f = 35$ Hz obtenue par la simulation FEM (en échelle temporelle logarithmique).	114
Figure 3.35	Représentation du déphasage de l'oscillation de la température par rapport à la puissance thermique $P(t)$ en fonction du temps t (cas de la ligne 5.a pour une fréquence $f = 35$ Hz à une température ambiante T_0).	115
Figure 3.36	Exemple des points aléatoires qui permettent de déterminer les paramètres A_T et ϕ_T (Ligne 5.a).	116
Figure 3.37	La diffusion de l'onde thermique au sein de l'échantillon pour différentes fréquences dans le cas de la ligne 4 déposée sur du Kapton.	117
Figure 3.38	a) Profil de température obtenu par la simulation en 2D sous Comsol de la ligne 5.a déposée sur un substrat de Kapton (fréquence $f = 35$ Hz) et b) Zoom plus près de la ligne de chauffe	118
Figure 3.39	Profil de température obtenu par la simulation en 3D sous Comsol de la ligne 5.a déposée sur un substrat de Kapton (fréquence $f = 35$ Hz)	119

Figure 3.40	Comparaison entre les résultats expérimentaux, théorique obtenus par le modèle analytique de Cahill et la simulation par FEM sous Comsol. Les composantes (en phase et en quadrature de phase) de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 2 et la ligne 3 (substrat de Br SiO ₂).	121
Figure 3.41	Comparaison entre les résultats expérimentaux, théorique obtenus par le modèle analytique de Cahill et la simulation par FEM sous Comsol. Les composantes (en phase et en quadrature de phase) de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes 4 et 5.a (Substrat flexible de Kapton)	122
Figure 3.42	Comparaison entre les résultats expérimentaux, théorique obtenus par le modèle analytique de Cahill et la simulation par FEM sous Comsol. Les composantes (en phase et en quadrature de phase) de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes 7 et 8 (Substrat de GaAs).	123
Chapitre n°4 Caractérisation de la conductivité thermique des couches minces		
Figure 4.1	Géométrie d'une ligne de chauffe déposée sur un système composé d'un film mince sur un substrat.	133
Figure 4.2	Modèle de flux thermique à l'intérieur du film mince lorsque la largeur de l'élément chauffant est beaucoup plus petite que l'épaisseur du film ($2b \ll d_f$) et b) le cas où $2b \gg d_f$.	134
Figure 4.3	Représentation des variations de la température ΔT_{s+f} et ΔT_s en fonction de la fréquence d'excitation thermique 2ω . (pour $P_{rms} = 1$ W/m, $d_f = 100$ nm et $2b = 4$ μ m).	137
Figure 4.4	Représentation de la composante en phase de la variation de la température du système ΔT_{s+f} et celle de substrat seul ΔT_s en fonction de la fréquence d'excitation thermique 2ω . (pour $P_{rms} = 1$ W/m, $d_f = 100, 200$ et 400 nm et $b = 2$ μ m).	138
Figure 4.5	Représentation des composantes en phase de la variation de la température du système ΔT_{s+f} et celle de substrat seul ΔT_s en fonction de la fréquence d'excitation thermique 2ω . (pour $P_{rms} = 3$ W/m, $d_f = 200$ nm et $2b = 4, 10$ et 20 μ m).	139
Figure 4.6	Schéma illustrant les notations introduites dans le modèle multicouches proposé par Borca-Tascui et al.	141
Figure 4.7	Comparaisons des variations de température en fonction de la fréquence angulaire 2ω , entre les trois modèles analytiques proposés par Borca-Tascui et ses collaborateurs.	143
Figure 4.8	Comparaisons des variations de température en fonction de la fréquence angulaire 2ω , entre les trois modèles analytiques proposés par T. Borca et celui proposé par D. G. Cahill. (pour $2b = 4$ μ m, $P_{rms} = 1$ W/m et $d_f = 100$ nm dans le cas de SiO ₂ /Si)	144
Figure 4.9	Comparaisons des variations de température en fonction de la fréquence angulaire 2ω , entre les trois modèles analytiques proposés par T. Borca et	144

	celui proposé par D. G. Cahill. (pour $2b = 4 \mu\text{m}$, $P_{rms} = 1 \text{ W/m}$ et $d_f = 100 \text{ nm}$)	
Figure 4.10	a) Photographie d'un réacteur plasma disponible dans la salle blanche. b) Schéma d'un réacteur plasma, à mur chaud, comportant 3 zones de chauffe dans lequel on réalise un plasma à l'aide de la source radiofréquence	147
Figure 4.11	Structure microscopique d'oxyde de silicium. (Les boules rouges et blanches représentent respectivement les atomes de silicium et d'oxygène)	148
Figure 4.12	Une image par microscope électronique à balayage (MEB) d'une structure composée d'un film d'oxyde de silicium déposé sur la surface de silicium par LPCVD.	150
Figure 4.13	Composantes en phase et en quadrature de phase de la troisième harmonique de la tension $V_{3\omega}$ mesurée en fonction de la fréquence angulaire (2ω). (pour les lignes 11, 12 et 13).	152
Figure 4.14	Comparaisons des résultats obtenus expérimentalement et ceux issues du modèle analytique de D. G. Cahill de la variation de la température $\Delta T_{(s+f)}$ (à gauche), et des zooms dans la zone linéaire (à droite). (pour les lignes de chauffe 11, 12 et 13).	154
Figure 4.15	Vue latérale d'une interface de la structure SiO_2/Si (100) (les boules rouges et jaunes représentent respectivement les atomes d'oxygène et de silicium)	156
Figure 4.16	Structure microscopique du nitrure de silicium	157
Figure 4.17	Une image par microscope électronique à balayage (MEB) d'une structure composée d'un film de nitrure de silicium déposé sur la surface de silicium par LPCVD.	158
Figure 4.18	Composantes en phase et en quadrature de phase de troisième harmonique de la tension mesurée en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes 14, 15 et 16.	160
Figure 4.19	Comparaisons des résultats obtenus expérimentalement et ceux issues du modèle de D. G. Cahill de la variation de la température $\Delta T_{(s+f)}$ (à gauche), et des zooms dans la zone linéaire (à droite). (pour les lignes 14, 15 et 16)	162
Figure 4.20	Vue latérale d'une interface de la structure $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$ (100). (Les boules bleues et rouges représentent respectivement les atomes de silicium et d'azote)	164
Figure 4.21	a) Maillage 2D de structure, composée d'une ligne déposée sur l'échantillon $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$, utilisé au cours de la simulation par la FEM sous Comsol pour la ligne 14 et b) Zoom de l'extrémité de la ligne de chauffe/ $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$.	165
Figure 4.22	Composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température ΔT_{s+f} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes pour les lignes 11, 12 et 13 (SiO_2/Si).	168
Figure 4.23	Composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes 14, 15 et 16 ($\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$).	169

Figure 4.24	a) Profil de température obtenu par la simulation FEM en 2D sous Comsol de la ligne 11 déposée sur l'échantillon SiO ₂ /Si et b) Zoom plus près de l'extrémité ligne de chauffe/SiO ₂ /Si. (pour une fréquence $f = 1200$ Hz)	171
Figure 4.25	a) Profil de température obtenu par la simulation FEM en 2D sous Comsol de la ligne 14 déposée sur l'échantillon Si ₃ N ₄ /Si et b) Zoom plus près de l'extrémité ligne de chauffe Si ₃ N ₄ /Si. (pour une fréquence $f = 1200$ Hz)	171
Chapitre n°5 Mesure de la conductivité thermique et l'effet interfacial d'un film de parylène-C		
Figure 5.1	Différents domaines dans lesquels les parylènes sont intégrés.	185
Figure 5.2	Représentation d'une molécule et formule chimique du (n) monomère de parylène C	188
Figure 5.3	Représentation de la structure d'une molécule de silane A174.	191
Figure 5.4	Photographique du bâti COMELEC (modèle C20S) dédié au dépôt de parylène	193
Figure 5.5	Photographie des dimères de parylène C sous leur forme commerciale, poudre blanche, conservés dans une boîte en plastique.	193
Figure 5.6	Epaisseur du dépôt de parylène en fonction de la masse de dimère initiale du parylène C	194
Figure 5.7	a) Schéma de la structure de dépôt de parylène C sur un substrat de borosilicate à travers une couche d'adhésion (Silane A174). b) Photographique d'un film de parylène C (sans couche d'adhésion).	195
Figure 5.8	Représentation photographique du bâti de dépôt de parylène ainsi que les différentes procédures du dépôt de parylène C	196
Figure 5.10	Topographies du parylène C par AFM pour les épaisseurs 208 nm et 760 nm	197
Figure 5.11	Vue par microscope électronique à balayage (MEB) de l'élément chauffant déposé sur la surface d'un film de parylène C/substrat.	198
Figure 5.12	a) Image MEB d'une structure composée d'un micro-capteur thermique déposé sur la surface de l'échantillon (film de parylène C / substrat de borosilicate) et (b) un zoom autour de l'élément chauffant.	198
Figure 5.13	Les composantes en phase et en quadrature de phase de la 3 ^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ mesurées, pour un film mince de parylène C de 210 nm, en fonction du logarithme de la fréquence angulaire 2ω (dans une plage fréquentielle comprise entre 1,8 Hz et 30 KHz).	201
Figure 5.14	Composante réelle de la 3 ^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega(s+f)}$ en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes de chauffe 17, 20 et 23.	202
Figure 5.15	Comparaisons des résultats obtenus expérimentalement aux valeurs issues du modèle analytique de D. G. Cahill pour la de la variation de la température $\Delta T_{(s+f)}$ (à gauche), et zooms sur la composante en phase (partie réelle) de la variation de la température dans la zone linéaire (à droite) (pour les éléments de chauffe 18, 21 et 24).	203
Figure 5.16	Schéma de l'échantillon constitué d'un empilement de couches : une ligne de chauffe métallique, un film mince de parylène C et un substrat borosilicate.	204

Figure 5.17	a) La conductivité thermique effective k_{eff} déterminée expérimentalement pour des films de parylène C/substrats en borosilicate en fonction de l'épaisseur du film et b) Les résistances thermiques effectives des films de parylène C	206
Figure 5. 18	Maillage de la structure simulée par FEM. Les zones marquées en couleur violette représentent les résistances thermiques de contact ligne/film et film/substrat.	210
Figure 5. 19	Composantes en phase et déphasées des oscillations de température (à gauche), obtenues par différentes méthodes (FEM et mesure), pour les lignes 18, 21 et 24 en fonction de $\text{Ln}(2\omega)$, à droite évolution des résistances thermiques.	211
Figure 5.20	Représentation de la résistance thermique effective des couches de parylène en fonction de l'épaisseur du film obtenue par différentes méthodes (FEM et mesure).	213

Liste des tableaux

Tableau N°	Titre	Page
Chapitre n°2	Description théorique de la méthode 3-oméga	
Tableau 2.1	Propriétés (densité, chaleur spécifique et conductivité thermique) du SiO ₂ .	62
Chapitre n°3	Validation du dispositif de mesure basé sur la technique 3-oméga	
Tableau 3.1	Bornes du régime thermique linéaire pour chaque ligne de chauffe déposées à la surface du BrSiO ₂ .	94
Tableau 3.2	Bornes du régime thermique linéaire pour chaque ligne de chauffe déposées à la surface du Kapton.	94
Tableau 3.3	Bornes du régime thermique linéaire pour chaque ligne de chauffe déposées à la surface de GaAs.	94
Tableau 3.4	Caractéristiques des lignes de chauffe déposées sur les échantillons sélectionnés la technique de lithographie optique.	95
Tableau 3.5	Résultats expérimentaux de la conductivité thermique du borosilicate, du Kapton et de l'arséniure de galium obtenue par la méthode de la pente.	101
Tableau 3.6	Résistivité électrique de quelques lignes métalliques déposées sur la surface des échantillons sous test.	105
Tableau 3.7	Caractéristiques des lignes métalliques retenues pour l'étude comparative.	120
Tableau 3.8	Caractéristiques et propriétés des échantillons de référence (BrSiO ₂ , Kapton et GaAs).	120
Chapitre n°4	Caractérisation de la conductivité thermique des couches minces	
Tableau 4.1	Paramètre utilisés dans la simulation d'une couche de SiO ₂ sur le Si.	137
Tableau 4.2	Caractéristiques des lignes de chauffe déposées sur le SiO ₂ /Si par la technique de lithographie optique.	150
Tableau 4.3	Conductivité thermique du substrat de silicium k_{Si} obtenues expérimentalement par la méthode de la pente (pour lignes 11, 12 et 13).	152
Tableau 4.4	Conductivité thermique du substrat du film d'oxyde de silicium k_{SiO_2} obtenues expérimentalement par la méthode différentielle	155
Tableau 4.5	Caractéristiques des lignes de chauffe déposées sur le Si ₃ N ₄ /Si.	159
Tableau 4.6	Conductivités thermiques mesurées du substrat de silicium k_{Si} ainsi que le film du nitrure de silicium $k_{Si_3N_4}$ pour les lignes de chauffe testées.	161
Tableau 4.7	Caractéristiques des lignes métalliques déposées sur la surface des échantillons SiO ₂ /Si et Si ₃ N ₄ /Si.	166
Tableau 4.8	Caractéristiques des films SiO ₂ et Si ₃ N ₄ .	166
Chapitre n°5	Mesure de la conductivité thermique et l'effet interfacial d'un film de parylène-C	
Tableau 5.1	Comparaison des propriétés physiques des parylènes les plus utilisés	187
Tableau 5.2	Caractéristiques des lignes métalliques déposées sur les échantillons.	199
Tableau 5.3	Conductivité thermique des films de parylènes C déposés sur la surface d'un substrat BrSiO ₂ mesurée à température ambiante.	200
Tableau 5.4	Résistances effectives de film de parylène C, pour les lignes 18, 21 et 24, obtenues expérimentalement et par simulation FEM.	212

Symbole	Désignation	Unités
ΔT_{AC}	Oscillation de la température due à la puissance d'oscillation P_{AC} .	$^{\circ}\text{C}$
ΔT_{DC}	Elévation de température (due à P_{rms}) par rapport à la température initiale T_0 .	$^{\circ}\text{C}$
$\Delta T_{AC,x}$	Composante en phase de la variation de température (in-phase)	$^{\circ}\text{C}$
$\Delta T_{AC,y}$	Composante en quadrature de phase de la variation de température (out-of-phase)	$^{\circ}\text{C}$
ΔT_f	Oscillation (ou variation) de la température de film	$^{\circ}\text{C}$
ΔT_s	Oscillation (ou variation) de la température de substrat seul	$^{\circ}\text{C}$
ΔT_{s+f}	Oscillation (ou variation) de la température du système (substrat + film)	$^{\circ}\text{C}$
C_p	Capacité calorifique à pression constant	$\text{J.kg}^{-1}.\text{K}^{-1}$
I_0	Intensité de courant	A
P_{AC}	Puissance rms en régime alternatif AC	W
P_{DC}	Puissance rms en régime continu DC	W
R_0	Résistance initiale (à température ambiante T_0)	Ω
R_f	Résistance thermique du film	m^2kW^{-1}
T_0	Température ambiante	$^{\circ}\text{C}$
$V_{3\omega(s+f)}$	3 ^{ème} harmonique de la tension totale (substrat+film)	V
V_0	Tension initiale	V
$V_{3\omega}$	3 ^{ème} harmonique de la tension	V
d_f	Epaisseur du film	m
d_h	Epaisseur de la ligne de chauffe	m
d_s	Epaisseur du substrat	m
k_f	Conductivité thermique de film	W/mK
k_s	Conductivité thermique de substrat	W/mK
$q_{(2\omega)}$	Onde thermique diffusée dans l'échantillon	m^{-1}
β_h	Coefficient de Température en Résistance (TCR)	C^{-1}
ϕ	Déphasage entre la puissance P_{AC} et de la température et l'oscillation de la température ΔT_{AC}	rad
2ω	Fréquence angulaire	rad.s^{-1}
C_p	Capacité calorifique volumique à pression constante	J/kgK
P_{rms}/l	la puissance efficace rms par unité de longueur (dissipée par la ligne)	W/m
δ	Longueur de Pénétration Thermique (Lpt)	m
ξ	Constante approximativement égale à 0.923	
A	Section transversale	m^2
D	Diffusivité thermique exprimé	m^2/s
$I(t)$	Courant sinusoïdal	A
$Q(t)$	La puissance dissipée par effet Joule	W
R	Résistance	Ω
V	Tension aux bornes de la résistance de chauffe	V
$2b$	Larguer de la ligne de chauffe	m
l	Longueur de la ligne de chauffe	m
ρ	Résistivité	$\Omega.\text{m}$

INTRODUCTION GENERALE

INTRODUCTION GENERALE

Ces dernières années, les matériaux déposés en couches minces suscitent un grand intérêt tant dans le domaine académique que dans le domaine industriel où les applications sont nombreuses (en micro et nanoélectronique, photovoltaïque, MEMS, ...). Aussi, la connaissance des propriétés thermiques, en particulier la conductivité thermique, des films minces ainsi que des structures multicouches en film mince sont essentielles pour optimiser les performances des dispositifs réalisés. Beaucoup d'études concernant la mesure de la conductivité thermique de matériaux massifs ont été réalisées et de nombreuses valeurs sont donc disponibles dans la littérature. Par contre, il existe relativement peu de données pour les matériaux en films minces qui présentent une conductivité thermique différente de celle du même matériau en massif. Cette différence est principalement liée aux effets de taille et aux imperfections de structure. Un paramètre important qui entre en jeu dans la détermination de la conductivité thermique d'un film mince est la résistance thermique de contact. Celle-ci est généralement utilisée pour décrire la capacité de conduction thermique d'une interface dans différents matériaux. En réalité, il n'y a que peu de matériaux dont la résistance thermique interfaciale est connue car elle est intrinsèquement difficile à caractériser. En fait, elle dépend fortement du contact mécanique des matériaux à l'interface et des propriétés des matériaux (la microstructure, la nature de l'interface, la pression de contact et la morphologie).

La caractérisation thermique (conductivité et résistance de contact), difficile du fait des dimensions mises en jeu et de l'empilement de couches, est confrontée aux pertes de chaleur (par rayonnement thermique et par convection thermique). De nombreuses techniques de mesure de la conductivité thermique de matériaux en films minces ont été présentées dans la littérature [Zha 1993, Cah 1990, Pon 1988] nécessitant chacune des conditions particulières, adaptées à la nature des matériaux analysés. Globalement, deux techniques sont employées, le mode permanent (stationnaire) où la source de chaleur reste constante au cours du temps (méthode statique) et le mode transitoire, où la source de chaleur peut être périodique (impulsion, méthode dynamique). Cette seconde méthode, se différencie du mode stationnaire par la dépendance temporelle de la source de chaleur appliquée. La technique stationnaire est une technique de mesure directe de la conductivité thermique. Quant à la technique transitoire, elle est basée sur des modèles de la diffusion thermique dans les matériaux.

Dans cette thèse nous nous intéressons à une méthode dite « méthode 3ω », initialement introduite par David G. Cahill [Cah 1990]. Elle présente plusieurs avantages par rapport aux autres méthodes transitoires. Contrairement à la plupart des autres techniques de mesure de conductivité thermique (fils chauds, plaques chaude gardée ...), repose sur une approche fréquentielle. Les travaux présentés dans ce manuscrit ont été effectués dans le groupe de recherche MITEC de l'IEMN (Institut d'Electronique de Microélectronique et de Nanotechnologie) à Lille (France).

Ce travail est divisé en cinq chapitres. Dans le premier, nous présentons tout d'abord une étude bibliographique dédiée aux modes de transfert de l'énergie thermique, aux propriétés thermiques et thermophysiques qui caractérisent un matériau et quelques notions de la théorie cinétique des gaz. Nous procédons également à une brève description des diverses méthodes de mesure des propriétés thermiques, notamment de la conductivité thermique. Les méthodes proposées sont classées selon deux principaux régimes, le régime transitoire et le régime permanent. Enfin, les critères qu'il faut prendre en considération avant de choisir telle ou telle méthode pour effectuer une mesure correcte et précise sont présentés.

Le deuxième chapitre est consacré à une description détaillée de la technique 3-oméga. Nous présentons d'abord le principe de la version originelle proposée par D. G. Cahill [Cah 1990] pour la caractérisation des matériaux diélectriques solides. Ensuite, le modèle thermique ainsi que les solutions analytiques associées sont décrits. Nous rappelons le concept de longueur de pénétration thermique, notion essentielle pour appréhender la méthode, qui joue un rôle important pour distinguer les différents régimes thermiques de fonctionnement afin d'estimer la conductivité thermique du matériau sous test.

Le dispositif et le protocole expérimental pour la caractérisation de la conductivité thermique de matériaux par la méthode 3-oméga sont présentés dans la première partie du troisième chapitre. Dans la seconde partie de ce dernier, nous dévoilons les différentes étapes de réalisation, par la technique de photolithographie optique, des lignes de chauffe métalliques (en or) sur l'échantillon à caractériser. Puis, nous donnons les résultats de la caractérisation de différents types d'échantillons de référence dont les propriétés thermophysiques sont disponibles dans la littérature scientifiques : le Br SiO₂, le Kapton MT et le GaAs, qui servent à la validation de notre banc de mesure. Enfin, dans la dernière partie du chapitre, nous présentons les résultats issus d'un modèle numérique de la méthode 3ω , basé sur la méthode

des éléments finis (FEM) et construit à l'aide du logiciel Comsol Multiphysics®. Ce modèle de simulation prend en considération tous les paramètres utilisés dans la technique 3-oméga. Il permet de caractériser l'évolution spatiale de la température depuis la source de chaleur jusqu'au fond de l'échantillon. Finalement, un traitement des données permet de faire une étude de comparaison entre les résultats obtenus expérimentalement, ceux issus de la simulation par la méthode des éléments finis et ceux obtenus à partir de la solution analytique proposée par D. G. Cahill.

Le chapitre quatre se focalise sur la méthode différentielle 3-oméga mise en œuvre pour caractériser la conductivité thermique de matériaux déposés en couches minces. Afin de valider cette technique, deux échantillons ont été sélectionnés (SiO_2/Si et $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$). Dans un premier temps, nous présentons les différentes étapes de réalisation des deux films minces (SiO_2 et Si_3N_4) déposés séparément sur un substrat de silicium par le dépôt chimique en phase vapeur à basse pression (LPCVD). Puis, nous donnons les résultats de mesure, par les mesures de la 3^{ème} harmonique de la tension, de la conductivité thermique des films sélectionnés. Ensuite, un modèle de simulation par les éléments finis (FEM) sous Comsol, développé pour ce type d'échantillon est présenté. Finalement, une étude comparative entre les différentes sources de résultats permet d'éventuels ajustements du modèle numérique par FEM.

Enfin, nous présentons dans le cinquième et dernier chapitre, un état de l'art sur les parylènes avec un focus sur le parylène de type C. Les excellentes caractéristiques de ce polymère (conformabilité, imperméabilité aux gaz, barrière à l'humidité, etc....) l'ont rapidement rendu attractif pour de nombreuses applications dans l'industrie. La première partie du chapitre est dédiée à la description des échantillons testés, des films minces de parylène C de différentes épaisseurs déposés sur un substrat en borosilicate et aux différentes étapes de fabrication. La mesure de la conductivité thermique effective et de la résistance interfaciale ont été réalisés dans une deuxième section. Enfin, des simulations numériques basées sur la méthode des éléments finis permettent une comparaison avec les données mesurées obtenues par la méthode 3-oméga.

Finalement, nous concluons le manuscrit en faisant la synthèse des travaux réalisés et en évoquant les perspectives de recherche.

Chapitre 1 : Généralités

Chapitre 1 : Généralités

Sommaire

1.1 INTRODUCTION	6
1.2 MODE DE TRANSFERT DE CHALEUR	6
1.2.1 Transfert de chaleur par conduction	7
1.2.2 Transfert de chaleur par convection	8
1.2.3 Transfert de la chaleur par rayonnement	9
1.3 PROPRIETES THERMIQUES DES MATERIAUX	10
1.3.1 La conductivité thermique	10
1.3.2 La chaleur spécifique	11
1.3.3 La diffusivité thermique	11
1.3.4 L'effusivité thermique	12
1.4 LA THEORIE CINETIQUE DES GAZ.....	13
1.5 METHODES DE CARACTERISATION THERMIQUE.....	15
1.5.1 Méthodes en régime transitoire	15
1.5.1.1 Méthode du fil chaud.....	16
1.5.1.2 Méthode laser-flash.....	17
1.5.1.3 Méthode 3-oméga (3ω)	18
1.5.1.4 Microscopie thermique à sonde locale (S _{ThM}).....	20
1.5.2 Méthodes en régime permanent	21
1.5.2.1 Méthode de la plaque chaude gardée.....	22
1.5.2.2 Méthode flux thermique radial (cellule à cylindres coaxiaux)	23
1.5.2.3 Méthode de spectroscopie Raman	24
1.6 CHOIX D'UNE METHODE DE MESURE DES PROPRIETES THERMO PHYSIQUES	26
1.7 CONCLUSION	27
1.8 BIBLIOGRAPHIE	28

1.1 INTRODUCTION

La connaissance de propriétés thermophysiques (conductivité thermique, diffusivité thermique, ...) des matériaux est cruciale, car elles sont souvent cruciales lors du développement des applications électroniques et de la fabrication de nouveaux dispositifs. A cet effet, de nombreuses méthodes de caractérisation de propriétés thermo physiques des matériaux solides, à des échelles macro, micro- et nanométriques, ont été développées dans ces dernières années, faisant appel à des techniques expérimentales bien adaptées.

L'objectif de ce chapitre est de présenter dans un premier temps, quelques généralités sur les modes de transfert de l'énergie thermique, les propriétés thermiques et les propriétés thermophysique qui caractérisent un matériau et la théorie cinétique des gaz. Dans un second temps, il s'agit de décrire d'une manière succincte les diverses méthodes de mesures des propriétés thermiques, notamment de la conductivité thermique. De nombreuses méthodes de mesures ont été développées, faisant appel à des développements d'outils expérimentaux. Les méthodes proposées sont classifiées selon deux principaux régimes, le régime transitoire et le régime permanent, et elles dépendent en général de certains paramètres comme la géométrie du milieu étudié, le type de matériau (métal, semi-conducteur, ...), l'état de la matière (solide, liquide ou gaz), les conditions aux limites (température, pression, ...). Donc, se pose le problème de leurs champs d'applications. Dans cette section, le principe, les avantages et les inconvénients de quelques méthodes les plus connues après de nombreuses études et recherches dans la littérature sont passés en revue. Enfin, des critères nécessaires qu'ils faut prendre en considération avant de choisir une telle méthode pour effectuer une mesure correcte et précise sont présentés.

1.2 MODE DE TRANSFERT DE CHALEUR

Le transfert de chaleur joue un rôle essentiel en thermodynamique. Il est le transport d'énergie thermique d'un système à un autre sous l'influence d'un gradient de température. En général, le transfert de chaleur s'effectue de trois manières différentes : par conduction lorsque de la chaleur est échangée entre deux systèmes solides du fait du mouvement de leurs particules élémentaires, par convection lorsqu'un milieu fluide est chargé de transporter la chaleur d'une région à une autre, et enfin par rayonnement lorsque la chaleur est transmise sous forme d'ondes électromagnétiques.

1.2.1 Transfert de chaleur par conduction

La conduction (ou diffusion) thermique est le mode de transfert de chaleur dans les solides, sans déplacement macroscopique de matière. Elle s'effectue spontanément d'une région chaude vers une région froide, dont la température est plus basse que dans la région chaude (Fig. 1.1).

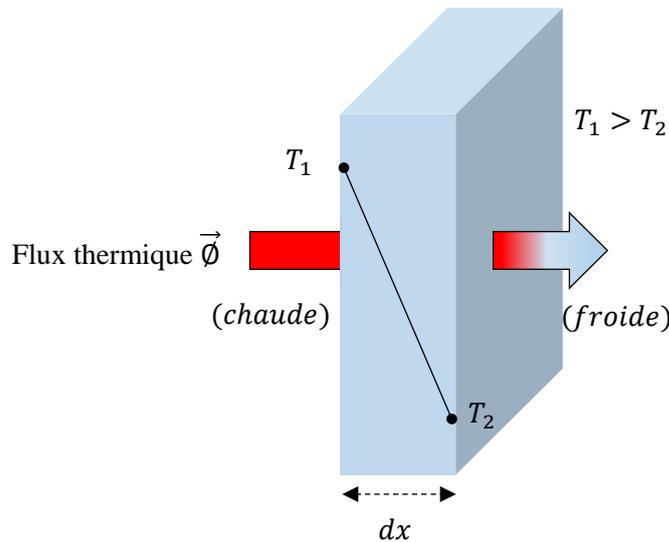


Figure 1.1 : Schéma du transfert thermique provoqué par une différence de température entre deux régions d'un même milieu.

La théorie fondamentale qui décrit ce phénomène a été établie mathématiquement par Joseph Fourier en 1822 [Fou 1822], qui indique que la densité de flux de chaleur $\vec{\phi}$ est proportionnelle au gradient de température $\overrightarrow{grad} T$ et au coefficient de conductibilité thermique k :

$$\vec{\phi} = -k \overrightarrow{grad} T \quad (1.1)$$

Pour un milieu anisotrope, la conductivité thermique est définie dans chaque direction de l'espace. La conservation de l'énergie au sein du système, donnée par le premier principe de la thermodynamique, débouche sur une équation générale appelée équation de la chaleur qui gouverne les phénomènes de conduction thermique au sein de la matière :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (k \vec{\nabla} T) + Q \quad (1.2)$$

Où ρ est la masse volumique en $\text{kg} \cdot \text{m}^{-3}$, C_p est la chaleur spécifique massique à pression constante exprimé en $\text{J} \cdot \text{kg}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$, Q est un terme de production d'énergie volumique en W/m^3 et k est la conductivité thermique en W/mK .

Pour résoudre l'équation de la chaleur (Eq. 1.2) dans n'importe quel milieu il est nécessaire de connaître les paramètres thermophysiques de ces milieux.

Dans les solides, le processus de diffusion dépend de la structure du matériau, par conséquent, les propriétés thermiques d'un solide sont régies par sa composition.

1.2.2 Transfert de chaleur par convection

La convection est un mode de transfert thermique qui s'accompagne de mouvement (ou de déplacement) de molécules dans un fluide (liquides ou gaz) par la circulation de courants thermiques d'une région (Fig. 1.2).

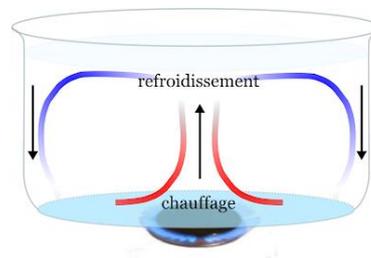


Figure 1.2 : Exemple d'un transfert de chaleur par convection.

Nous distinguons deux types de convection thermique : naturelle et forcée. En convection naturelle, ou libre, la circulation du courant est due à l'existence d'un gradient de température qui affecte la densité du fluide. Pour mieux comprendre, si nous prenons l'exemple d'un objet chaud soumis à l'air froid. Initialement, la chaleur est transférée à la frontière entre l'objet et le fluide. Par conséquent, la température de l'objet chaud va baisser et l'air proche à sa surface devient plus chaud. La température de l'air adjacent à l'objet chaud est plus élevée que les zones supérieures d'air froid, il possède donc une densité plus faible. Cela fait monter l'air chauffé où il sera ensuite remplacé par de l'air froid. Par contre, en cas de convection forcée, le fluide est provoqué par une circulation forcée à travers une source artificielle (turbine, ventilateurs, pompe). Par exemple, lorsque nous utilisons un sèche-cheveux, un courant d'air chaud est soufflé par un ventilateur, dans ce cas l'air est chauffé par convection forcée. Ce mode de transfert de chaleur peut être négligé dans deux cas. Le premier, lorsque le gradient de température est négligeable entre l'objet et le fluide environnant et le deuxième, lorsque la surface d'un objet en contact avec le fluide est très réduite (ou faible).

Le transfert de chaleur par convection peut être décrit par la loi de refroidissement de Newton. D'après la loi de Newton, la chaleur perdue par un objet par la convection est proportionnelle au gradient de température entre l'objet et son milieu environnant [Jij 2009].

$$q_w = H S (T_s - T_0) \quad (1.3)$$

avec q_w est le taux de transfert de chaleur (en W), H est le coefficient de convection (en W/m²K), S est la surface exposée (en m²), T_s est la température de la surface de l'objet et T_0 est la température du fluide environnant.

1.2.3 Transfert de la chaleur par rayonnement

Le rayonnement est défini comme le mode de transfert de chaleur d'un corps à haute température à un autre plus froid via la propagation d'ondes électromagnétiques. Ce transfert d'énergie peut se produire même dans le vide (sans nécessité de support matériel). Contrairement aux deux autres modes (la conduction et la convection), il ne nécessite aucun mouvement ni interaction de matériaux. Par exemple, le rayonnement thermique du soleil diffuse, à travers le vide existant, dans l'espace et dans l'atmosphère terrestre [Sie 2002].

L'énergie totale transmise par rayonnement, d'un corps, par unité de temps sous une température T est définie par la loi de Stefan-Boltzmann :

$$q_R = \varepsilon \sigma S T^4 \quad (1.4)$$

avec q_R l'énergie transmise par rayonnement (en W), σ est la constante de Stefan-Boltzmann qui vaut ($5,670 \times 10^{-8} \text{ kg s}^{-3} \text{ K}^{-4}$), ε est l'émissivité de surface (c'est un coefficient sans unité qui est compris entre 0 et 1 selon l'état de surface du matériau), S est la surface du corps (en m²) et T est la température du corps (en °K).

Un corps à faible réflectivité de surface signifie que c'est un bon absorbeur d'énergie incidente avec une capacité d'absorption élevée afin d'empêcher les rayonnements de traverser. Par exemple, les corps noirs sont des absorbeurs parfaits car, ils absorbent l'ensemble des rayonnements électromagnétiques, sans en réfléchir ni en transmettre. Le coefficient de l'émissivité des corps noirs est égale à 1.

En réalité, les transferts thermiques sont souvent une combinaison de ces trois formes de transferts. Cependant, en fonction de l'état de la matière et des conditions expérimentales, une des formes sera toujours favorisée. Dans notre étude, le point de départ sera toujours

l'équation de la chaleur, ce qui suppose que les transferts thermiques sont gouvernés par la conduction thermique. Les deux autres formes seront négligées et considérées comme des perturbations entraînant des déviations par rapport aux modèles étudiés.

1.3 PROPRIETES THERMIQUES DES MATERIAUX

Nous avons mentionné dans les paragraphes précédents, que le transfert de chaleur entre deux systèmes physiques s'effectue selon trois mécanismes différents : la conduction, la convection et le rayonnement. Donc, chacun de ces mécanismes se déroule selon un type de systèmes d'échange de chaleur. La chaleur est transférée par conduction selon la loi de conduction de Fourier. D'un point de vue thermique, quatre propriétés thermophysiques caractérisent un matériau : la conductivité thermique, la capacité calorifique, la diffusivité thermique et l'effusivité thermique. Ces deux dernières propriétés sont dépendantes, en conséquence, connaissant les deux premières suffit à la déduction des deux autres.

1.3.1 Conductivité thermique

La conductivité thermique peut être définie comme la quantité de chaleur par unité de temps qui s'écoulerait à travers un mètre carré d'un matériau où un gradient de température existe dans la direction du flux de chaleur. Il est défini comme le coefficient de conductibilité k dans la loi de conduction de Fourier (Eq. 1.1). Cette grandeur thermique, représente la capacité d'un matériau à transférer l'énergie thermique, s'exprime en watts par mètre et par degrés Kelvin (W/m.K), et caractérise la diffusion de la chaleur dans les milieux sans mouvement macroscopique de matière. Donc, c'est une propriété qui décrit la facilité ou la difficulté de transfert d'énergie thermique à travers le matériau par conduction.

L'énergie thermique peut être transmise à travers les solides par les porteurs de charge (électron ou trous), les ondes du réseau (phonons), les ondes électromagnétiques ou d'autres excitations. Donc la conductivité thermique k totale peut être écrite sous forme une somme de toutes les composantes qui représentent les différentes excitations

$$k = k_{\text{él}} + k_{\text{ph}} \quad (1.5)$$

avec $k_{\text{él}}$ et k_{ph} qui sont respectivement les conductivités thermiques des électrons et des phonons. Les matériaux à haute conductivité thermique sont fréquemment utilisés comme conducteurs thermiques, tandis que ceux ayant une faible conductivité thermique sont utilisés comme isolants thermiques. Par ailleurs, dans les métaux les porteurs de charges transportent

la majorité de la chaleur, tandis que dans les isolants, les phonons sont les transporteurs de la chaleur dominante [Mis 1965]. Généralement, la conductivité dépend fortement de la température, du type de matériau, et de d'autres facteurs comme l'humidité ou la pression.

1.3.2 La chaleur spécifique

La chaleur spécifique (en $\text{J.kg}^{-1}\text{K}^{-1}$) rend compte de la capacité d'un matériau à stocker la chaleur par rapport à sa masse [Fto 2014]. En pratique, il s'agit de l'énergie à fournir au matériau pour augmenter sa température de 1°K . Elle est donnée par la variation de l'énergie interne U en fonction de la température T , d'où l'équation :

$$C_i = \left(\frac{dU}{dT} \right)_i \quad (1.6)$$

où l'indice i indique le paramètre qui est maintenu constant (volume ou pression). D'un point de vue expérimental, il s'agit de la chaleur spécifique à pression constante C_p , qui est déterminée dans les solides.

En métrologie thermique, la capacité calorifique apparaît souvent sous la forme d'une capacité volumique qui s'exprime donc par le produit ρC en $\text{Jm}^{-3}\text{K}^{-1}$ en faisant intervenir la masse volumique du matériau.

1.3.3 La diffusivité thermique

Lorsqu'un flux de chaleur de densité $\vec{\phi}$ traverse un matériau isotrope et homogène, l'équation de conservation de l'énergie s'écrit sous la forme :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} + \text{div } \vec{\phi} = 0 \quad (1.7)$$

où C_p et ρ sont respectivement la capacité calorifique massique à pression constante et la masse volumique du matériau.

Si on injecte l'équation 1.1 de la densité de flux de chaleur dans l'équation 1.7, cette dernière devient sous la forme suivante :

$$\rho C_p \frac{\partial T}{\partial t} = \text{div } (\overrightarrow{k \text{ grad } T}) = 0 \quad (1.8)$$

La conductivité thermique k est constante pour un intervalle de température très faible, donc l'équation précédente devient :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{k}{\rho C_p} \Delta T \quad (1.9)$$

avec

$$D = \frac{k}{\rho C_p} \quad (1.10)$$

Le coefficient D représente la diffusivité thermique du matériau (en m^2/s). Elle permet de déterminer la vitesse de diffusion de la chaleur dans le matériau considéré. C'est une grandeur qui régit le comportement thermique d'un matériau en régime transitoire, elle est reliée à la conductivité thermique et à la capacité calorifique volumique (ρC_p). Un matériau qui possède une diffusivité thermique élevée a une propagation de la chaleur plus rapide.

1.3.4 L'effusivité thermique

L'effusivité thermique (noté e) s'exprime en $\text{Jk}^{-1}\text{m}^{-2}\text{s}^{-(1/2)}$ traduit la capacité d'un matériau à échanger sa chaleur avec son environnement. Plus précisément, cette propriété rend compte de la sensibilité de la température de surface d'un matériau à une variation du flux de chaleur reçu par cette surface.

Considérant un matériau semi-infini soumis à une température uniforme T_0 , La 1^{ère} face de ce matériau située en $x = 0$, soumise à une température constante T_1 . La résolution de l'équation de la chaleur nous permet de calculer la densité de flux qui traverse ce matériau en position $x = 0$, tel que nous obtenons la solution :

$$\phi_0 = (T_1 - T_0) \frac{\sqrt{k\rho C_p}}{\pi t} \quad (1.11)$$

Donc, la densité de flux ϕ_0 est proportionnelle au paramètre $\sqrt{k\rho C_p}$. Ce dernier est l'effusivité thermique du matériau.

$$e = \sqrt{k \rho C_p} \quad (1.12)$$

Cette propriété est liée à la conductivité thermique et à la capacité calorifique volumique. Généralement, cette quantité intervient lors des contacts thermiques entre deux milieux, la densité de flux transférée d'un milieu à l'autre dépendant de l'effusivité de chacun des milieux. Un matériau très conducteur et très capacitif aura une température de surface peu sensible à des variations de flux thermique, ce matériau est donc très effusif.

1.4 LA THEORIE CINETIQUE DES GAZ

Le transfert de chaleur à travers les matériaux à l'état solide est limité par la diffusion de différents types de porteurs de chaleur, tels que les électrons, les photons et les phonons qui peuvent varier selon la nature des matériaux. À l'échelle nanométrique, le transfert de chaleur diffère considérablement de celui à l'échelle macro et micro métrique.

Les effets de taille deviennent plus importants lorsque le libre parcours moyen et/ou la longueur d'onde des porteurs deviennent comparables à la taille du matériau. De plus, à cette échelle, le temps de relaxation de la chaleur transportée est du même ordre que le temps d'intérêt. A ces limites, les lois classiques ne sont plus valables [Cah 2003, Dam 2004, Dub 2009].

La conductivité thermique est souvent décrite suivant les modèles développés par Klemens [Kle 1984] et Callaway [Cla 1959] basés sur l'équation de Boltzmann appliquée au transfert de phonons, et l'approximation de Debye pour la dispersion des phonons.

Bien que de nombreux travaux de recherche aient été menés récemment dans ce domaine, il existe encore un besoin pour une meilleure compréhension des phénomènes thermiques dans les systèmes de dimensions réduites. En règle générale, il existe deux types d'intérêt : le premier est du domaine technologique, dans le souci d'augmenter les performances des dispositifs thermoélectriques et de conversion d'énergie, où les propriétés particulières d'un matériau à l'échelle nanométrique peuvent être très utiles [Sha 2011, Hic 1993]. De plus, le problème est de maintenir les meilleures conditions de fonctionnalité et de fiabilité des circuits intégrés [Bar 2009]. Le deuxième type repose, en dehors des considérations technologiques, sur l'étude des propriétés thermiques à l'échelle nanométrique qui pose des questions fondamentales sur l'interaction du transfert de chaleur et de la microstructure à ces petites échelles de longueur qui doivent être abordées.

L'expression de la conductivité thermique à partir de la théorie cinétique des gaz décrite par Debye est donnée par la relation suivante [Kit 1983]:

$$k = \frac{1}{3} n c \tau v^2 = \frac{1}{3} C v l \quad (1.13)$$

c est la capacité thermique de chaque particule, n est la concentration des particules, $C = n c$ est la capacité thermique totale, v est la vitesse de déplacement des particules et τ est le temps de relaxation. $l = v \tau$ est le libre parcours moyen d'une particule et il est défini comme la distance moyenne entre deux collisions.

L'équation précédente (Eq. 1.13) peut être généralisée pour les divers porteurs de chaleur (électrons, phonons, photons, ...) sous la forme :

$$k = \frac{1}{3} \sum_i C_i v_i l_i \quad (1.14)$$

L'indice i représente la sommation sur tous les porteurs de chaleur.

Généralement, cette équation donne une excellente description phénoménologique de la conductivité thermique. Dans le cas du transport thermique assuré majoritairement par les phonons (ou par les électrons), la relation (1.14) devient :

$$k_\alpha = \frac{1}{3} C_\alpha v_\alpha l \quad (1.15)$$

où l'indice α indique si le transport thermique est assuré par les phonons ou par les électrons.

Généralement, la capacité calorifique du solide à volume constant est constituée d'un terme phonon et d'un terme électronique [Her 2010].

$$C_\alpha = C_{ph} + C_{él} \quad (1.16)$$

C_{ph} et $C_{él}$ représentent respectivement la chaleur spécifique des phonons et celle des électrons.

Dans le cas des milieux isolants, d'où la conduction thermique est assurée essentiellement par les vibrations du réseau cristallin (phonon), l'équation 1.15 devient :

$$k_{ph} = \frac{1}{3} C_{ph} v_s l_{ph} \quad (1.17)$$

avec

$$C_{ph} = \frac{2\pi^2 K_b^4 T^3}{5 \bar{h}^3 v_s^3} \quad (1.18)$$

où, K_b est la conductance thermique, \bar{h} est la constante de Planck et v_s est la vitesse moyenne des particules dans le processus de diffusion (la vitesse du son dans le matériau), l_{ph} désigne le libre parcours moyen élastique. Aux échelles nanométriques, le transport des phonons dépend de la géométrie des échantillons et va influencer sur la valeur de la conductivité thermique. Les collisions entre phonons engendrent un flux de phonons moins important allant dans le sens opposé au flux de chaleur ce qui a pour conséquence l'augmentation de la résistance thermique.

Pour les matériaux conducteurs (métaux) où les électrons transportent l'énergie thermique, l'équation 1.15 devient :

$$k_{\text{él}} = \frac{1}{3} C_{\text{él}} v_F l_{\text{él}} \quad (1.19)$$

avec

$$C_{\text{él}} = \frac{\pi^2}{3} D(E_F) K_b^4 T \quad (1.20)$$

où v_F est la vitesse moyenne des particules dans le processus de diffusion (la vitesse des électrons sur le niveau de Fermi) et $D(E_F)$ est la densité d'état des phonons en fonction de l'énergie cinétique des ondes planes loin de la température de Fermi [Her 2010].

La conductivité thermique présente également des caractéristiques différentes entre les diélectriques amorphes et cristallins. A haute température ($T > 60K$), la conductivité thermique augmente avec T dans les diélectriques amorphes, par contre, elle baisse avec T dans les diélectriques cristallins

1.5 METHODES DE CARACTERISATION THERMIQUE

De nombreuses méthodes thermiques sont dédiées à la caractérisation des propriétés thermo physiques des matériaux. Il est possible de classer ces méthodes selon deux régimes : le régime transitoire et le régime permanent.

1.5.1 Méthodes en régime transitoire

Les méthodes en régime transitoire sont conçues pour mesurer plusieurs propriétés thermo physique (la conductivité, la diffusivité et l'effusivité) des matériaux massifs. D'autres ont été développées pour permettre de tester des échantillons de taille réduite (films minces). Elles nécessitent une bonne connaissance des transferts de chaleur ayant lieu dans l'échantillon, car le traitement des mesures n'est pas le même selon le type de matériau (conducteur ou isolant). Le principe de mesure s'appuie sur un modèle développé à partir de l'équation de conservation de l'énergie qui permet de trouver une relation directe entre les paramètres initiaux et les grandeurs mesurées. Dans la littérature scientifique, nous pouvons citer certains méthodes : fluxmètres, laser flash [Par 1961], fil et plan chaud [Zha 1993], 3-oméga [Cah 1990], SThM [Din 1994], etc... La majorité des méthodes en régime thermique transitoire sont caractérisées par leurs rapidités et leurs habilités à mesurer directement les propriétés thermiques de

différents matériaux. De plus, elles sont considérées comme des méthodes simples par leur concept et leur conception [Tye 2005].

1.5.1.1 Méthode du fil chaud

La méthode du fil chaud est une méthode en régime transitoire dont le principe est de mesurer l'élévation de température d'une source de chaleur linéaire, le fil chaud est encapsulé dans l'éprouvette de mesure [Zha 1993, Coq 2006].

La distribution radiale de la température $T(r, t)$ en fonction du temps, autour d'une source de chaleur linéaire qui dissipe une densité linéique de flux thermique, est exprimée par la relation :

$$\Delta T(r, t) = \frac{q}{4\pi k} E \left(\frac{r^2}{4Dt} \right) \quad (1.21)$$

Où $E \left(\frac{r^2}{4Dt} \right)$ est une énergie, k et D représentent respectivement la conductivité thermique et la diffusivité thermique du milieu (considéré infini) où se situe la source de chaleur.

Le dispositif constitué d'une sonde à chocs thermiques placée entre deux échantillons du matériau à caractériser (montage symétrique), d'un boîtier d'acquisition électronique et d'un logiciel de type interface graphique pour traiter les résultats (Fig. 1.3).

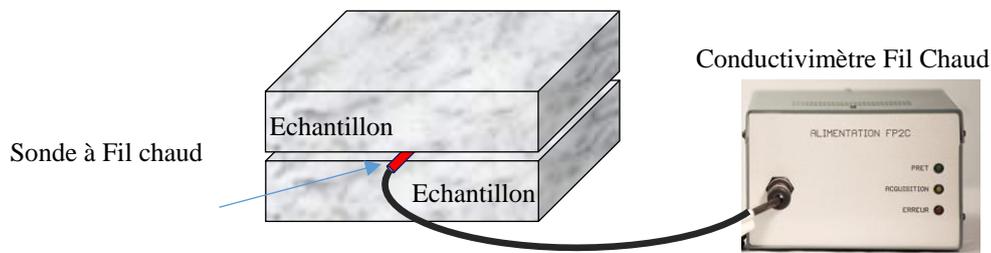


Figure 1.3 : Schéma descriptif de principe de la méthode du fil chaud [Con 2020].

La conductivité thermique est donnée pour la formule :

$$k = \frac{q \ln(t_2/t_1)}{4\pi (T_2 - T_1)} \quad (1.22)$$

T_2 et T_1 représentent respectivement les températures à l'instante t_2 et t_1 .

Cette méthode possède de nombreux avantages comme sa simplicité, sa rapidité, car le temps de mesure est généralement très court, 2 à 10 min pour des élévations de température, le fait d'être applicable non seulement aux matériaux solides mais aussi aux liquides et aux matériaux pulvérulents. Elle permet d'accéder directement à la conductivité thermique à partir de la mesure de la chaleur massique du matériau. Cette méthode est utilisée avec les produits réfractaires pour des températures allant jusqu'à 1 250°C. Elle offre par ailleurs des résultats précis pour les matériaux isolants.

Les sources d'erreur de la méthode de fil chaud proviennent du contact imparfait entre le fil chaud et l'éprouvette. La méthode du fil chaud ne peut pas s'appliquer aux matériaux anisotropes (isolants fibreux) et aux échantillons de taille réduite. Elle est limitée à des matériaux de faible conductivité thermique ne dépassant pas 1,5 à 2 W/mK.

1.5.1.2 Méthode laser-flash

La méthode laser flash est une méthode transitoires (quasi-impulsionnelle) proposée par Parker en 1961 [Par 1961]. C'est l'une des plus répandues dans la détermination des propriétés thermo physiques des matériaux, principalement la diffusivité thermique (Fig. 1.4).

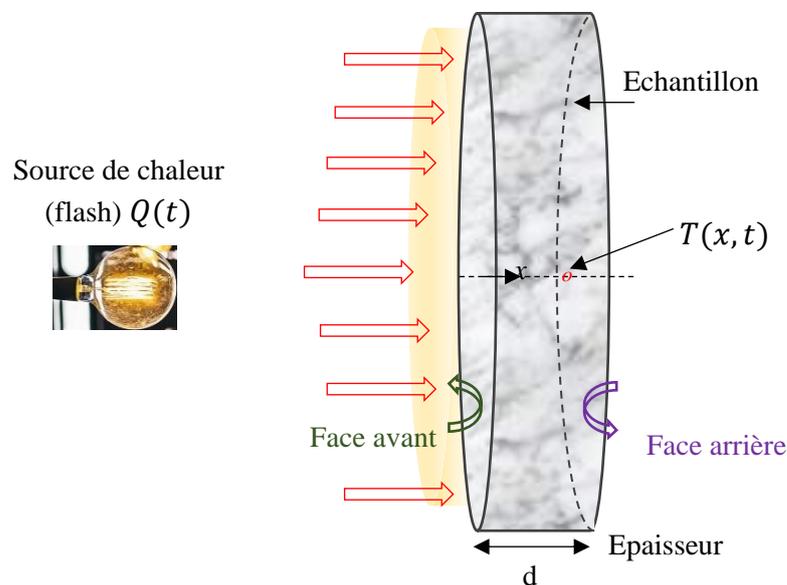


Figure 1.4 : Schéma de principe de la méthode laser-flash.

Le principe de la méthode consiste à appliquer une perturbation thermique localisée dans le temps et dans l'espace (un laser) sur la face avant d'une éprouvette cylindrique et à relever, sur la face arrière, l'évolution de température en fonction du temps. Un équilibre thermique va s'établir dans l'échantillon provoquant un flux thermique vers la face non exposée

(face arrière). On établit ainsi ce qui s'appelle le thermo gramme du matériau. À partir de ce dernier, la diffusivité thermique du matériau est évaluée à partir de l'évolution température [Deg 1986, Hay 2002] par la relation suivante :

$$\frac{dT}{dt} = D \left(\frac{d^2T}{dx^2} \right) \quad (1.23)$$

où T est la température, t est le temps, D est la diffusivité thermique et x est l'épaisseur de l'échantillon (entre 0 et d).

Cette méthode présente l'avantage d'être rapide, précise. Elle a été appliquée avec succès aux matériaux composites, aux matériaux poreux de faible porosité, aux matériaux conducteurs et aux isolants de masses importantes utilisés dans la construction de bâtiments.

Les principaux inconvénients résident, d'une part, dans la non compatibilité avec les isolants de faible masse, particulièrement, pour les matériaux très poreux (absorption surfacique du flux) et, d'autre part, la mesure de la conductivité thermique est indirecte.

1.5.1.3 Méthode 3-oméga (3ω)

La méthode 3-oméga est une méthode classifiée en régime transitoire. Elle a été développée à l'origine par Cahill [Cah 1990] pour la mesure de la conductivité thermique et de la capacité thermique de toutes sortes de matériaux diélectriques (solides, liquides et gazeux) [Ste 1983, Fra 1993, Moo 1996, Gau 2013]. Dans cette méthode, un ruban métallique (déposé par lithographie) est utilisé à la fois comme une source de chaleur et comme un détecteur de température à la surface de l'échantillon sous test (Fig. 1.5). Ensuite, elle a été utilisée pour mesurer la conductivité thermique de films minces de quelques centaines de nanomètres à plusieurs micromètres d'épaisseur à faible conductivité thermique [Cah 1994]. Le principe de cette méthode consiste à injecter un courant sinusoïdal $I(t)$ de fréquence angulaire ω et d'intensité I_0 aux bornes de la résistance (ruban métallique). Par effet joule, une source de chaleur va échauffer la résistance et l'échantillon sous test à une pulsation angulaire 2ω .

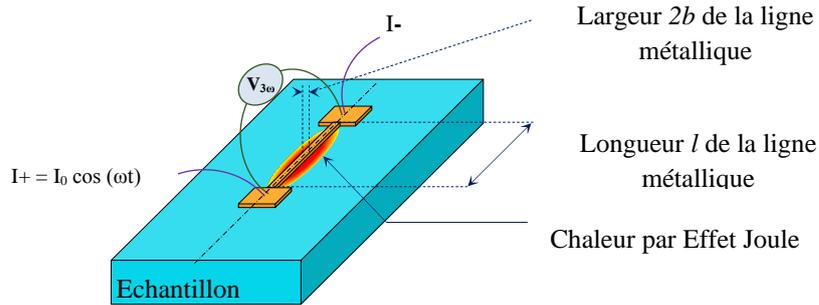


Figure 1.5 : Schéma descriptif de la méthode 3-oméga.

La puissance dissipée par la ligne métallique provoque une augmentation de la température et la tension V aux bornes de la sonde peut alors s'écrire sous la forme suivante :

$$V = I_0 R_0 \cos(\omega t) + \frac{1}{2} I_0 R_0 \beta_h \Delta T_{DC} \cos(\omega t + \varnothing) + \frac{1}{2} I_0 R_0 \beta_h |\Delta T_{AC}| \cos(3\omega t + \varnothing) \quad (1.24)$$

avec I_0 est le courant initial, R_0 est la résistance initiale, β_h est le coefficient de température en résistance, \varnothing est un déphasage, ΔT_{DC} la variation de température par rapport à la température initiale et ΔT_{AC} représente la variation de température due à la puissance d'oscillation.

Nous remarquons que le troisième terme dépend de la troisième harmonique de tension (d'où le nom de la méthode) et il est proportionnel à la variation de la température. Cependant, la relation entre cette tension et la variation de la température est donnée par :

$$V_{3\omega} = \frac{1}{2} I_0 R_0 \beta_h \Delta T_{AC} \quad (1.25)$$

Donc la mesure de cette composante (amplitude des variations de la 3ème harmonique de tension et de déphasage) permet de remonter aux propriétés thermo-physiques, en particulier la conductivité thermique, du matériau testé.

Cette méthode est très simple à mettre en œuvre. Elle offre de très bons résultats (précision) pour les matériaux isolants (mousses, bétons, plastiques, verres...). Ses inconvénients sont d'une part, le temps de mesure assez long, d'autre part la nécessité d'avoir des échantillons de grande taille avec une faible conductivité.

Cette méthode convient à toutes sortes de matériaux diélectriques (solides, liquides et gazeux), massif et en couches minces. Elle est caractérisée par la bonne précision des mesures pendant un temps court (équilibre thermique vite atteint). Les pertes de chaleurs par rayonnement sont très faibles. L'inconvénient majeur réside dans le cas des matériaux conducteurs, il est nécessaire de déposer une couche isolante avant le dépôt de ligne de chauffe (une tache supplémentaire et coûteuse).

1.3.5.4 Microscopie thermique à sonde locale (SThM : Scanning Thermal Microscopy)

L'élément clé de tout SThM est la sonde micro thermique. La pointe utilisée a été inventée par Dinwiddie et al en 1994 [Din 1994]. Elle est constituée d'un bras de levier ayant en son extrémité une sonde constituée d'un élément thermo résistif (Figure 1.6). Le bras de levier est fabriqué à partir d'un fil de type Wollaston. L'élément thermo résistif est obtenu en attaquant par électrochimie le fil sur une longueur approximative de 200 μm . Une fois dénudé, le filament est plié en forme de V pour donner à la pointe sa forme finale [Uma 1997].

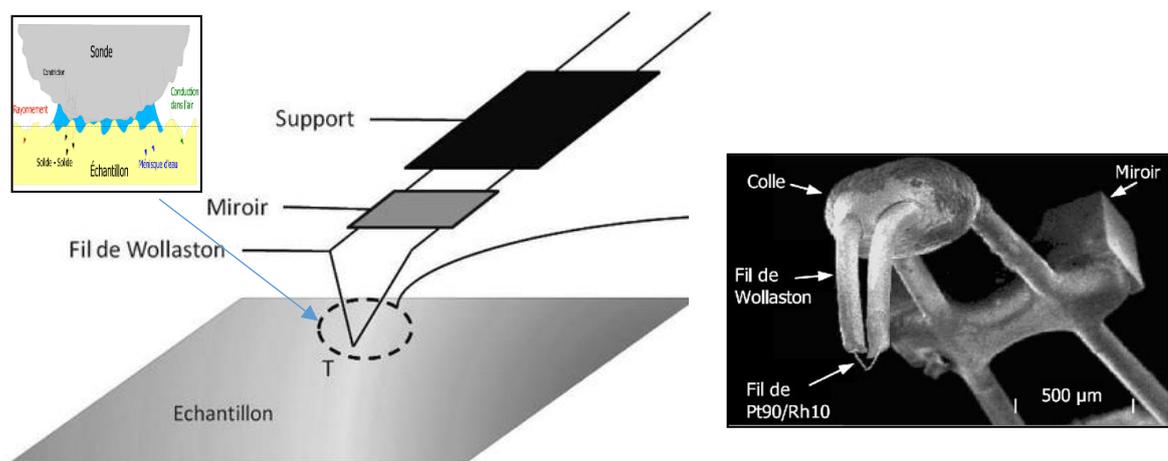


Figure 1.6 : Schéma d'une sonde SThM en contact avec l'échantillon.

[Gom 1999, Lef 2004, Uma 1997].

L'élément résistif de la sonde thermique joue le rôle, simultanément, d'une source excitatrice de l'échantillon et d'un détecteur de chaleur [Lef 2004]. Lorsque la sonde balaye la surface de l'échantillon, une quantité de chaleur est transférée de la pointe chauffée vers l'échantillon. Ce transfert de chaleur produit une diminution de la résistance électrique de la pointe en la refroidissant d'où un déséquilibre du pont. La boucle de rétroaction sensible à ce déséquilibre ajuste la tension appliquée au pont afin que ce dernier retrouve son équilibre : la tension appliquée au pont augmente jusqu'à ce que la pointe, davantage chauffée par effet Joule, retrouve sa résistance électrique (et donc sa température) initiale.

De manière générale, le transfert thermique pointe-échantillon est caractérisé, en microscopie à sonde locale, par différents mécanismes de transferts de chaleur fortement dépendants de l'environnement de la pointe et de la zone étudiée. Pour des mesures réalisées sous air ambiant, ces mécanismes incluent les mécanismes de transferts à distance : rayonnement et conduction à travers l'air et ceux liés au contact entre deux solides : transfert par conduction directe solide-solide et via le film d'eau adsorbée en surface de l'échantillon et de la pointe (figure 1.6). Pour

déterminer la conductivité thermique, un dispositif électronique est utilisé pour mesurer les variations de tensions aux bornes de la sonde. Ensuite, une comparaison entre la tension de référence et la tension mesurée renseigne sur la variation de puissance électrique nécessaire au maintien de la température de la sonde. Finalement, la conductivité thermique est définie par la relation suivante :

$$k = \frac{2 \cdot P}{\pi \cdot b \cdot \Delta T} \quad (1.26)$$

avec P est la puissance de chauffage, ΔT est la température entre la pointe et le matériau sous test, k est la conductivité thermique du matériau et b est le rayon de la surface de contact.

Cette méthode convient à la mesure de la conductivité thermique à l'échelle nanométrique avec une bonne précision. Les inconvénients majeurs résident dans la fragilité des pointes, le temps de mesure relativement long et l'utilisation d'un équipement coûteux.

1.5.2 Méthodes en régime permanent

Dans ces méthodes, le temps n'est pas pris en compte, car, les mesures sont prises après avoir atteint l'équilibre thermique, il faut donc beaucoup de temps. Le principe de mesure repose sur l'exploitation des mesures de la température en divers zones du matériau. En s'appuyant sur la loi de Fourier et les conditions aux limites, nous pouvons déterminer les grandeurs thermo-physiques du matériau testé. Les méthodes en régime permanent sont basées sur l'équation de diffusion de la chaleur régie par la loi de Fourier [Sal 2001]. En outre, ils sont utilisés pour mesurer les matériaux massifs de faible conductivité thermique [Jan 2010]. D'une façon générale, le champ d'application de ces méthodes est très limité, car ces méthodes présentent des difficultés expérimentales comme : l'existence de résistance interfaciale et des difficultés pour mesurer la température à la surface du matériau testé à cause des fuites de chaleurs par rayonnement. Parmi les méthodes en régime permanent, les plus connues sont : la plaque chaude gardée [Pon 1987], le flux thermique radial [Rob 1994] et la spectroscopie Raman [Ram 1928], etc....

1.5.2.1 Méthode de la plaque chaude gardée

La plaque chaude gardée est une méthode de mesure en régime permanent de la conductivité thermique, basée sur la relation flux/température. Le principe de cette méthode est de reproduire les conditions du transfert de chaleur à travers une plaque infinie limitée par deux plans parallèles et isothermes : c’est le cas du champ thermique uniforme et unidirectionnel (densité de flux thermique uniforme et constante en chaque point) [Woo 1957, Pon 1987, Pon 1988]. Un échauffement par effet Joule d’une plaque métallique (plaque chaude) située entre deux éprouvettes identiques en contact chacune, vers l’extérieur, avec une plaque de refroidissement (plaque froide) de température égale mais inférieure à celle de la plaque chaude, la puissance électrique dissipée par effet Joule dans la plaque chaude se répartira en deux parties égales. Afin d’éviter les fuites latérales à travers la structure même de la plaque chaude, la zone centrale de cette plaque est séparée par des joints isolants de la partie périphérique, appelée zone de garde (d’où le nom de la méthode). Cette zone est régulée en température à l’aide d’une thermopile située entre le centre et la garde de façon à lui assurer une température identique à celle de la zone de mesure (Fig. 1.8).

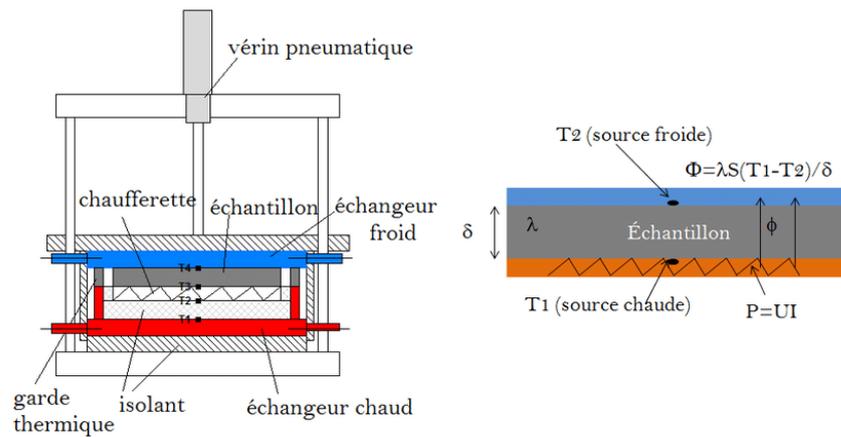


Figure 1.8 : Schéma descriptif de principe généralement utilisé dans la méthode de la plaque chaude gardée [Som 2012].

En régime permanent, la conductivité thermique k est estimée par l’expression suivante :

$$k = \frac{\Phi d_s}{2 S \Delta T} \tag{1.27}$$

avec Φ le flux thermique traversant la surface S de l’échantillon, d_s l’épaisseur de l’échantillon et ΔT la variation de température entre les deux plaques (éprouvettes).

Cette méthode est très simple à mettre en œuvre. Elle offre de très bons résultats (précision) pour les matériaux isolants une grande gamme de matériaux (mousses, bétons, plastiques, verres...). Ses inconvénients sont d'une part, le temps de mesure assez long et d'autre part, la nécessité d'avoir des échantillons de grande taille avec une faible conductivité.

1.5.2.2 Méthode flux thermique radial (cellule à cylindres coaxiaux)

La méthode du flux thermique radial est basée sur le transfert de chaleur dans la direction radiale (en régime permanent). Les mesures sont effectuées sur des échantillons creux de forme cylindrique (supposés homogène et isotrope). Le principe de cette méthode réside dans un fil (ou un cylindre chauffé) intégré au centre de l'échantillon [Rob 1994]. Des thermocouples sont placés à deux distances différentes du chauffage central placé au milieu de l'échantillon. Puis, un courant électrique est appliqué au fil central et la chaleur est générée radialement vers l'extérieur (Fig. 1.9). Cela produit une différence de température au niveau des thermocouples placés dans différents endroits de l'échantillon. Cette perturbation thermique vient imposer un flux de la chaleur radiale q constant. Les variations de température à une distance r de l'axe de la source de chaleur sont données par [Iye 2009]:

$$\Delta T(r, t) = T(r, t) - T_0 \tag{1.28}$$

où T_0 est la température à $t=0$.

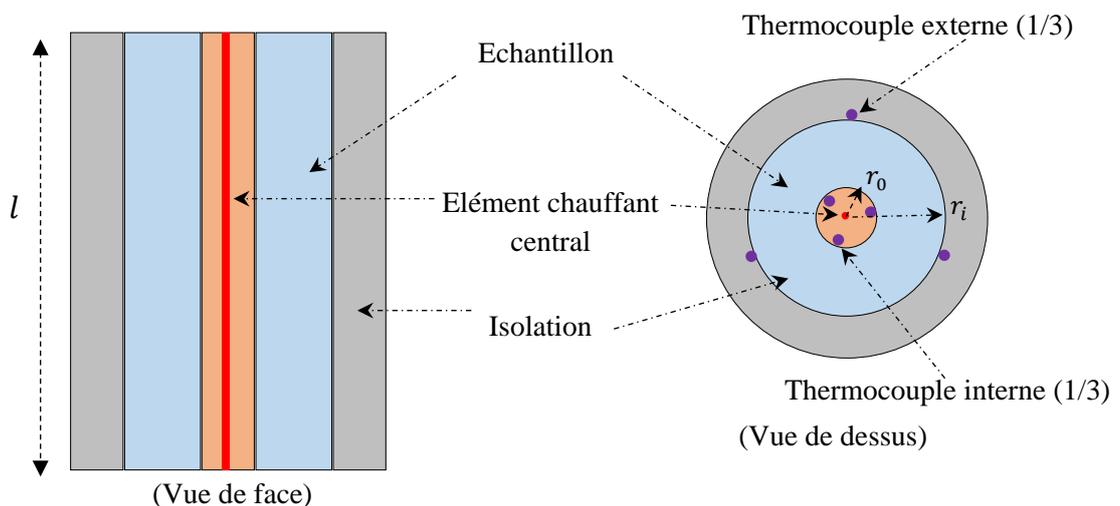


Figure 1.9 : Schéma du principe de la méthode du flux thermique radial.

Normalement, les mesures de température sont effectuées au milieu de l'échantillon où un flux thermique uniforme est généré radialement. Des pertes de chaleur vers le haut et vers le bas peuvent se produire, entraînant une modification de températures des thermocouples. Par

conséquent, pour assurer la précision, il est préférable que la longueur de l'échantillon soit grande par rapport à son rayon. De cette manière, un flux de chaleur radial q est uniforme dans la section médiane de l'échantillon. A l'équilibre thermique, les températures des thermocouples sont mesurées et la conductivité thermique de l'échantillon peut être déterminée par la relation suivante :

$$k = \frac{q \ln(r_0/r_i)}{2\pi l(T_i - T_0)} \quad (1.29)$$

où l est la longueur de l'échantillon de forme cylindrique creuse, T_i et T_0 sont respectivement les températures mesurées à différents rayons r_i et r_0 (Fig. 1.9).

Cette méthode convient aux matériaux solides et liquides ou encore aux échantillons sous formes de fibres. Elle est caractérisée par la bonne précision des mesures sur des échantillons sous haute température. L'inconvénient principal rencontré lorsqu'on utilise cette méthode est, comme pour la plupart des méthodes stationnaires, le temps d'attente relativement long avant de pouvoir effectuer une mesure. Elle nécessite d'avoir des échantillons de grande taille et sous forme cylindrique.

1.5.2.3 Méthode de spectroscopie Raman

La spectroscopie Raman est une technique de spectroscopie moléculaire, en régime permanent, qui repose sur l'interaction de la lumière avec la matière pour obtenir des informations sur la composition ou les caractéristiques de l'échantillon étudié. Elle est utilisée dans un large éventail de recherches en sciences des matériaux, en diagnostic médical, ... Elle permet d'obtenir des informations sur les vibrations intra- et inter-moléculaires, des informations sur les vibrations caractéristiques des réseaux cristallins et des structures moléculaires.

La Spectrométrie Raman a été découvert en 1928 par C.V. Raman, qui a obtenu le prix Nobel de Physique en 1930 [Ram 1928]. Le principe de la spectroscopie Raman repose sur l'effet de la lumière qui interagit avec des molécules d'un matériau (gazeux, liquide ou solide). La majorité des photons est dispersée ou propagée mais l'énergie cinétique des photons excitateurs est conservée (Fig. 1.10). Donc, une matière soumise à une radiation monochromatique (source laser) peut réfléchir, absorber, transmettre ou diffuser l'onde incidente [Per 1993]. L'analyse spectrale de la lumière diffusée montre d'une part une composante intense de même fréquence que l'onde incidente, appelée raie de diffusion Rayleigh et d'autre part, des radiations de

fréquences différentes qui constituent la diffusion Raman [Ram 1928, Sme 1923]. Les fréquences constituant la diffusion Raman sont caractéristiques des espèces moléculaires de l'échantillon illuminé.

Une source de chaleur induit un échauffement superficiel (peu profond sur la couche), tel que, si l'épaisseur de la couche est plus grande que le diamètre de la source de chaleur (faisceau laser), la distribution des isothermes à l'intérieur de la couche est hémisphérique et les pertes de chaleur dans l'air sont négligeables. La conductivité thermique est une relation linéaire simple entre la puissance de chauffage P et la température locale T_j sur la couche, d'où :

$$k_{ech} = \frac{2 \cdot P}{\pi \cdot a \cdot \Delta T'} \quad (1.30)$$

avec $\Delta T' = T_j - T_b$ et T_b représente la température globale, k_{ech} est la conductivité thermique du matériau et a est le diamètre de la source de chauffage. Cette relation a été proposée par Nonnenmacher et al. pour mesurer la conductivité thermique des matériaux conducteurs et des films isolants minces déposés sur les conducteurs par microscopie à sonde à balayage thermique [Non 1992, Pér 1999].

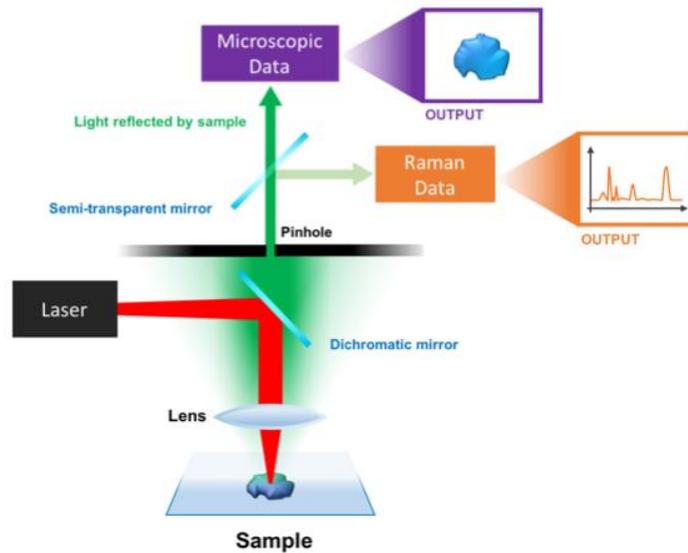


Figure 1.10 : Représentation schématique du principe de fonctionnement du système de mesure de spectrométrie Raman [Ram 2017].

Un étalonnage à faible puissance P , pour ne pas induire de chauffage de surface, est nécessaire pour corréler le décalage du pic Raman à la température locale T_j de la couche. Puis à une puissance de chauffage laser P donnée, il faut mesurer la nouvelle position du pic Raman. En effet, ce décalage du pic Raman avec la température peut être utilisé pour déduire l'élévation de

température locale. Finalement, l'élévation de température locale associée conduit à la connaissance de la conductivité thermique du matériau sous test.

Les avantages de cette technique sont qu'il n'y a pas de préparation de l'échantillon avant la caractérisation et que l'appareillage est moins coûteux.

Les inconvénients sont : une sensibilité au phénomène de fluorescence (échantillon fluorescent), des difficultés dans la mesure de raies de faibles intensités et elle ne peut pas s'appliquer pour des échantillons à faible épaisseur (moins de 100 μm).

1.7 CHOIX D'UNE METHODE DE MESURE DES PROPRIETES THERMO PHYSIQUES

Le choix d'une méthode de mesure des propriétés thermophysiques, en particulier la conductivité thermique, est lié à plusieurs paramètres. En effet, pour une mesure correcte et précise, avant de choisir une telle méthode il faut prendre en compte :

1. L'état de la matière à caractériser d'échantillon (solide, liquide, gaz, poudre, fibres, ...). Certaines méthodes seront très bien adaptées à la mesure sur les solides et difficiles dans d'autre cas (par exemple les liquides ou les gaz).
2. Le type de matériau choisi : thermiquement est un isolants, conducteurs ou semi-conducteur.
3. La nature des propriétés que nous souhaitons caractériser (conductivité thermique, diffusivité, etc...). Certaines méthodes sont dédiées aux mesures de la conductivité thermique seulement (cas des méthodes en régime permanent), alors que d'autres permettront la caractérisation de plusieurs propriétés comme la diffusivité thermique ou l'effusivité thermique.
4. Les conditions dans lesquelles nous souhaitons effectuer les mesures (température, pression, humidité, ...).
5. Les dimensions de l'échantillon (substrat, substrat/film mince, multicouche).
6. Temps convenable pour la caractérisation : si le temps d'exécution des mesures est un paramètre crucial, les méthodes en transitoire sont préférables ; néanmoins, il faut vérifier que leur incertitude de mesure reste acceptable.
7. Le coût acceptable des méthodes de mesure (l'appareillage ou le banc de mesure).

Par ailleurs, il est toujours souhaitable de comparer plusieurs mesures de la même grandeur avec deux méthodes différentes afin s'assurer de la cohérence des résultats.

En résumé, le choix d'une méthode est lié aux besoins spécifiques des travaux menés. Dans le cadre de cette thèse, nous avons choisi la méthode 3ω , qui va être développée dans les chapitres suivants, car elle est bien adaptée à la mesure de la conductivité thermique des matériaux diélectriques (isolants) en films épais et en couches minces avec une grande précision.

1.7 CONCLUSION

Dans la première section de ce chapitre, nous avons présenté des théories sur le transfert de chaleur et les propriétés thermophysiques des matériaux nécessaires qui seront prises en compte dans la suite de ce travail. La deuxième partie a été consacrées aux méthodes permettant de déterminer des propriétés thermophysiques, en particulier la conductivité thermique, des matériaux et qui peuvent être divisées en deux catégories : les méthodes en régime permanent et les méthodes transitoires. Chaque méthode présente des avantages et des inconvénients par rapport aux autres méthodes. Par exemple, les méthodes en régime permanent nécessitent une durée longue de mesure et une grande taille d'échantillon, comme la plaque chauffante gardée, les méthodes de flux de chaleur radiale et d'autres. Par conséquent, les méthodes transitoires se caractérisent par certains avantages par rapport aux méthodes précitées comme le temps nécessaire aux mesures réduit à quelques minutes sur plusieurs dimensions de l'échantillon. Parmi ces méthodes, nous avons présentés la méthode du fil chaud, la méthode du plan chaud et la méthode 3-oméga. En conclusion, le choix d'une méthode dépend de certains paramètres nécessaires et lié aux besoins spécifiques des travaux menés pour une mesure correcte et précise.

Dans le cadre de cette thèse, notre étude s'est portée sur la méthode 3ω , car elle est bien adaptée à la mesure de la conductivité thermique des matériaux massifs et en films minces. Elle sera décrite de façon plus détaillé dans le chapitre suivant de cette thèse.

1.8 BIBLIOGRAPHIE

- [Bar 2009] A. Bar-Cohen and P. Wang,
On-chip hot spot remediation with miniaturized thermoelectric coolers,
Microgravity Science and Technology, Vol. 21: pp. 351–359, (2009).
- [Cah 1990] D.G. Cahill
Thermal conductivity measurement from 30 to 750 K : the 3w method,
Review of Scientific Instrument. Vol. 61(2): pp 802-808, (1990).
- [Cah 1994] D. G. Cahill, M. Katiyar, and J. R. Abelson,
Thermal conductivity of a-Si:H thin films,
Physical Review B, Vol. 50: pp 6077-6081, (1994).
- [Cah 2003] D. G. Cahill, W. K. Ford, K. E. Goodson, G. D. Mahan, A. Majumdar,
H. J. Maris, R. Merlin, and S. R. Phillpot,
Nanoscale thermal transport,
Journal of Applied Physics, Vol. 93: pp. 793–818, (2003).
- [Cal 1959] J. Callaway,
Model for lattice thermal conductivity at low temperatures.
Phys. Rev., Vol 113: pp. 1046–1051, (1959).
- [Com 2001] E. Coment,
Contribution à la mise au point de techniques de mesures de propriétés thermo
physiques par sondes à chocs,
Thèse de doctorat, école supérieur d'arts et métiers, (2001).
- [Con 2020] <http://rsp-rpp.com/fr/conductivimetre-effusivimetre-fil-chaud-option-plan-et-anneau-chaud-et-tige-chaude>
- [Coq 2006] R. Coquard, D. Baillis, D. Quenard,
Experimental and theoretical study of the hotwire- method applied to low-
density thermal insulators.
International Journal of Heat and Mass Transfer, Vol. 49 (23-24): pp. 4511-
4524, (2006).
- [Dam 2004] C. Dames and G. Chen,
Theoretical phonon thermal conductivity of Si/Ge super lattice nanowires,
Journal of Applied Physics, Vol. 95: pp. 682–693, (2004).
- [Deg 1986] A. Degiovanni,
Une nouvelle technique d' identification de la diffusivité thermique par la
méthode flash.
Revue Phys. Appl. Vol. 21, pp. 229-237, (1986).
- [Dep 1997] F. Deponte, P. Phillippo,
Design criteria for the hot plate apparatus, Heat transmission measurement in
thermal insulations,
ASTM STP 544, American society for testing and materials, pp. 97-117.
(1997).
- [Din 1994] R.B. Dinwiddie, R.J. Pylkki, P.E. West,
Thermal conductivity contrast imaging with a scanning thermal microscope,
Thermal Conductivity 22 ed. T.W. Wong (Technomic Publishing Co.,
Lancaster), pp. 668-677, (1994).

- [Dub 2009] Y. Dubi and M. Di Ventra,
Fourier's law: Insight from a simple derivation,
Physical Review E, Vol. 79, (2009).
- [Ezb 1986] H.Ezbakhe,
Caractérisation thermiques et mécaniques des matériaux poreux utilisés
comme isolants simples ou porteurs,
Thèse de doctorat, UCPB Lyon 1, (1986).
- [Fou 1822] J.-B.-J. Fourier
Théorie analytique de la chaleur
Book : Paris, Chez Firmin Didot, Père et Fils, (1822).
- [Fra 1993] R. Frank, V. Drach, J. Fricke
Determination of thermal conductivity and specific heat by a combined
 3ω /decay technique,
Review of Scientific Instruments, Vol. 64 (3): pp. 760-5, (1993).
<https://doi.org/10.1063/1.1144156>
- [Fto 2014] H. Ftouni
Transport thermique dans des membranes très minces
de SiN amorphe
thèse de doctorat, Université de Grenoble, (2014).
<https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00995424>
- [Gau 2013] S. Guathier, A. Giani, P. Combette
Gas thermal conductivity measurement using the three-omega method
Sensors and Actuators A: Physical, Vol 195: pp 50-55, (2013).
- [Gom 1999] S. Gomès, N.Trannoy and P.Grossel, D.C
Thermal Microscopy: Study of the thermal exchanges between a probe and a
sample,
Meas. Sc.Technol. Vol. 10: pp. 805-811, (1999).
- [Hay 2002] B. Hay, J.R. Filtz, J.-C. Batsale,
Mesure de la diffusivité thermique par la méthode flash.
Techniques de l'Ingénieur. R 2995. (2002).
- [Her 2010] J.-S. Heron
Transport des phonons à l'échelle du nanomètre
Thèse de doctorat, Université de Joseph Fourier – Grenoble I, (2010).
- [Hic 1993] L. D. Hicks and M. S. Dresselhaus,
Effect of quantum-well structures on the thermoelectric figure of merit,
Phys. Rev. B, Vol. 47: pp. 12727–12731, (1993).
- [Hla 1990] J. Hladik,
Métrologie des propriétés thermiques des matériaux,
Collection mesures physiques, Paris : Masson, (1990).
- [Iye 2009] A.S. Iyengar and A.R. Abramson,
Comparative radial heat flow method for thermal conductivity measurement
of liquids,
Journal of Heat Transfer, Vol. 131: pp. 064502, (2009).
- [Jan 2010] Y. Jannot, V. Felix, and A. Degiovanni,
A centered hot plate method for measurement of thermal properties of
thin insulating materials,
Measurement Science and Technology, Vol. 21: pp 035106, (2010).

- [Jij 2009] L. M. Jiji
Heat Conduction,
Book: Springer-Verlag Berlin Heidelberg, (2009).
- [Kit 1983] C. Kittel,
Physique de l'état solide,
Dunod université, 5^{ème} éd., (1983).
- [Kle 1984] P.G. Klemens,
Theory of thermal conduction in dielectric solids: Effects of radiation damage,
Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Vol. 1: pp. 204 – 208, (1984).
- [Lau 1984] M.J. Laubitz,
Axial heat flow method of measuring thermal conductivity,
Compendium of thermophysical property measurement methods, Vol. 1, pp 11-60,
Edited by K.D.Magelic, A.Cezailigan and V.E.Peletsky, plenum press, New York, (1984).
- [Lef 2004] S. Lefèvre,
Modélisation et élaboration des métrologies de microscopie thermique à sonde locale résistive,
Thèse de doctorat, Université de Poitiers, (2004).
- [Mat 1985] J.P. Mathieu, A. Kastler et P. Fleury
Dictionnaire de la physique.
2^{ème} éd. Masson Eyrolles (1985).
- [Mis 1965] A. Missenard
Conductivités thermiques des solides, liquides, gaz et de leurs mélanges.
Eyrolles (1965).
- [Moo 1996] I.K. Moon, Y. H. Jeong, and S. I. Kwun
The three omega technique for measuring dynamic specific heat and thermal conductivity of a liquid or solid,
Review of Scientific Instruments, Vol. 67(1): pp 29-35, (1996).
- [Non 1992] M. Nonnenmacher and H. K. Wickramasinghe
Scanning probe microscopy of thermal conductivity and subsurface properties
Appl. Phys. Lett. Vol. 61(2): pp.168 (1992). <https://doi.org/10.1063/1.108207>
- [Par 1961] W.J. Parker, R.J. Jenkins, C.P. Butler, G.L. Abbott,
Flash method of determining thermal diffusivity, heat capacity and thermal conductivity.
J. Appl. Phys., Vol. 32(9) : pp. 1679-1684, (1961). [DOI:10.1063/1.1728417](https://doi.org/10.1063/1.1728417)
- [Per 1993] S. Perkowitz,
Optical characterization of semiconductors
Academic press, (1993).
- [Pér 1999] S. Périchon et V. Lysenko et Ph. Roussel et B. Remaki et D. Barbier,
Measurement of porous silicon thermal conductivity by micro-Raman scattering
Journal Of Applied Physics, Vol. 86(8): pp. 199-200, (1999).
[DOI: 10.1063/1.371424](https://doi.org/10.1063/1.371424)
- [Pon 1987] F. De Ponte, C. Langlais, J. Boulant Et S. Klarsfeld

- Reference guarded hot plate apparatus for the determination of steady-state thermal transmission properties in agreement with the new international standard ISO 8302.
Low temperature applications, Proc. 17th International Congress of Refrigeration. Vienne (1987).
- [Pon 1988] F. De ponte, c. Langlais, j. Boulant et s. Klarsfeld
Reference guarded hot plate apparatus for the determination of steady-state thermal transmission properties in agreement with the new international standard ISO 8302.
Thermal Conductivity 19, Ed. DN Yarbrough, Plenum Press (1988).
- [Ram 1928] C. V. Raman and K. S. Krishnan,
A new type of secondary radiation,
Nature, Vol. 121 (3048) : pp. 501-502, (1928). [DOI: 10.1038/121501c0](https://doi.org/10.1038/121501c0)
- [Ram 2017] Confocal Raman Microscopy
<http://www.carithansen.com/2017/11/science-microscopy.html>
- [Riv 2015] L. Rivière,
Analyse des mécanismes de conduction thermique dans les composites structuraux PEEK:particules submicroniques d'argent,
Thèse de doctorat, Université Toulouse 3 Paul Sabatier, (2015)
- [Rob 1994] S.F. Robert.
Thermal analysis of materials.
Book, éditeur : New York , Marcel Dekker, (1994).
- [Sal 2001] D. Salmon,
Thermal conductivity of insulations using guarded hot plates, including recent developments and sources of reference material,
Measurement Science and Technology, Vol. 12: pp 89-98, (2001).
- [Sha 2011] A. Shakouri,
Recent developments in semiconductor thermoelectric physics and materials,
Annual Review of Materials Research, Vol. 41: pp. 399–431, (2011).
- [Sie 2002] R. Siegel and J. Howell
Thermal Radiation Heat Transfer,
Book: Published by Taylor & Francis, 4th edition, (2002).
- [Sme 1923] A. Smekal,
Zur Quantentheorie der Dispersion,
Naturwissenschaften, Vol. 11 : pp. 873-875, (1923).
- [Som 2012] S. C. Somé,
Comportement thermomécanique des enrobés tièdes et de l'interface bitume-granulat,
Thèse de doctorat, Université de Nantes, French. (2012). <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00855431>
- [Ste 1983] G. R. Steward
Measurement of low-temperature specific heat,
Review of scientific instrument, Vol. 58 (1): pp. 1-11, (1983).
- [Tam 1990] J.Tama,
Mise au point d'un appareillage de mesure de la conductivité thermique des matériaux de construction,

- Mémoire d'Ingénieur, ENSPY (1990).
- [Tri 2004] T. Tritt,
Thermal conductivity: theory, properties, and applications
Book: Kluwer Academic / Plenum Publishers, New York, (2004).
ISBN 0-306-48327-0
- [Tye 2005] R. P. Tye, L. Kubicar, and N. Lockmuller,
The development of a standard for contact transient methods of
measurement of thermophysical properties,
International Journal of Thermophysics, Vol. 26: pp 1917-1938, (2005).
- [Uma 1997] User's Manual Addendum, Specifications Scanning Thermal Microscope
Option, Topometrix Corporation, (1997).
- [Woo 1957] W. Woodside
Analysis of errors due to edge heat loss in guarded hot plates.
ASTM, STP Vol. 217, pp. 49-62, (1957).
- [Zha 1993] X. Zhang, A. Degiovanni, D. Maillet,
Hot-wire measurement of thermal conductivity of solids: a new approach,
High Temperatures,
High Pressures, Vol. 25: pp. 577-584, (1993).

Chapitre 2 : Description théorique de la méthode 3-oméga

Chapitre 2 : Description théorique de la méthode 3-oméga.

Sommaire

2.1 INTRODUCTION	35
2.2 PRINCIPE DE LA METHODE 3ω	36
2.3 MODELE THERMIQUE « MODELE DE CAHILL »	44
2.3.1 Elément chauffant unidimensionnel (1D).....	44
2.3.1.1 Ligne de chauffe à l'intérieur d'un milieu infini (solution 1D).....	44
2.3.1.2 Ligne de chauffe sur la surface d'un milieu semi-infini	50
2.3.2 Elément chauffant bidimensionnel (solution 2D).....	52
2.3.2.1 Effet de la largeur finie de la ligne de chauffe (solution 2D).....	52
2.3.2.2 Solution approximative	55
2.4 REGIMES THERMIQUES	57
2.4.1 Régime linéaire	58
2.4.2 Régime planaire	64
2.5 CONCLUSION	66
2.6 BIBLIOGRAPHIE	68

2.1 INTRODUCTION

Le chapitre précédent était dédié à la présentation des notions sur le transfert de chaleur dans les solides ainsi qu'aux principales méthodes de mesure de la conductivité thermique trouvées dans les littératures. Nous avons vu que les méthodes statiques sont plus sensibles aux pertes par radiation par rapport aux méthodes dynamiques. Ces dernières permettent de mesurer le plus souvent la diffusivité et non la conductivité thermique. Dans ce travail, parmi toutes les méthodes de mesure de la conductivité thermique, nous avons choisi la méthode 3-oméga. Pour cela, nous consacrons ce chapitre à la description théorique de cette technique (3ω).

A l'origine, la technique 3-oméga (3ω) a été développée pour mesurer la diffusivité thermique des filaments métalliques utilisés dans les ampoules à incandescence [Cor 1912]. L'objectif était de comprendre les durées de vie observées des lampes à filament métallique par rapport à celles à filament de carbone [Ebe 1908]. Plus tard, la méthode a été appliquée pour mesurer la diffusivité thermique des liquides [Bir 1987] et des matériaux solides diélectriques massifs [Moo 1996], en chauffant indirectement l'échantillon à l'aide d'un ruban métallique mince qui sert à la fois comme élément chauffant et comme thermomètre en contact direct avec le matériau sous test.

Par conséquent, la première utilisation signalée de la méthode 3ω pour mesurer la conductivité thermique des matériaux massifs a été faite par Cahill [Cah 1987, Cah 1990]. Elle utilise une source de chaleur de puissance périodique qui permet de confiner l'onde thermique à l'intérieur de l'échantillon.

Cette méthode se situe entre les méthodes à régime variable et les méthodes à régime permanent et peut être qualifiée de régime harmonique. La perturbation thermique à laquelle sera soumis le système est sinusoïdale. Cette méthode se rattache aux méthodes dites 'sondes thermiques' car la source de chaleur, issue du ruban métallique, est déposée directement dans l'échantillon étudié.

La technique 3ω qui possède des points communs avec la méthode du fil supposé infiniment long, a été introduite par Cahill en 1990 [Cah 1990]. Dans cette méthode, le ruban métallique permet à la fois d'engendrer la source de chaleur et donc la perturbation thermique et de mesurer la température à la surface de l'échantillon.

Cette technique a déjà été utilisée pour mesurer la conductivité thermique d'une grande variété de matériaux, y compris les diélectriques [Lee 1997], les échantillons poreux [Ges 1997], les matériaux nanostructurés [Pen 2018], tels que des nanotubes de carbone [Hu 2006] et aussi pour la caractérisation des matériaux à faible conductivité thermique utilisés dans les MEMS [Hop 2009].

Elle est utilisable non seulement pour la mesure de la conductivité thermique mais également pour la mesure de la capacité thermique de toutes sortes d'échantillons [Ste 1983, Fra 1993]. En effet, des échantillons solides [Cah 1990], liquides [Moo 1996] et gazeux [Gau 2013] peuvent être caractérisés en changeant la forme de l'élément chauffant. Dans ce chapitre, dans un premier temps, le principe de cette méthode sera présenté, puis nous nous intéresserons au modèle thermique proposé et enfin nous verrons les différents régimes thermiques du modèle proposé.

2.2 PRINCIPE DE LA METHODE 3ω

La méthode 3ω utilise une ligne métallique [Cah 1990, Bir 1987], nommée aussi élément chauffant, qui sert simultanément à perturber thermiquement le système et à mesurer les variations de température en un point remarquable du système. L'élément chauffant est constitué d'une couche mince métallique déposée sur un échantillon à l'aide des techniques de photolithographie (microélectronique) [Fra 2004].

La ligne chauffante est une bande métallique étroite de largeur $2b$ (typiquement $4 < 2b < 100\mu\text{m}$) et de longueur l , avec 2 ou 4 contacts (pads). Les pads servent pour les amenés de courants (I_+, I_-) et pour les prises de potentiels (V_+, V_-) et L est la distance entre les prises de mesure de tensions (Fig. 2.1).

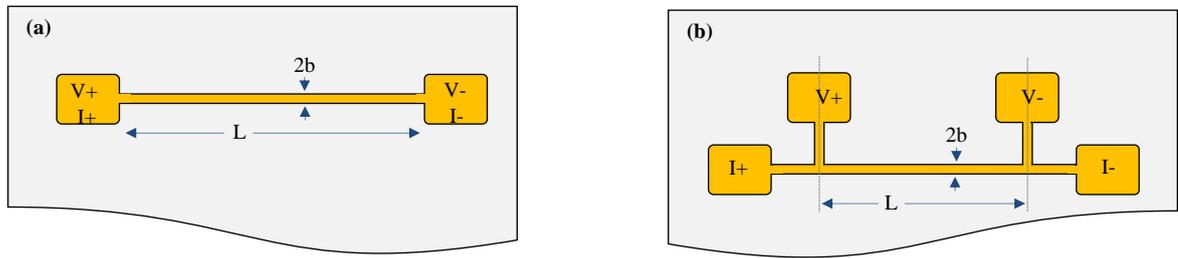


Figure 2.1 : Schémas pour deux lignes métalliques, chauffantes, (a) à 2 contacts (pads) et (b) à 4 contacts. Les contacts sont les connexions pour les amenées de courant (I+, I-) et pour les prises de potentiel (V+,V-).

La ligne de chauffe se comporte comme une résistance R (en Ω) dont la valeur s'écrit conformément à la loi d'ohm pour un conducteur uniforme :

$$R = \rho \frac{l}{A} \quad (2.1)$$

où l et A sont respectivement la longueur de la ligne, exprimé en mètre, et la section transversale du conducteur, exprimé en m^2 , et ρ est la résistivité en $\Omega.m$ qui reste constante le long de la longueur l .

Ainsi, un courant sinusoïdal $I(t)$ de fréquence angulaire ω et d'intensité I_0 injecté aux bornes de la résistance génère, par effet joule, une source de chaleur qui va échauffer la résistance et l'échantillon sous test à une pulsation angulaire 2ω (transformation d'énergie électrique en énergie thermique sous forme de chaleur) (Fig. 2.2). D'un point de vue physique, ce phénomène est l'effet de production de chaleur qui existe lors du passage du courant électrique dans un conducteur présentant une résistance. Il est principalement dû au fait que les électrons, en circulant dans le matériau conducteur, font vibrer les atomes qui le constituent. Pour cette raison, Il se manifeste par une augmentation de l'énergie thermique du conducteur et de sa température.

$$I(t) = I_0 \cos(\omega t) = \text{Re}(I_0 e^{i\omega t}) \quad (2.2)$$

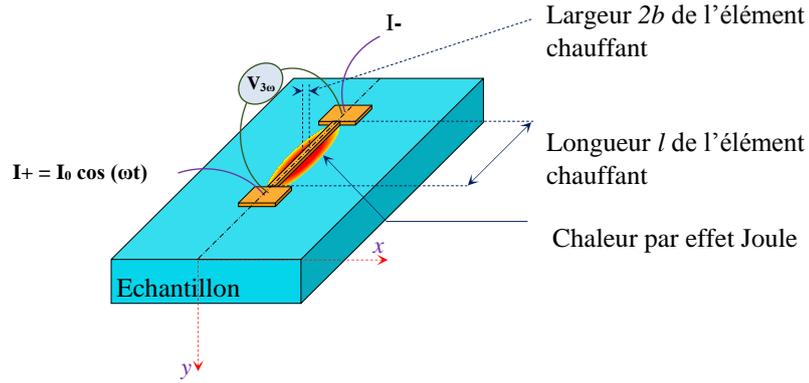


Figure 2.2 : Ligne de chauffe à 2 contacts déposée sur la surface d'un échantillon.

La puissance dissipée $Q(t)$, par effet Joule, dans la résistance de chauffe a une fréquence deux fois plus élevée que celle du courant injecté et elle peut être divisée en deux, une partie constante qui ne dépend pas du temps, notée P_{DC} , ainsi que d'une partie alternative qui a la même amplitude que la précédente et qui oscille avec une fréquence double de celle du courant appliqué, notée $P_{AC}(t)$,

$$Q(t) = P = R_0 \cdot I^2(t) = R_0 I_0^2 \cos^2(\omega t) = \frac{R_0 I_0^2}{2} (1 + \cos(2\omega t)) \quad (2.3)$$

où I_0 et R_0 représentent l'amplitude du courant et la résistance à température ambiante T_0 , respectivement, ω est la pulsation exprimé en rad.s^{-1} (sachant que $\omega = 2\pi f$, f étant la fréquence en Hz).

On pose

$$P_{DC} = \frac{R_0 I_0^2}{2} \quad \text{et} \quad P_{AC}(t) = \frac{R_0 I_0^2}{2} \cos(2\omega t) \quad (2.4)$$

P_{DC} est aussi appelé composante d'oscillation DC ou puissance rms (P_{rms} : root mean square power) telle que on peut écrire :

$$\bar{P} = \frac{1}{\tau} \int_0^\tau P(t) \cdot dt = \frac{1}{2} I_0^2 \cdot R_0 \left(\frac{\omega}{2\pi}\right) \int_0^{\frac{\omega}{2\pi}} (1 - \cos(2\omega t)) \cdot dt$$

Où τ est la période du courant sinusoïdal, donc

$$P_{\text{rms}} = \frac{R_0 I_0^2}{2} \quad (2.5)$$

La puissance dissipée par la ligne de chauffe provoque une augmentation de la température de cette dernière. Les variations de température de l'élément de chauffe posé sur la surface de l'échantillon ont une forme similaire à cette puissance Q (Fig. 2.3), à laquelle un déphasage sera cependant ajouté, uniquement, sur la composante en 2ω . Ce dernier est lié à la conduction thermique dans le substrat. Cette température s'écrit donc sous la forme suivante :

$$\Delta T(r,t) = \Delta T_{\text{DC}}(r) + |\Delta T_{\text{AC}}(r,t)| \cdot \cos(2\omega t + \emptyset) \quad (2.6)$$

avec
$$\Delta T_{\text{DC}}(r) = T_{\text{DC}}(r) - T_0 \quad (2.7)$$

$$\Delta T_{\text{AC}}(r,t) = |\Delta T_{\text{AC}}(r,t)| \cdot \cos(2\omega t + \emptyset) \quad (2.8)$$

ΔT_{DC} est l'élévation moyenne de température par rapport à la température ambiante initiale T_0 .

ΔT_{AC} est l'oscillation de la température due à la puissance d'oscillation P_{AC} .

\emptyset est le déphasage entre les composantes de la puissance et de la température à la fréquence 2ω .

L'amplitude ΔT_{AC} et le déphasage \emptyset de l'oscillation de température sont liés. Ils dépendent des propriétés de l'échantillon, de la conductivité thermique de l'échantillon mais aussi de la géométrie de l'élément chauffant, de la capacité thermique ainsi que de la pulsation d'excitation.

Le tracé de la variation de la température ΔT de la ligne de chauffe en fonction du temps se représente sous la figure suivante :

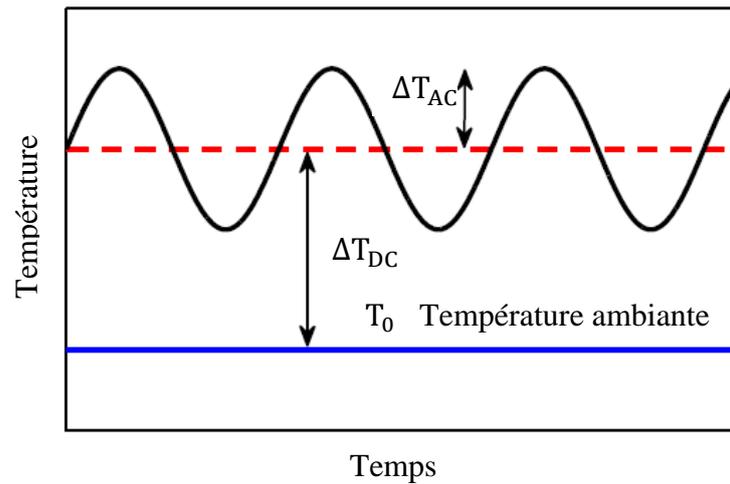


Figure 2.3 : L'élévation de la température de l'élément chauffant en fonction du temps.

En effet, la résistance étant une couche mince métallique, elle subit l'effet thermo-résistif et elle évolue linéairement avec la température. Dans le cas d'un métal, la variation de la résistance est linéaire sur une plage de température assez large [Mic 2001]. Cet effet physique a largement été mis en œuvre, notamment, dans des capteurs de température comme les thermo-résistances. Donc, la résistance oscille aussi à la pulsation 2ω et suit une loi de variation de la forme suivante:

$$R = R_0(1 + \beta_h \Delta T) \quad (2.9)$$

R_0 est la résistance à la température T_0 et β_h le Coefficient de Température en Résistance (TCR), TCR : Temperature Coefficient of Resistance.

Le coefficient β_h détermine, en fait, la variation relative de la résistance de la bande chauffante, en contact avec l'échantillon, en fonction de la température [Erd 1954], et il s'écrit sous la forme :

$$\beta_h = \frac{1}{R_0} \frac{dR}{dT} \quad (2.10)$$

Le métal utilisé pour réaliser la bande chauffante est sélectionné pour avoir un coefficient de température en résistance β_h le plus élevé possible. Pour cette utilisation, le nickel et l'or sont particulièrement bien adaptés (Fig. 2.4).

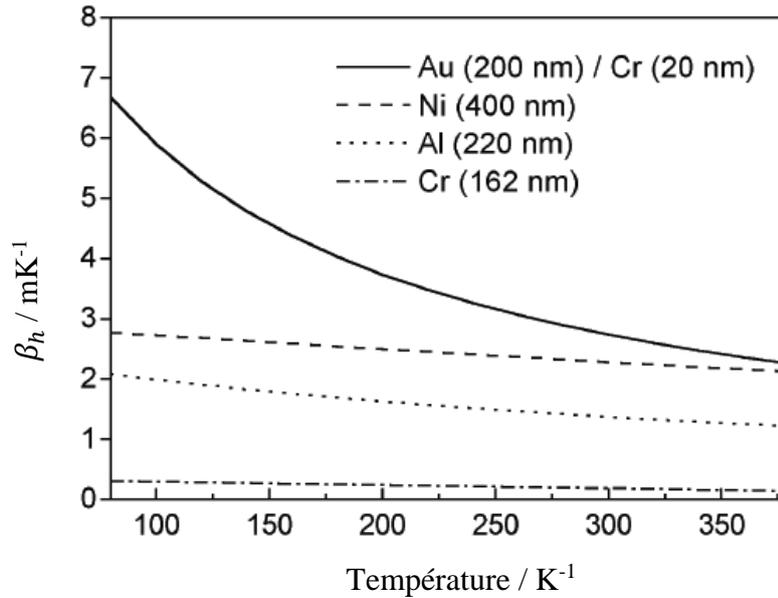


Figure 2.4 : Dépendance en température du coefficient β_h pour des résistances fabriquées à partir d'or + chrome, nickel, d'aluminium et de chrome [Jac 2003].

D'après la loi d'Ohm, la tension V aux bornes de la résistance de chauffe est donnée par la relation $V = R \cdot I$, tel que :

$$V = I_0 R_0 \cos(\omega t) + \frac{1}{2} I_0 R_0 \beta_h \Delta T_{DC} \cos(\omega t + \phi) + \frac{1}{2} I_0 R_0 \beta_h |\Delta T_{AC}| \cos(3\omega t + \phi) \quad (2.11)$$

On remarque que cette équation (2.11) donne naissance à une composante oscillant à la fréquence 3ω et d'autres à la fréquence ω . Le premier terme, typiquement, est plus grand que le terme suivant, et il ne contient aucune information sur l'amplitude ΔT_{AC} et la phase ϕ de l'oscillation de température ΔT . Le second terme ne peut être utilisé pour mesurer ΔT_{AC} et ϕ car sa pulsation est la même que le terme précédent. Ainsi, seul le troisième terme du signal harmonique peut nous renseigner sur ΔT_{AC} et ϕ . La mesure de cette composante (amplitude des variations de tension et déphasage) permet de remonter aux propriétés thermo-physiques du substrat. L'exploitation de ce 3^{ème} harmonique est à l'origine du nom de la méthode. L'amplitude de ce signal $V_{3\omega}$ est :

$$|V_{3\omega}| = \frac{1}{2} I_0 R_0 \beta_h |\Delta T_{AC}| \quad (2.12)$$

On remarque que cette composante à 3ω est considérée comme étant mille fois (3 ordres de grandeur) plus faible que la tension à ω . Dans la pratique, pour la mesure de cette composante on utilise un montage électrique appelé « à suppression du mode commun », qui permet d'annuler la contribution de la tension en provenance du générateur basses fréquences sur la mesure par un ajustement d'une résistance variable. Dans ce but, deux montages sont communément utilisés (Fig. 2.5) : un montage basé sur le pont de Wheatstone et un montage qui est qualifié de différentiel [Cah 1990, Bir 1987].

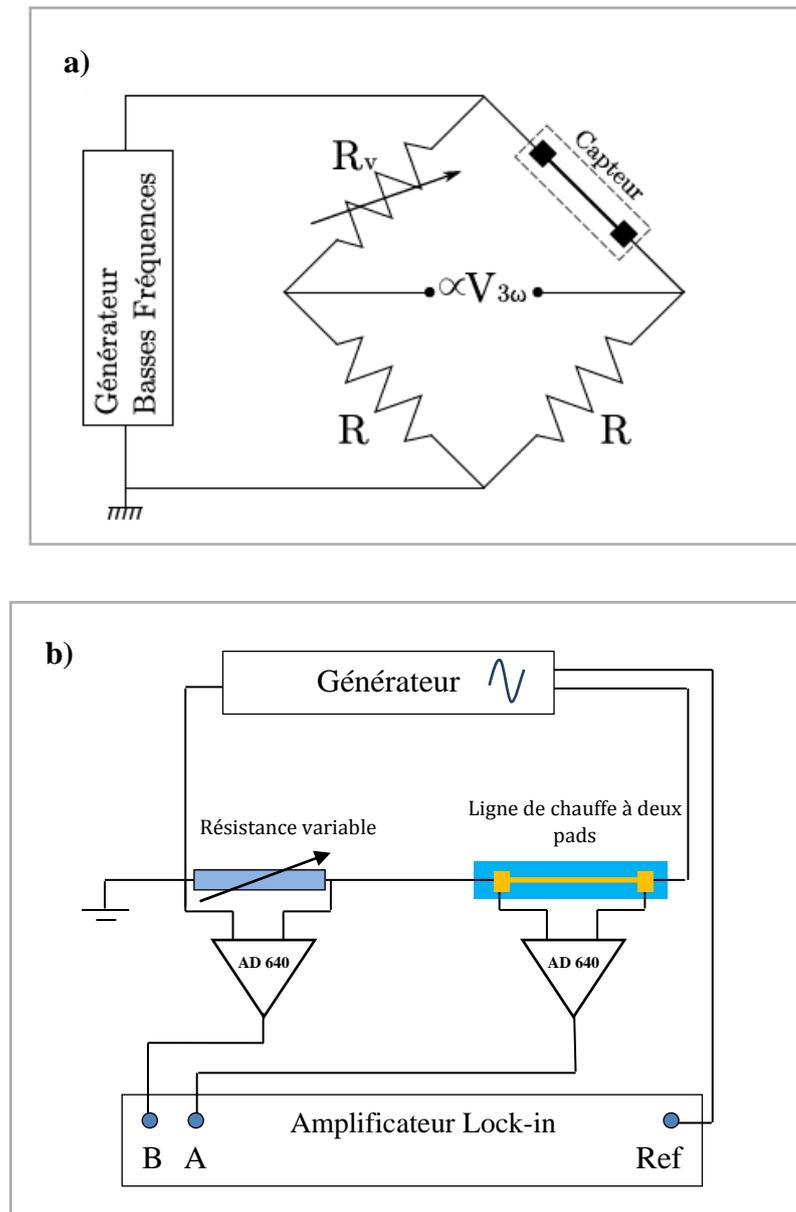


Figure 2.5 : Montages électriques utilisés pour la suppression du mode commun, qui permet d'annuler la contribution de la tension en provenance du générateur, a) à pont de Wheatstone et b) à 2 amplificateurs différentielles.

Une détection synchrone (Lock-in amplifier) est un appareil dédié à la mesure des composantes des différents harmoniques d'un signal par rapport à un signal de référence, de même pulsation et en phase avec le courant injecté. Le mode opératoire sera expliqué dans la suite de ce chapitre.

Les paramètres les plus importants de la méthode 3ω sont, donc, l'amplitude et la phase de la composante de température en 2ω de la ligne métallique déposée sur un échantillon sous test. Ils sont variables en fonction de la fréquence d'excitation, grâce au temps de diffusion thermique finie de l'échantillon, noté τ_D , qui représente le temps de diffusion thermique pour qu'une onde thermique se propage à une distance L , tel que :

$$\tau_D = \frac{L^2}{D} \quad (2.13)$$

où $D = \frac{k}{\rho c_p}$ est la diffusivité thermique exprimé en m^2/s , qui dépend de la conductivité thermique k (en W/mK), de la capacité calorifique volumique C_p à pression constante (en J/kgK) et ρ la masse volumique exprimé en Kg/m^3 .

En outre, la fréquence angulaire de diffusion thermique est donnée par la relation suivante :

$$\omega_D = \frac{2\pi}{\tau_D} = \frac{2\pi D}{L^2} \quad (2.14)$$

Dans le cas limite de la diffusion thermique infinie, c'est à dire une capacité calorifique nulle, la chaleur se propage avec une vitesse infinie de sorte que la température tout au long de l'échantillon reste constante. Ce qui conduit à des oscillations non amorties de la température avec un déphasage nul (par rapport à la puissance AC).

Inversement, une diffusivité thermique nulle, c'est à dire une capacité calorifique volumique infinie, veut dire une propagation de chaleur quasi nulle, avec une amplitude d'oscillation nulle et un retard de phase tend vers $-\pi/2$.

Afin de construire une approche d'un modèle mathématique idéale, pour une source de chaleur déposée sur la surface d'un échantillon, il est utile d'étudier la géométrie (dimensions) et la variation de température dans tout l'espace entourant cet élément chauffant.

2.3 MODELE THERMIQUE « MODELE DE CAHILL »

La grandeur la plus importante dans la méthode 3-oméga est la température de l'élément de chauffe et la phase de cette température, par rapport au courant. Il convient alors d'élaborer selon la géométrie de la source de chaleur un modèle reliant les variations de température aux propriétés thermiques du substrat. Le modèle retenu est celui de Cahill. Celui-ci prend en compte les hypothèses suivantes :

- La source de chaleur est infiniment longue, sa capacité calorifique est nulle et sa conductivité thermique infinie.
- Le milieu entourant cette source est supposé infini.

Dans cette section, certaines hypothèses théoriques sont faites pour trouver une relation entre la chaleur dissipée et la conductivité thermique du substrat.

Tout d'abord, nous supposons qu'il existe un contact parfait entre l'élément chauffant et le substrat. Puis, pour simplifier le calcul, on considère une ligne de chauffe 1D infini. Cela provoque un profil de température cylindrique autour de cette ligne infiniment longue. Ensuite, la moitié de ce profil est prise en considération en supposant qu'il n'y ait aucune forme de transfert de chaleur (conduction, convection et rayonnement) du côté contact avec l'air.

2.3.1 Élément chauffant unidimensionnel (1D)

2.3.1.1 Ligne de chauffe à l'intérieur d'un milieu infini

Nous commençons par considérer le champ de température dans un cylindre circulaire infini avec un flux de chaleur périodique, sinusoïdal, à l'intérieur, semblable à un élément chauffant 1D enfermé dans un milieu solide infini, ayant une conductivité thermique k et une diffusivité thermique D (Fig. 2.6) [Car 1959, Cah 1990].

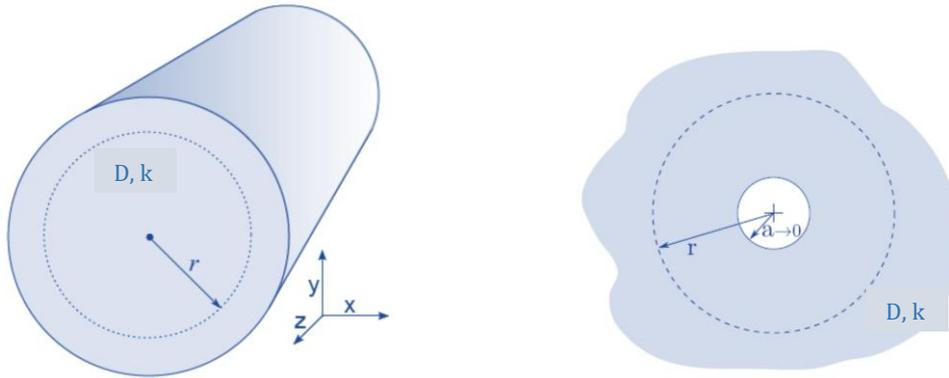


Figure 2.6 : Géométrie pour le modèle de ligne de chauffe, sous forme cylindrique de longueur l infini et de rayon r , en milieu infini [Hän 2013].

On utilise l'équation de conduction de la chaleur qui se résout en utilisant un système de coordonnées cylindriques donnée par Carslaw and Jaeger [Car 1959] :

$$k \left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial}{\partial r} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} \right] \Delta T_{(r,z,t)} - \rho C_p \frac{\partial \Delta T_{(r,z,t)}}{\partial t} = 0 \quad (2.15)$$

En supposant que le gradient de température est circonférentiel ou axial (dépend uniquement de la coordonnée radiale r), dans cette géométrie, le flux de chaleur se diffuse uniquement radialement vers l'extérieur à partir de la surface incurvée de l'élément chauffant. Dans ce cas, l'équation de conduction de la chaleur (Eq. 2.15) se réduit à la forme :

$$\left[\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \Delta T_{(r,t)}}{\partial r} \right) \right] - \frac{1}{D} \frac{\partial \Delta T_{(r,t)}}{\partial t} = 0 \quad (2.16)$$

avec

$$D = \frac{k}{\rho C_p}$$

$\Delta T_{(r,t)}$ est la température totale d'équilibre dans le cylindre et D représente la diffusivité thermique du milieu.

On remarque dans l'équation 2.6 que la température s'écrivait sous la forme d'une somme de la température de l'élévation constante $\Delta T_{DC}(r)$ due à la partie constante de la puissance

dissipée et des oscillations de température $\Delta T_{AC}(r, t)$, par rapport une température d'équilibre initiale T_0 (température ambiante). Supposons que $\Delta T(r, t)$ s'écrit sous la forme :

$$\Delta T(r, t) = \Delta T_{DC}(r) + \Delta T_{AC}(r, t) \quad (2.17)$$

avec

$$\Delta T_{AC}(r, t) = \Delta \theta_{AC}(r) \cdot \cos(2\omega t)$$

En combinant les deux équations (2.17) et (2.16), on obtient une équation différentielle liant les composante AC et DC de la température, tel que :

$$\begin{aligned} \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \Delta T_{AC}(r, t)}{\partial r} \right) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \Delta T_{DC}(r)}{\partial r} \right) &= \frac{1}{D} \left[\frac{\partial \Delta T_{AC}(r, t)}{\partial t} + \frac{\partial \Delta T_{DC}(r)}{\partial t} \right] \\ \frac{1}{D} \left[\frac{\partial \Delta T_{AC}(r, t)}{\partial t} \right] - \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \Delta T_{AC}(r, t)}{\partial r} \right) &= \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \Delta T_{DC}(r)}{\partial r} \right) = 0 \end{aligned} \quad (2.18)$$

Il est clair que la dérivée temporelle de la composante DC de la température $\Delta T_{DC}(r)$ est nulle. De même, la dérivée spatiale $\Delta T_{DC}(r)$ égale à zéro, car la composante continue DC et la composante oscillante AC de la température sont indépendants. Pour vérifier cela, considérant le cas où la ligne est alimentée uniquement en courant continu. La puissance dissipée n'a qu'une composante continue et la densité de flux thermique $Q(r)$ a une composante radiale qui diminue avec un facteur de $1/r^2$, donc :

$$Q(r) = \frac{Q_0}{r^2} \quad (2.19)$$

La loi de Fourier devient dans ce cas :

$$\frac{Q_0}{r^2} = -k \frac{\partial \Delta T_{DC}(r)}{\partial r}$$

En appliquant les conditions aux limites, quand on s'éloigne de la source de chaleur, la température décroît vers 0 (c'est à dire quand $r \rightarrow \infty$ on à $\Delta T_{DC}(\infty) = 0$).

$$\Delta T_{DC}(r) = \frac{1}{r} \frac{Q_0}{k} \quad (2.20)$$

Alors, la dérivée spatiale de la température DC dans l'équation 2.18 disparaît et l'équation se réduit et devient :

$$\frac{1}{D} \left[\frac{\partial \Delta T_{AC}(r,t)}{\partial t} \right] = \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \left(r \frac{\partial \Delta T_{AC}(r,t)}{\partial r} \right) \quad (2.21)$$

Pour résoudre cette dernière, il est nécessaire de faire une séparation de variables selon l'évolution temporelle et la répartition spatiale :

$$\Delta T_{AC}(r, t) = g(r) \cdot f(t) \quad (2.22)$$

Dans cette expression $g(r)$ dépend uniquement de la position dans l'espace des oscillations de température et $f(t)$ est l'évolution temporelle. En supposant que les deux fonctions sont décorrélées, on peut écrire le champ d'oscillation de température sous la forme d'une fonction harmonique :

$$g(r) = \Delta \Theta_{AC}(r)$$

et

$$f(t) = \cos(2\omega t) = \text{Re} [\exp(2i\omega t)]$$

donc :

$$\Delta T_{AC}(r,t) = \text{Re}[g(r) \cdot \exp(2i\omega t)] \quad (2.23)$$

La combinaison des équations 2.22 et 2.23 permet de résoudre l'équation différentielle dont les combinaisons linéaires sont des fonctions de Bessel modifiées de première et deuxième espèce:

$$\text{Re} \left[\frac{\partial^2 g(r)}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial g(r)}{\partial r} - \frac{2i\omega}{D} g(r) \right] = 0 \quad (2.24)$$

On prend

$$q_{(2\omega)} = \sqrt{\frac{2i\omega}{D}} \quad (2.25)$$

avec $q_{(2\omega)}$ est le nombre d'onde de l'onde thermique.

La solution générale de l'équation différentielle 2.24 est une combinaison linéaire des fonctions de Bessel modifiées [Abr 1970] de première et deuxième espèce à l'ordre zéro dont l'argument est égal à qr :

$$\Delta T_{AC(r,t)} = \text{Re}\{[c_1 I_0(qr) + c_2 K_0(qr)] \exp(2i\omega t)\} \quad (2.26)$$

I_0 et K_0 sont respectivement les fonctions de Bessel modifiées de première et deuxième espèce à l'ordre zéro et les constantes c_1 et c_2 dépendent des conditions aux limites. D'après la figure 2.7 il est clair que pour des grandes valeurs de r , la fonction I_0 croît, de manière exponentielle, et tend vers l'infini par contre la fonction K_0 décroît vers zéro (Fig. 2.7).

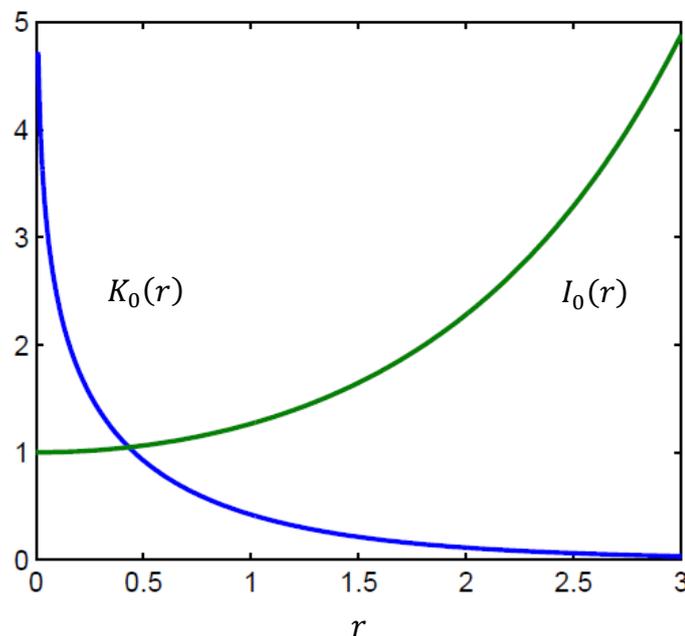


Figure 2.7 : Fonctions de Bessel modifiées de première et deuxième espèce à l'ordre zéro.

La première condition aux limites impose que pour des grandes valeurs de qr ($r \rightarrow \infty$), la constante c_1 doit être nulle pour que la solution reste bornée, car sinon la température d'oscillation diverge. Quand on s'éloigne de la source de chaleur la température diminue :

$$\lim_{r \rightarrow +\infty} \Delta T_{AC}(r,t) = 0 \quad \Rightarrow \quad c_1 = 0$$

Ce qui donne une forme réduite de l'équation 2.26 :

$$\Delta T_{AC(r,t)} = \text{Re}\{[c_2 K_0(qr)] \exp(2i\omega t)\} \quad (2.27)$$

Passons à la deuxième condition aux limites, en appliquant la loi de Fourier là où le flux de chaleur surfacique, à travers un l'élément chauffant de forme cylindrique, est égal à la puissance moyenne dissipée par cette source de chaleur, c'est-à-dire quand $r = a$ (a est le rayon du cylindre)

$$\frac{P_{rms}}{A_s} = -k \left. \frac{\partial \Delta \Theta_{AC}(r)}{\partial r} \right|_{r=a} \quad (2.28)$$

avec A_s est la surface du cylindre au rayon $r = a$ donné par : $A_s = 2\pi r l$

Si on combine les deux relations 2.27 et 2.28 on obtient :

$$P_{rms} = -k A_s \left. \frac{\partial \Delta \Theta_{AC}(r)}{\partial r} \right|_{r=a} = -k A_s c_2 \left. \frac{\partial K_0(qr)}{\partial r} \right|_{r=a}$$

$$\Rightarrow \lim_{a \rightarrow 0} \left(-k A_s \left. \frac{\partial \Delta \Theta_{AC}(r)}{\partial r} \right|_{r=a} \right) = \lim_{a \rightarrow 0} \left[-k A_s c_2 \left. \frac{\partial K_0(qr)}{\partial r} \right|_{r=a} \right] = P_{rms}$$

d'où

$$\frac{\partial K_0(qr)}{\partial r} = -q K_1(qr)$$

K_1 est la fonction de Bessel modifiée du premier ordre du second type et P_{rms} est la puissance dissipée dans la résistance.

Sachant que : quand $x \rightarrow 0$ on a $K_1(x) \sim \frac{1}{x}$

donc
$$c_2 = \frac{P_{rms}}{2\pi l k}$$

En conclusion, la forme finale de la composante AC de la température (Eq. 2.27) dans le cylindre s'écrit :

$$\Delta T_{AC}(r, t) = Re \left[\frac{P_{rms}}{2\pi l k} K_0(qr) \exp(2i\omega t) \right] = |\Delta \Theta_{AC}(r)| \cos(2\omega t + \phi)$$

avec

$$|\Delta\theta_{AC}(r)| = \frac{P_{rms}}{2\pi lk} |K_0(qr)| \quad (2.29)$$

$$\text{et } \varphi = \arg \left(\frac{P_{rms}}{2\pi lk} K_0(qr) \right) \quad (2.30)$$

Enfin, on peut exprimer la composante spatiale de l'oscillation de température par deux facteurs, l'un dit en phase (in-phase) $\Delta\theta_{AC,x}(r)$ et l'autre en quadrature de phase (out-of-phase) $\Delta\theta_{AC,y}(r)$:

$$\Delta\theta_{AC}(r) = \Delta\theta_{AC,x}(r) + i\Delta\theta_{AC,y}(r) \quad (2.31)$$

avec

$$\Delta\theta_{AC,x}(r) = \Delta\theta_{AC (in-phase)}(r) = \text{Re} \left[\frac{P_{rms}}{2\pi lk} K_0(qr) \right] = \frac{P_{rms}}{2\pi lk} |K_0(qr)| \cos \varphi \quad (2.32)$$

$$\Delta\theta_{AC,y}(r) = \Delta\theta_{AC (out-phase)}(r) = \text{Im} \left[\frac{P_{rms}}{2\pi lk} K_0(qr) \right] = \frac{P_{rms}}{2\pi lk} |K_0(qr)| \sin \varphi \quad (2.33)$$

Les résultats obtenus dans cette première approche (milieu infini) décrivent l'expression analytique des variations de température d'un élément de chauffe, sous forme cylindrique, et alimenté par une puissance linéique dissipée dans toutes les directions de l'espace qui l'entoure. Afin d'améliorer notre modèle mathématique et de nous rapprocher du cas expérimental nous nous proposons, dans la partie suivante, de considérer maintenant un milieu semi-infini. Nous réduisons simplement le cylindre infini selon un plan perpendiculaire à la direction radiale.

2.3.1.2 Ligne de chauffe sur la surface d'un milieu semi-infini

Dans le cas précédent, le flux thermique fourni par effet Joule était dissipé dans toutes les directions de l'espace. Dans cette étape on réduit la zone de travail à seulement un demi-espace (le demi-espace inférieur), afin de se rapprocher du dispositif expérimental de la technique 3-oméga. Autrement dit, nous découpons le cylindre infini le long d'un plan perpendiculaire à la direction radiale. En effet, ceci implique un flux de chaleur nul dans le demi-espace au-dessus de l'élément de chauffe, (c'est-à-dire, pas de conduction, convection ou pertes de rayonnement dans l'environnement). Les pertes de rayonnement sont minimales en

raison de la décroissance rapide des oscillations de température. Donc, le volume est réduit de moitié, cela signifie que le flux de chaleur s'écoule deux fois plus dans le volume restant.

La géométrie de la ligne de chauffe pour un milieu semi-infini est présentée sur la figure 2.8 :

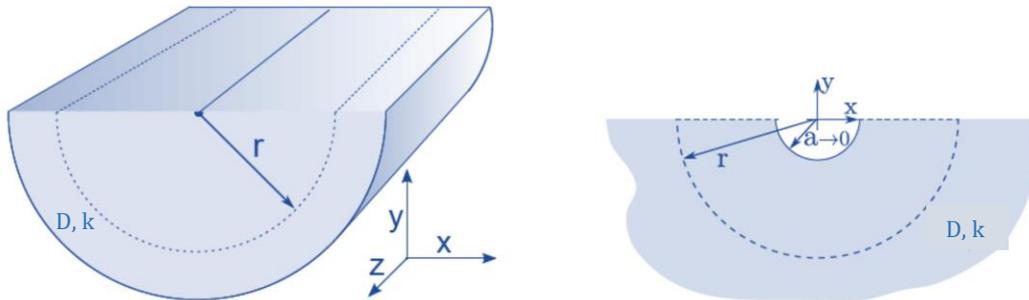


Figure 2.8 : Géométrie de la ligne de chauffe pour un milieu semi-infini (demi-cylindre)

[Hän 2013].

Si on applique la symétrie autour de l'axe de la ligne et que nous nous intéressons uniquement de la température à la surface du substrat, en prenant $y=0$ (en supposant que les échanges thermiques sont inexistantes à travers la surface) et $r^2=x^2+y^2$, cela amène une solution de la variation de température de l'élément de chauffe, d'où équation 2.29 devient sous une forme réduite :

$$\Delta\Theta_{AC}(x) = \frac{P_{rms}}{\pi lk} K_0(qx) \quad (2.34)$$

Pour que nous nous rapprochions du modèle expérimental, il est nécessaire de prendre en compte que le système est constitué par un ruban de chauffe supposée de largeur finie égale à $2b$ et dissipant une puissance linéique à la fréquence angulaire 2ω . Cette prise en compte est discutée dans le paragraphe suivant.

2.3.2 Élément chauffant bidimensionnel (solution 2D)

2.3.2.1 Effets de la largeur finie de ligne de chauffe

Afin de généraliser la solution d'une source de chaleur 2D, constitué d'une ligne de chauffe sur la surface d'un milieu semi-infini, on fait une superposition d'un nombre N de sources de chaleur de 1D sur la largeur finie de l'élément chauffant comme indiqué sur la figure 2.9 [Cah 1990].

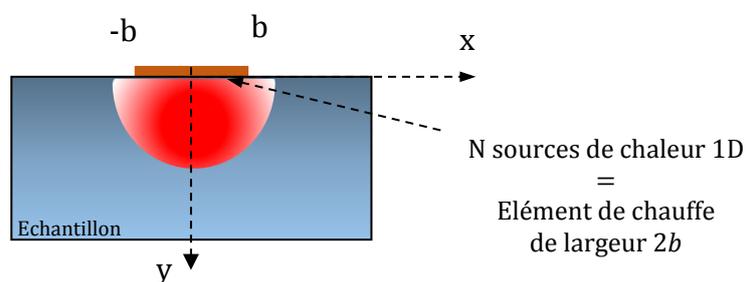


Figure 2.9 : Schéma décrivant la géométrie de la solution 2D d'un élément chauffant de largeur $2b$ déposé sur un échantillon.

La température en tout point M à l'intérieur de l'échantillon dépend de sa position et donc de ses coordonnées (x_i, y_i) par rapport à la 1^{ère} source de chaleur 1D parmi l'ensemble des N sources de chaleur 1D qui constitue une source de chaleur 2D de largeur $2b$ (Fig. 2.10) :

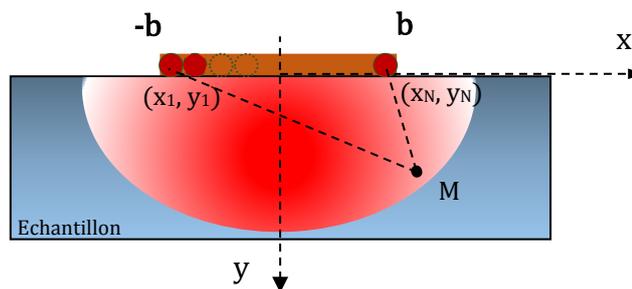


Figure 2.10 : Représentation schématique de la température à l'intérieur de l'échantillon à un certain point M , qui résulte du flux de chaleur de toutes les sources linéaires unidimensionnelles (1D) qui constituent un élément chauffant de largeur finie.

Mathématiquement, pour atteindre le modèle final de l'élément de chauffe en 2D, on utilise le principe de superposition. En introduisant le calcul dans l'espace de Fourier (convolution) de

la fonction spatiale de la température en surface de l'échantillon (Eq. 2.34) et la fonction porte (rectangle) de largeur $2b$ sur un intervalle $-b \leq x \leq b$ (c'est à dire que la chaleur pénètre dans l'échantillon de façon uniforme sur la largeur de la ligne de chauffe allant de $-b$ à b). On peut définir la fonction porte par :

$$rect(x) = \begin{cases} \frac{1}{2b} & -b \leq x \leq b \\ 0 & \text{ailleurs} \end{cases} \quad (2.35)$$

La transformée de Fourier et la transformée de Fourier inverse peuvent se définir comme suit :

$$f(\eta) = F[f(x)] = \int_0^{+\infty} f(x) \cos(\eta x) dx \quad (2.36)$$

$$f(x) = F^{-1}[f(\eta)] = \frac{2}{\pi} \int_0^{+\infty} f(\eta) \cos(\eta x) d\eta \quad (2.37)$$

La transformée de Fourier d'une fonction porte est une fonction cosinus cardinal, elle s'exprime de la manière suivante :

$$F[rect(x)] = \int_0^{+\infty} rect(\eta) \cos(\eta x) d\eta = \frac{1}{2b} \int_{-b}^{+b} \cos(\eta x) d\eta$$

$$F[rect(x)] = \frac{\sin(\eta b)}{\eta b} \quad (2.38)$$

Concernant la transformée de Fourier de la variation de la température, celle-ci est donnée par [Erd 1954] :

$$\Delta\Theta_{AC}(\eta) = F[\Delta\Theta_{ac}(x)] = \frac{P_{rms}}{\pi lk} \int_0^{+\infty} K_0(qx) \cos(\eta x) dx = \frac{P_{rms}}{2\pi lk} \frac{\pi}{\sqrt{\eta^2 + q^2}}$$

donc

$$\Delta\Theta_{AC}(\eta) = \frac{P_{rms}}{lk} \frac{1}{\sqrt{\eta^2 + q^2}} \quad (2.39)$$

$\Delta T_{AC}(\eta)$ est la transformée de Fourier du produit de convolution entre les deux équations 2.38 et 2.39, soit la transformée de Fourier de la variation de température en surface pour un élément de chauffe de largeur $2b$, d'où :

$$\Delta T_{AC}(\eta) = F[\Delta \Theta_{ac}(x)] * F[rect(x)] = \frac{P_{rms}}{lk} \frac{1}{\sqrt{\eta^2 + q^2}} \int_0^{+\infty} rect(x) \cos(\eta x) dx$$

$$\Delta T_{AC}(\eta) = \frac{P_{rms}}{lk} \frac{\sin(\eta b)}{(\eta b)\sqrt{\eta^2 + q^2}} \quad (2.40)$$

Maintenant, pour trouver la répartition de température le long d'une ligne de chauffe de largeur $2b$, on fait la transformée de Fourier inverse de l'équation 2.40 :

$$\Delta T_{AC}(x) = \frac{P_{rms}}{\pi lk} \int_0^{+\infty} \frac{\sin(\eta b)}{(\eta b)\sqrt{\eta^2 + q^2}} \cos(\eta x) d\eta \quad (2.41)$$

La valeur moyenne de la température d'un ruban, de largeur finie $2b$, sur la surface de l'échantillon peut s'écrire sous la forme suivante :

$$\Delta T_{AC}(x) = \frac{1}{2b} \int_{-b}^b \Delta T_{AC}(x) dx = \frac{1}{b} \frac{P_{rms}}{\pi lk} \int_0^b \cos(\eta x) \int_0^{+\infty} \frac{\sin(\eta b)}{(\eta b)\sqrt{\eta^2 + q^2}} d\eta dx \quad (2.42)$$

Finalement, résoudre l'intégrale (2.42), nous permet de trouver l'amplitude de la température d'un élément de chauffe de largeur $2b$, finie, à la surface d'un échantillon [Cah 1990].

$$\Delta T_{AC}(2\omega) = \frac{P_{rms}}{\pi lk} \int_0^{+\infty} \frac{\sin^2(\eta b)}{(\eta b)^2 \sqrt{\eta^2 + q_{(2\omega)}^2}} d\eta = \Delta T_{ac,x}(2\omega) + i\Delta T_{ac,y}(2\omega) \quad (2.43)$$

Cette équation représente la solution analytique pour le modèle d'un élément de chauffe de largeur $2b$, finie, à la surface d'un échantillon. Dans ce cas, l'intégrale 2.43 peut être résolue numériquement par un algorithme, (quadrature adaptative de Simpson), proposé dans le logiciel Matlab®. La représentation graphique de la solution d'intégrale (Eq. 2.43) est donnée par la figure suivante (Fig. 2.11) en supposant que la puissance efficace prms par unité de longueur $P_{rms}/l = 1$ W/m, d'une ligne de chauffe de largeur $2b = 20\mu\text{m}$, pour la conductivité thermique de l'échantillon $k = 1$ W/m.K et la diffusivité thermique $D = 1$ mm²/s.

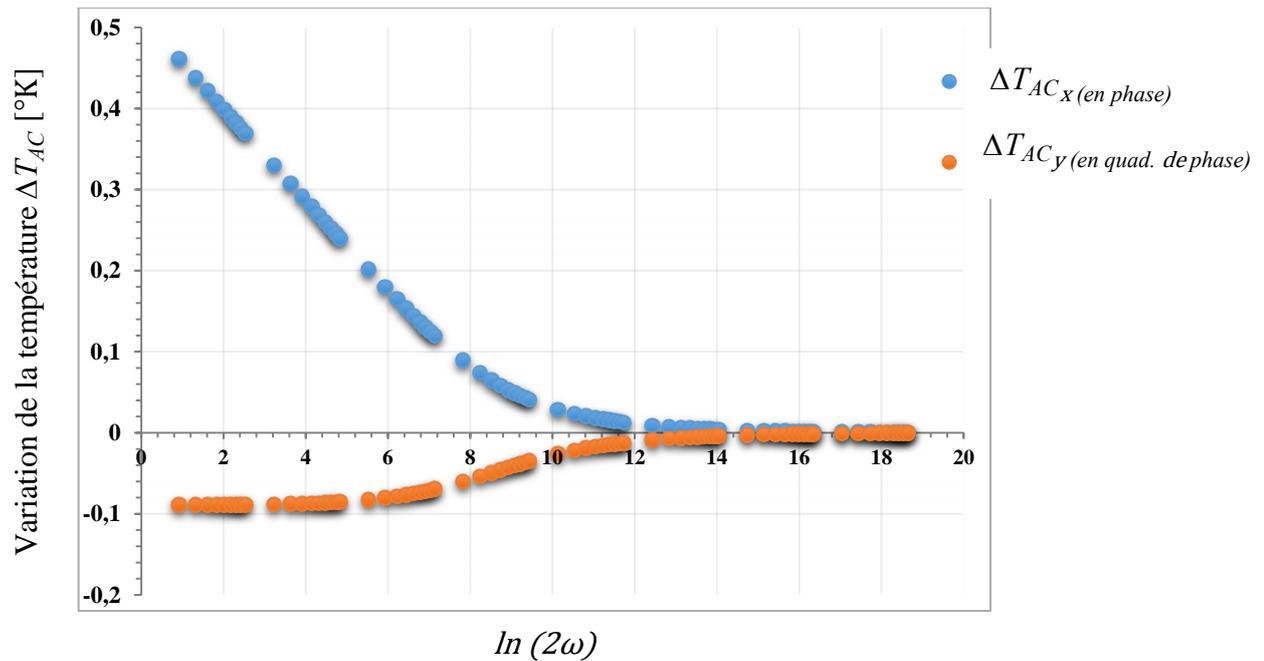


Figure 2.11 : Représentation graphique de la solution analytique de Cahill (Eq. 2.43). Composantes en phase et en quadrature de phase des variations de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$. ($P_{rms}/l = 1$ W/m, $b = 10$ μ m, $k = 1$ W/m.K et la diffusivité $D = 1$ mm²/s)

Aux basses fréquences, la composante en phase (in-phase) de la variation de la température diminue linéairement en fonction de la fréquence d'excitation thermique 2ω , mais la partie imaginaire (out-of phase) reste quasi-constante avec une valeur négative.

2.3.2.2 Solution approximative

Dans la partie précédente, l'expression 2.43 ne peut pas être résolue sous forme fermée, mais à la limite d'une grande profondeur de pénétration thermique il existe une solution asymptotique. Donc, il est nécessaire d'introduire la notion de Longueur de Pénétration Thermique (L_{pt}), notée δ , qui dépend de la fréquence d'excitation thermique. Celle-ci représente la distance sur laquelle l'onde thermique diffuse dans l'échantillon, elle s'écrit sous la forme :

$$\delta = \left| \frac{1}{q_{(2\omega)}} \right| = \sqrt{\frac{D}{2\omega}} \quad (2.44)$$

Cette distance dépend de :

1. La diffusivité thermique du substrat : plus elle est grande plus l'onde thermique pénètre profondément. Les substrats qui ont une diffusivité plus élevée possèdent des Lpt plus longues et vice-versa.
2. La fréquence de l'excitation thermique : les basses fréquences pénètrent profondément dans le substrat, plus la fréquence est faible plus l'onde thermique diffusera profondément (ceci sera détaillée dans le chapitre 3 - partie simulation par FEM).

Pour juger de la longueur de pénétration thermique par rapport à notre dispositif, il est nécessaire de la comparer à la demi-largeur de l'élément de chauffe b . D'autre part, l'épaisseur de l'échantillon doit être beaucoup plus grande que la profondeur de pénétration thermique de sorte que l'onde thermique s'affaiblisse suffisamment dans l'échantillon et qu'il n'y ait aucun effet de réflexion de cette onde thermique sur les bords l'échantillon pendant les mesures.

On observe, d'après Cahill et ses collaborateurs [Cah 1990], que l'amplitude de l'onde thermique décroît de deux ordres de grandeurs sur une distance inférieure à 5δ . Ainsi, il est possible de distinguer plusieurs régimes thermiques en fonction de cette grandeur.

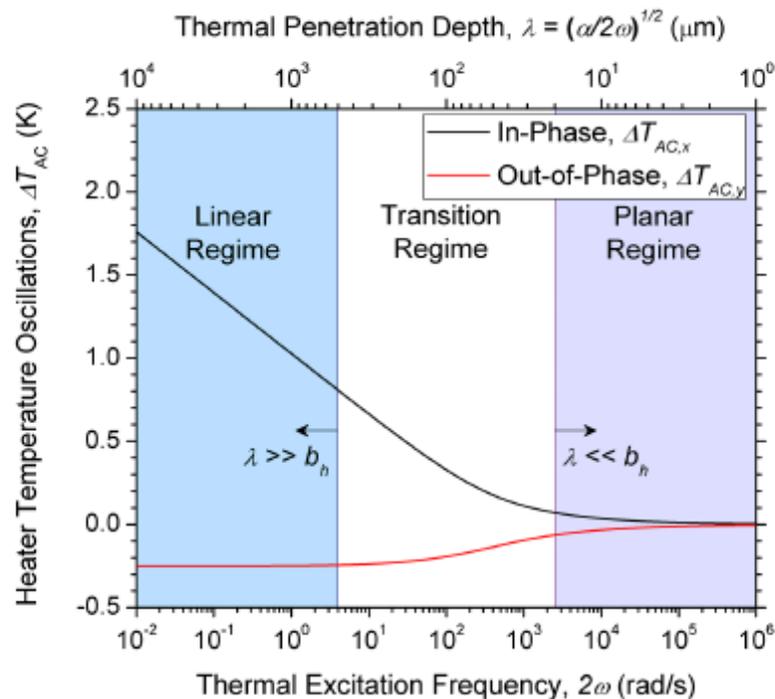


Figure 2.12 : Les composantes en phase et en quadrature de phase des variations de la température en fonction de la fréquence d'excitation thermique 2ω ainsi que la Lpt. Pour $P_{rms}/l = 1$ W/m, $b = 10\mu\text{m}$, $k = 1$ W/m.k et la diffusivité $D = 1$ mm²/s [Kon 2008].

Pour une grande L_{pt} , la composante in-phase de la variation de la température (Fig. 2.12), décroît de façon logarithmique en fonction de la fréquence angulaire 2ω . Cet intervalle fréquentiel est dit domaine linéaire (zone colorée en bleu - à gauche) ou bien régime à basses fréquences. Dans cette zone la composante en quadrature de phase (out-of-phase) de la variation de la température est négative et constante.

Pour les hautes fréquences (faible L_{pt}), les composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température sont égales mais de signe opposé (avec un déphasage de 45° entre la température et le courant qui lui donne naissance). Cette région est nommée le régime planaire (zone colorée en violet - à droite). Entre les deux régions il existe une zone intermédiaire dite région transitoire (zone en blanc dans la figure 2.12).

Afin de calculer la conductivité thermique, les mesures doivent être effectuées à des fréquences appartenant à une zone bien définie : la zone linéaire. Dans la section suivante, nous déterminons les conditions qui doivent être appliquées pour définir les limites du régime linéaire.

2.4 REGIMES THERMIQUES

La longueur L_{pt} joue, donc, un rôle prépondérant pour distinguer les différents régimes thermiques intervenant selon la fréquence de l'excitation thermique. Comme nous l'avons vu précédemment, nous pouvons distinguer trois régimes différents : planaire, transitoire et linéaire. La figure 2.13 montre la distinction, d'une autre façon, entre les régimes en fonction de la longueur L_{pt} , la demi-largeur de la ligne chauffante et l'épaisseur de l'échantillon.

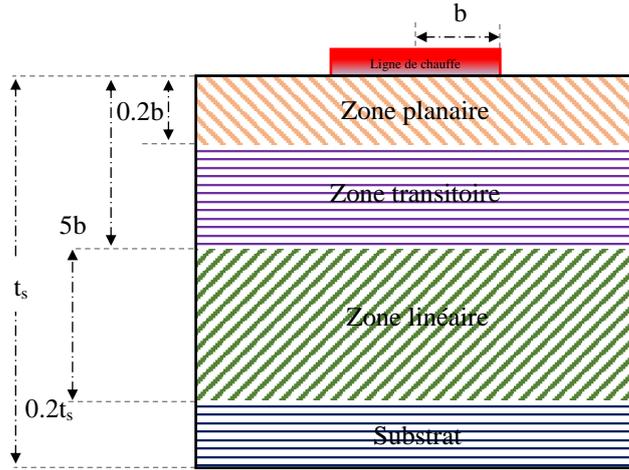


Figure 2.13 : Schéma d'une coupe transversale de l'échantillon, distinction de différents régimes en fonction de l'épaisseur de substrat et de la demi-largeur de la ligne métallique

[Feg 2010].

2.4.1 Régime linéaire

Cette zone thermique est la plus intéressante, car en pratique, afin de minimiser les pertes de chaleur dans le milieu extérieur, il est nécessaire de ne pas chauffer l'échantillon au-delà d'un certain niveau. Donc, il y a une limite pour la longueur de pénétration thermique, qui dépend de la fréquence minimale, et il faut la comparer avec la demi-largeur de l'élément chauffant b , qui est dans la même échelle de longueur.

Lorsque la demi-largeur de l'élément chauffant b est beaucoup plus petite que la profondeur de pénétration thermique, d'où $1/|q| \gg b$ [Cah 1990, Kon 2008], nous pouvons écrire :

$$\lim_{b \rightarrow 0} \frac{\sin(b\eta)}{(b\eta)} = 1 \quad (2.45)$$

Les valeurs de η sont telles que $\delta < \eta < 1/b$ [Moo 1996], donc l'expression 2.43 se simplifie et devient :

$$\Delta T_{AC}(2\omega) = \frac{P_{rms}}{\pi l k} \int_0^{1/b} \frac{1}{\sqrt{\eta^2 + q^2}} d\eta = \frac{P_{rms}}{\pi l k} \left[\ln \left(\frac{1}{b} + \sqrt{\frac{1}{b^2} + q^2} \right) - \ln q \right] \quad (2.46)$$

$$\Delta T_{AC}(2\omega) \approx \frac{P_{rms}}{\pi l k} [l n(qb) - \xi] \tag{2.47}$$

où ξ est une constante d'ajustement qui s'exprime en fonction de la constante d'Euler γ ($\xi = \frac{3}{2} - \gamma$). Cette constante ξ est approximativement égale à 0.923 [Cah 1989, Duq 2010].

En remplaçant q par $\sqrt{\frac{2i\omega}{D}}$ dans l'équation 2.46, on obtient la relation d'approximation de la variations de température en fonction de la fréquence d'excitation thermique 2ω , qui peut donc s'exprimer sous la forme suivante [Cah 1990]:

$$\Delta T_{AC}(2\omega) = -\frac{P_{rms}}{2\pi l k} \left(\ln(2\omega) + \ln\left(\frac{b^2}{D}\right) - 2\xi \right) - i \frac{P_{rms}}{4l k} \tag{2.48}$$

où P_{rms}/l est la puissance par unité de longueur.

On constate que dans ce régime linéaire la composante en quadrature de phase est constante. La comparaison entre la solution de la fonction intégrale (Eq. 2.43) et la solution approximative (Eq. 2.48) est représentée dans la figure suivante :

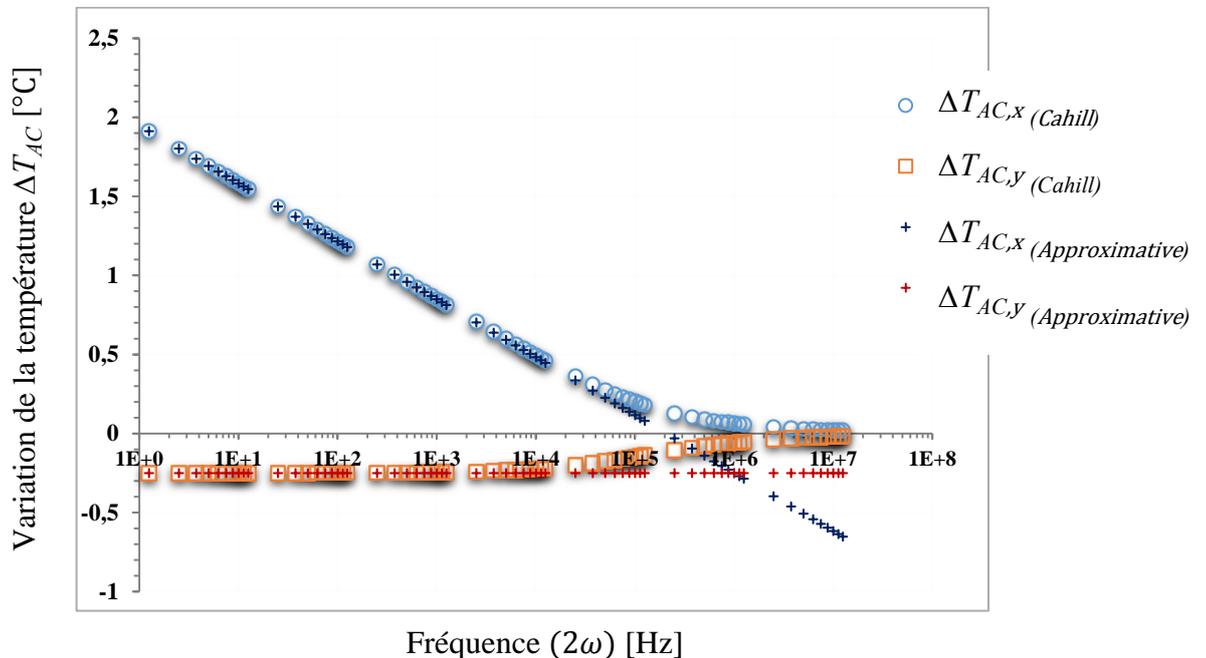


Figure 2.14 : Comparaison entre la solution analytique de Cahill et la solution approximative (linéaire) de la variation de la température sur une large bande fréquentielle. ($P_{rms}/l = 1.4$ W/m, $b = 5\mu\text{m}$ et la diffusivité $D = 8.12 \text{ e}^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$)

En effet, si l'équation 2.48 permet l'extraction de la conductivité thermique, lors des mesures, seule la composante en phase (in-phase) sera généralement prise en compte parce qu'elle permet d'obtenir une meilleure précision sur les résultats.

Si on combine les deux relations 2.12 et 2.48, nous obtenons une nouvelle forme de la tension de la 3^{ème} harmonique :

$$V_{3\omega} = - \frac{V_0^3 \beta_h}{4\pi l k R_o} \left(\ln(2\omega) + \ln\left(\frac{b^2}{D}\right) - 2\xi \right) - i \frac{V_0^3 \beta_h}{8 l k R_o} \quad (2.49)$$

Cette dernière équation sera utilisée pour la détermination expérimentale de la conductivité thermique. Notons qu'ici la tension est en unités *rms*, puisque la puissance des oscillations thermiques est également la puissance *rms* dissipée par le courant d'excitation. De plus on voit que le calcul de la conductivité thermique nécessite la valeur du Coefficient de température en Résistance (TCR).

Le tracé de cette équation 2.49, si on considère que la ligne de chauffe est fabriquée en or (TCR : $\beta_h = 0.0034 / ^\circ\text{C}$ et résistivité $\rho = 2.44 \text{ e}^{-8} \text{ } \Omega\text{m}$), est reporté en figure 2.15. La variation de la tension du 3^{ème} harmonique en fonction de la fréquence d'excitation 2ω est calculée pour même la puissance linéaire $P_{rms}/l = 1.4 \text{ W/m}$, $V_0 = 1 \text{ V}$, $b = 5\mu\text{m}$ et la diffusivité $D = 8.12\text{e}^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$.

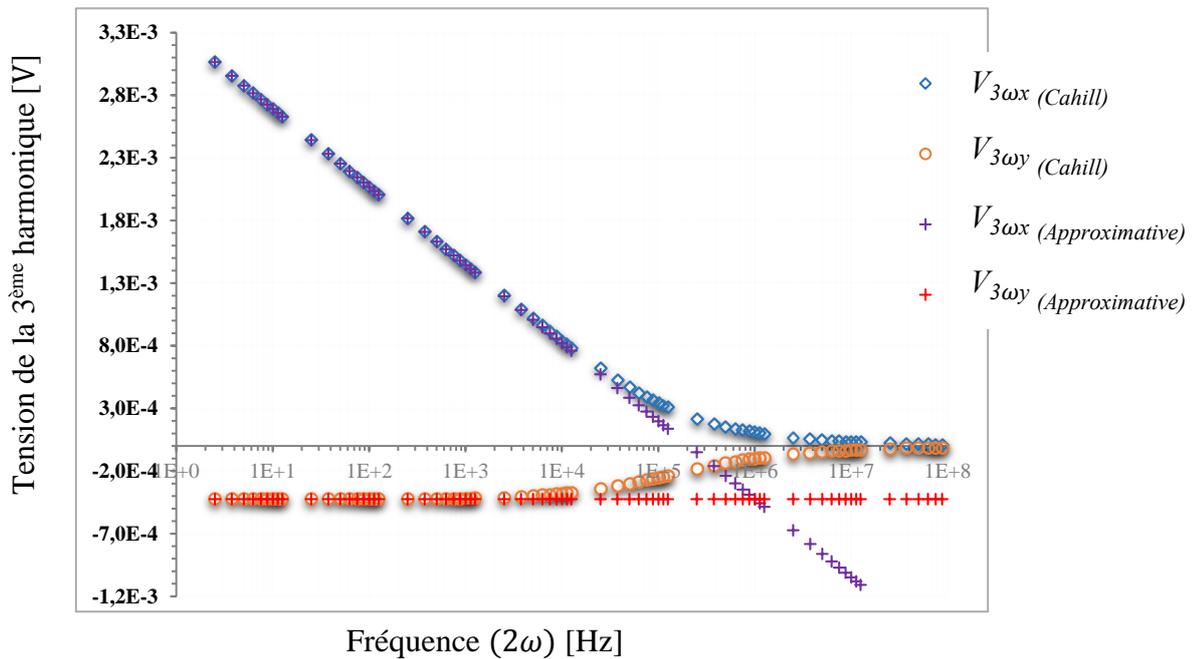


Figure 2.15 : Une comparaison de la solution analytique de Cahill et sa solution approximative de la 3^{ème} harmonique de la tension en fonction de la fréquence d'excitation 2ω . ($P_{rms}/l = 1.4 \text{ W/m}$, $V_0 = 1 \text{ V}$, $b = 5\mu\text{m}$ et la diffusivité $D = 8.12 \text{ e}^{-7} \text{ m}^2/\text{s}$)

La conductivité thermique k du matériau étudié est peut être obtenue à partir de la pente de la partie réelle, (composante en phase avec le courant) tracée en fonction de $\ln(2\omega)$, par l'expression suivante :

$$k = \frac{V_0^3 \beta_h}{4\pi l R_0} \frac{\ln \frac{\omega_2}{\omega_1}}{(V_{3\omega_1} - V_{3\omega_2})} = \frac{V_0^3}{4\pi l R_0^2} \frac{\ln \frac{\omega_2}{\omega_1}}{(V_{3\omega_1} - V_{3\omega_2})} \frac{dR}{dT} \quad (2.50)$$

Dans cette expression $V_{3\omega_1}$ est la tension de la 3^{ème} harmonique à une fréquence ω_1 et $V_{3\omega_2}$ la tension de la 3^{ème} harmonique à une fréquence ω_2 .

L'examen de l'équation 2.50 montre que la valeur de la conductivité thermique mesurée ne dépend pas de la largeur de la ligne. Le terme $\frac{\ln \frac{\omega_2}{\omega_1}}{(V_{3\omega_1} - V_{3\omega_2})}$ dans cette équation représente la pente reliant deux points sur un tracé de la composante en-phase de la variation de la tension de la 3^{ème} harmonique par rapport au logarithme népérien de la fréquence. Pour améliorer la fiabilité de la mesure, de multiples fréquences peuvent être utilisées pour obtenir un nuage de données qui peut, ensuite, être approximé par un polynôme de premier ordre afin d'obtenir la pente.

La limite fréquentielle maximale de la zone linéaire est liée à la demi-largeur de la ligne métallique b , alors que la limite fréquentielle minimale est liée à l'épaisseur finie du substrat t_s . Plus clairement, la profondeur de pénétration thermique doit être beaucoup plus grande que la demi-largeur $\delta > 5b$ et beaucoup plus petite que l'épaisseur du substrat, c.a.d, que le substrat est considéré comme semi-infini d'où son épaisseur t_s est supérieure à 5 Lpt ($\delta < t_s/5$), de manière à ce que l'onde thermique reste confinée dans l'épaisseur du substrat et que les effets de bord restent négligeables. Pour cela, pour caractériser un échantillon par la technique 3-oméga, de préférence l'épaisseur du substrat doit être beaucoup plus grande que la demi-largeur de la source de chaleur (ligne de chauffe).

$$5b < \delta < \frac{t_s}{5} \quad \text{et} \quad 25b \leq t_s \quad (2.51)$$

Donc, à partir de cette équation, la plage de fréquences pour laquelle la conductivité thermique peut être mesurée dans l'intervalle est donnée ci-dessous par l'équation 2.52 :

$$\frac{25D}{4\pi t_s^2} \leq f \leq \frac{D}{100\pi b^2} \quad (2.52)$$

Cette équation (2.52) s'avère très utile car elle fixe les valeurs pour une structure donnée. La détermination de cette plage de fréquences nécessite la connaissance de la diffusivité thermique D du matériau sous test, cette valeur est généralement tirée de la littérature. Néanmoins, pour certains matériaux, cette propriété thermique est inconnue, donc nous utilisons des propriétés de matériaux qui présentent une structure semblable, afin d'avoir une première estimation de la zone de linéarité.

- **Etude de la variation de la zone linéaire d'un échantillon**

Après la présentation des développements théoriques de la méthode 3-oméga, nous nous proposons d'appliquer celle-ci dans le cas d'un matériau très utilisé dans l'industrie de la microélectronique : le dioxyde de silicium (SiO_2). Ce dernier est un composé fortement diélectrique et très peu réactif qui existe à l'état libre sous différentes formes cristallines ou silice amorphes de et à l'état combiné dans les silicates (sable, roches). En nous basant sur les propriétés de SiO_2 trouvés dans la littérature [Jac 2002] (Tableau 2.1), on peut déterminer la variation de la température en fonction de la fréquence d'excitation et les variations de limites de la zone linéaire :

Matériau	Densité [J/Kg.K]	Chaleur spécifique [J/Kg.K]	Conductivité thermique à 20 °C [W/m.K]
Dioxyde de silicium	2200	770	1.38 – 1.4

Tableau 2.1 : Propriétés (densité, chaleur spécifique et conductivité thermique) du SiO_2 .

Les variations de la température ΔT_{AC} pour le SiO_2 sont calculées selon l'équation 2.43. La figure 2.16 montre les composantes en-phase et en-quadrature de phase, de la température ΔT_{AC} , tracées en fonction du logarithme népérien de 2ω . Par exemple, nous avons choisi un échantillon de SiO_2 d'épaisseur $d_s = 750 \mu\text{m}$. Les lignes métalliques déposées sur la surface du dioxyde de silicium sont supposées avoir une largeur $2b$ de 5, 10 et 25 μm . La puissance linéique efficace appliquée P_{rms} est de 0.5 W/m.

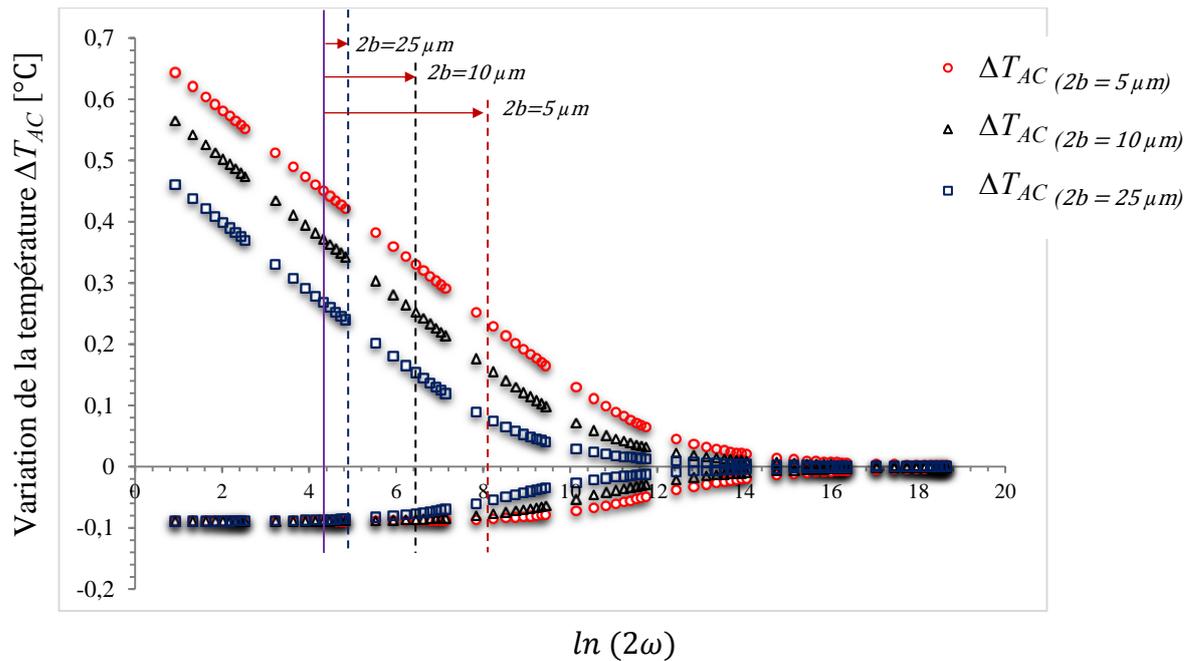


Figure 2.16 : Variation des limites de la zone linéaire en fonction de largeur de la ligne métallique pour un échantillon SiO_2 d'épaisseur $d_s = 750 \mu\text{m}$ et une puissance linéaire $P_{\text{rms}} = 0.5 \text{ W/m}$.

D'après la figure 2.16, nous constatons d'abord que la variation de la largeur de la ligne a une influence plus marquée sur la partie réelle de ΔT_{AC} . En plus, nous remarquons que la zone linéaire devient plus large quand la demi-largeur $2b$ de la ligne de chauffe diminue.

Dans second temps, nous fixons la borne supérieure dans le cas d'une ligne métallique de largeur $2b = 5 \mu\text{m}$ déposée sur un substrat de SiO_2 . Différentes épaisseurs de substrat sont considérées, $d_s = 750, 250, 150$ et $45 \mu\text{m}$. Les résultats, pour une puissance linéaire $P_{\text{rms}} = 1 \text{ W/m}$, sont reportés sur la figure 2.17.

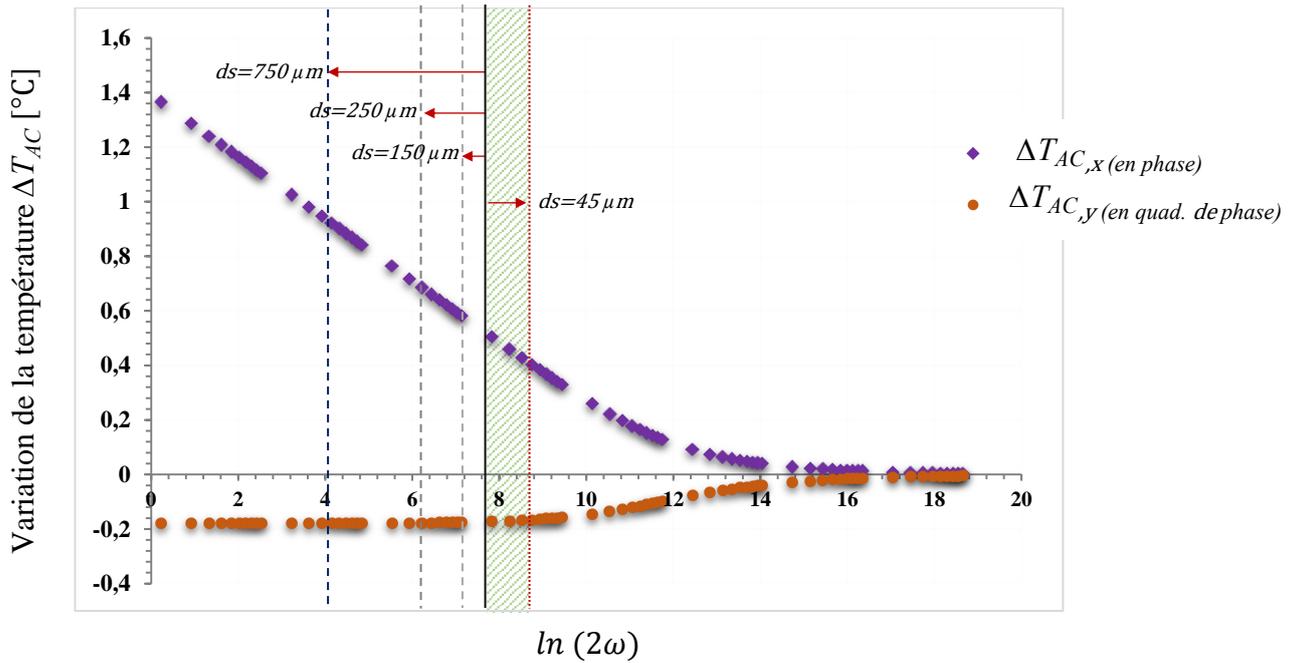


Figure 2.17 : Variation de la zone linéaire en fonction de l'épaisseur de SiO₂. Pour un substrat d'épaisseur $d_s = 45 \mu m$ il y a une inversion de la limite fréquentielle minimale et il est en fait une limite maximale de la zone linéaire.

En conclusion, dans un premier temps il est clair que la zone linéaire est fortement influencée par la largeur de l'élément chauffant et l'épaisseur du substrat. Par conséquent, pour que l'onde thermique reste confinée dans le substrat et que les effets de bord restent négligeables, il faut que l'épaisseur du substrat soit beaucoup plus grande que la largeur de ligne de chauffe ($25b \leq t_s$). Il est intéressant d'avoir une zone linéaire étendue car cela permet d'avoir un nombre des points de mesures suffisant lors des caractérisations au cours de nos expériences.

2.4.2 Régime planaire

Dans cette région dite "régime planaire", la longueur de pénétration thermique est très petite par rapport à la demi-largeur de la ligne métallique, $\frac{\delta}{b} \ll 1$, on peut écrire :

$$\lim_{b \rightarrow \infty} \frac{1}{b\pi} \left[\frac{\sin(b\eta)}{\sin(\eta)} \right]^2 = \Gamma(\eta) \quad (2.54)$$

où $\Gamma(\eta)$ est la distribution de Dirac définie sous la forme suivante :

$$\Gamma(x) = \begin{cases} +\infty & \text{si } x = 0 \\ 0 & \text{si } x \neq 0 \end{cases} \quad \text{tel que } \int_{-\infty}^{+\infty} \Gamma(x) dx = 1 \quad (2.55)$$

En combinant l'équation 2.54 et 2.43 on obtient

$$\Delta T_{AC}(2\omega) = \frac{P_{rms}}{blk} \int_0^{\infty} \frac{\sin^2(\eta) \Gamma(\eta)}{\sqrt{\eta^2 + q^2}} d\eta \approx \frac{P_{rms}}{2blqk} \quad (2.56)$$

En utilisant la notion de puissance dissipée surfacique de l'élément chauffant, \tilde{P}_{rms} , tel que :

$$\tilde{P}_{rms} = \frac{P_{rms}}{2lb} = \frac{V_o^2}{4blR_o} \quad (2.57)$$

L'équation (2.56) peut alors s'écrire sous la forme suivante :

$$\Delta T_{AC}(2\omega) \approx \frac{\tilde{P}_{rms}}{e\sqrt{2\omega}} \exp\left(-\frac{i\pi}{4}\right) \quad (2.58)$$

où $e = \sqrt{k\rho C_p}$ est l'effusivité thermique exprimé en $\text{Jm}^{-2}\text{K}^{-1}\text{s}^{-1/2}$

L'équation 2.58 met en évidence d'une part un déphasage de 45° et d'autre part une égalité des amplitudes des composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température. En fait, dans ce régime thermique, la source de chaleur ne tend plus vers une ligne de chauffe mais plutôt vers un plan de chauffe.

En conclusion, les solutions approximatives de la variation de la température sont comparées par rapport à la solution exacte en traçant les équations 2.43, 2.49 et 2.58. La puissance par unité de longueur, la demi-largeur de la ligne métallique, la conductivité thermique et la diffusivité thermique sont les mêmes que pour la figure 2.11.

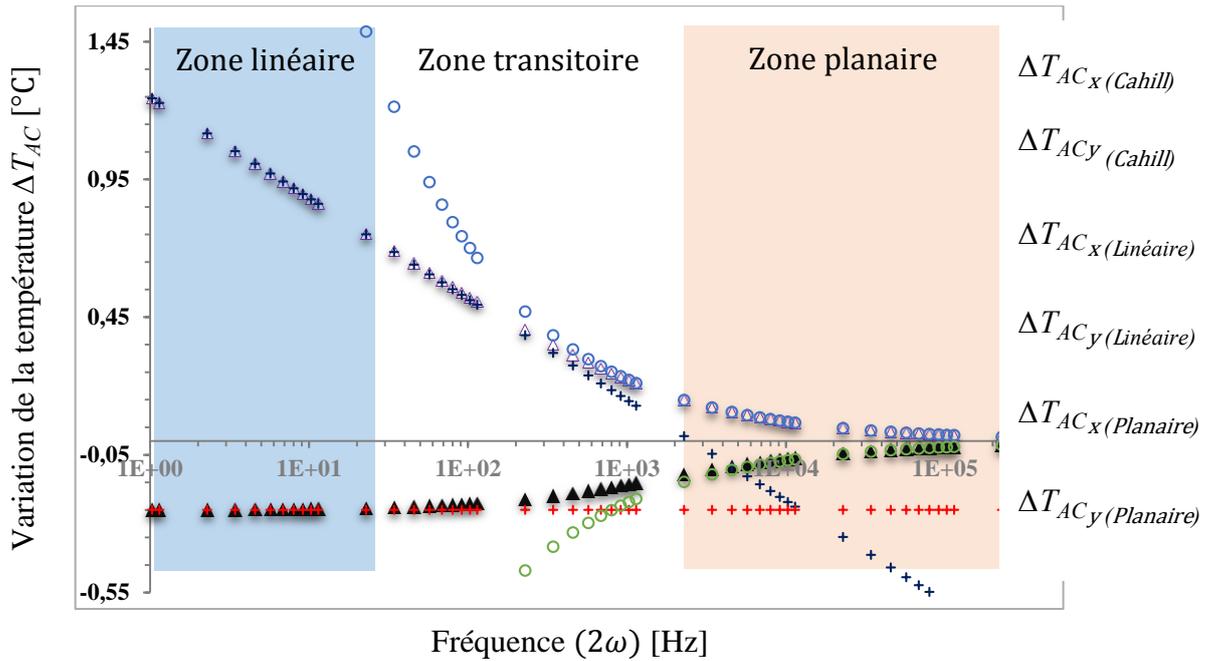


Figure 2.18 : Comparaison de la solution analytique du modèle de Cahill par rapport aux solutions simplifiées de la variation de la température obtenues en régime linéaire et en régime planaire. ($P_{rms}/l = 1$ W/m, $b = 15$ μ m et la diffusivité $D = 1e^{-7}$ m²/s)

Dans la figure ci-dessus (Fig. 2.18), les courbes formées par des triangles (Δ) sont les solutions exactes tandis que les courbes formées par des cercles ($^{\circ}$) et par des plus (+) représentent, respectivement, les solutions approximatives pour le régime planaire et le régime linéaire.

Nous avons décrit le principe et les différentes hypothèses proposées par G. D. Cahill afin d'obtenir la solution exacte et les solutions analytiques approximatives dans les différents régimes thermiques (linéaire et planaire). Le chapitre suivant est consacré à la présentation des procédures de réalisation des lignes de chauffes, le dispositif et le protocole expérimental pour la caractérisation de la conductivité thermique de matériaux par la méthode 3-oméga.

2.5 CONCLUSION

Dans ce chapitre nous avons présenté des éléments théoriques nécessaires à la détermination de la conductivité thermique d'un échantillon par la méthode 3ω . Dans un premier temps, comme introduction à ce chapitre, le principe de cette méthode a été décrit. Pour rappel une ligne métallique, qui sert simultanément à perturber thermiquement le système et comme capteur de variations de température, est déposée sur la surface de l'échantillon à

caractérisé. La méthode nécessite que la résistance thermique entre la ligne de chauffe et l'échantillon soit négligeable, aussi il faut de bonnes méthodes de dépôt pour assurer l'intimité entre les deux surfaces (échantillon/élément chauffant). Ensuite nous avons établi l'expression de la variation de la température quand l'élément de chauffe est considéré comme une ligne unidimensionnelle à l'intérieur d'un milieu de forme cylindrique supposé infini. En utilisant les propriétés de symétrie, ce dernier est coupé en deux pour avoir une ligne dans un milieu de forme semi-cylindrique (milieu semi-infini). Une deuxième solution consiste à considérer un nombre infini de lignes de chauffe 1D dans le milieu semi-infini formant un ensemble de largeur $2b$.

Nous avons également rappelé la formule générale de Cahill qui prend en considération la variation de la température d'un élément de chauffe de largeur $2b$ déposé sur un échantillon sous test. Cette formule de Cahill contient deux parties : une partie réelle dite composante en phase (in-phase) de la variation de température qui décroît linéairement par rapport à $\ln(2\omega)$ et une autre partie imaginaire appelée composante en quadrature de phase (out-of-phase), composante imaginaire qui est négative et quasiment constante. La solution proposée d'approximation est importante, car elle permet de déterminer la conductivité thermique directement à partir de la pente du tracé de la composante en phase la tension de la 3^{ème} harmonique en fonction de $\ln(2\omega)$, composante relevée expérimentalement. Il est possible de distinguer trois régimes thermiques en fonction de la profondeur de la pénétration de l'onde thermique : planaire, transitoire et linéaire. Le régime linéaire est celui qui répond mieux à notre besoin pour déterminer la conductivité thermique de matériau sous test. Pour cet effet, les limites fréquentielles de ce régime sont déterminées pour une profondeur de pénétration thermique bien supérieure à la demi-largeur de l'élément chauffant et très inférieure à l'épaisseur du substrat. Ce modèle thermique introduit par Cahill offre un moyen efficace de mesure des propriétés thermo-physiques, en particulier la conductivité thermique, des matériaux.

2.6 BIBLIOGRAPHIE

- [Abr 1970] M. Abramowitz and I. Stegun
Handbook of Mathematical Functions,
Dover Publications Inc, ninth edition, (1970).
- [Bir 1987] N. O. Birge, and S. R. Nagel.
Wide-frequency specific heat spectrometer.
Review of Scientific Instruments, vol.58 (8): pp.1464-1470, (1987)
- [Cah 1987] D. G. Cahill, R. O. Pohl
Thermal conductivity of amorphous solids above the plateau,
Physical Review B, Vol. 35(8), pp. 4067-73, (1987).
- [Cah 1989] D. G. Cahill, H. E. Fischer, T. Klitsner, E. T. Swartz, R. O. Pohl
The thermal conductivity of thin films: measurements and understanding,
Journal of Vacuum Science and Technology A, Vol. 7, pp. 1259-65, (1989).
- [Cah 1990] D.G. Cahill
Thermal conductivity measurement from 30 to 750 K : the 3 ω method,
Review of Scientific Instrument. Vol. 61(2): pp 802-808, (1990).
- [Car 1959] H. Carslaw and J. Jaeger,
Conduction of heat in solids
Book : Oxford at Clarendon Press, (1959)
- [Car 1986] H. S. Carslaw and J. C. Jaeger.
Conduction of heat in solids,
Oxford University Press, 18; 33, (1986).
- [Chi 2008] M. Chirtoc, J. Gibkes, R. Wernhardt, J. Pelzl and A. Wieck
Local investigation of phase transition in NiTi shape-memory alloy by
modulated scanning thermal microscopy (STHM),
5th European Thermal-Sciences Conference, pp. 30, (2008).
- [Cor 1912] O. M. Corbino,
Measurement of specific heats of metals at high temperatures. Atti della Reale
Accademia Nazionale dei Lincei vol. 21 : pp.181-188, (1912).
- [Duq 2010] J. Y. Duquesne, D. Fournier, C. Fretigny
Analytical solution of the heat diffusion equation for 3 ω method geometry,
J. Appl. Phys. Vol. 108: 086104, (2010).
- [Ebe 1908] H. Ebeling,
Temperature variation in wires carrying alternating currents.
Annalen der Physik, vol. 27(2): pp. 391-485, (1908).
- [Erd 1954] A. Erdelyi
Tables of integral transforms,
New York, McGraw, (1954).
- [Feg 2010] F. Feghani
Thermal conductivity Measurement of DEPOT:PSS by 3-omega Technique
Thèse de doctorat, Université de Linköping – Université Suédoise, pp. 15-16,
(2010).
- [Fra 1993] R. Frank, V. Drach, J. Fricke
Determination of thermal conductivity and specific heat by a combined
3 ω /decay technique,

- Review of Scientific Instruments, Vol. 64 (3): pp. 760-5, (1993).
<https://doi.org/10.1063/1.1144156>
- [Fra 2004] S. Franssila
Introduction to micro-fabrication,
Book : 1st Edition, John Wiley and Sons, (2004).
[DOI:10.1002/9781119990413](https://doi.org/10.1002/9781119990413)
- [Gau 2013] S. Guathier, A. Giani, P. Combette
Gas thermal conductivity measurement using the three-omega method
Sensors and Actuators A: Physical, Vol 195: pp 50-55, (2013).
- [Ges 1997] G. Gesele, J. linsmeier, V. Drach, J. Fricke and R. Arens-Fisher
Temperature dependent thermal conductivity of porous silicon,
Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 30 (21), pp. 2911-2916, (1997).
- [Hän 2013] T. Hänninen
Implementing the 3-omega technique for thermal conductivity measurement,
Thèse: University of JYVÄSKYLÄ Finland, pp. 10; 13, (2013).
- [Hop 2009] P. E. Hopkins, L. M. Phinney
Thermal Conductivity Measurements on Polycrystalline Silicon Microbridges
Using the 3ω Technique,
J. Heat Transfer. Vol. 131(4): pp. 043201, (2009).
<https://doi.org/10.1115/1.3072907>
- [Hu 2006] X. J. Hu, A. A. Padilla, J. Xu, T. S. Fisher and K. E. Goodson
3-Omega Measurements of Vertically Oriented Carbon Nanotubes on Silicon,
Journal of Heat Transfer, Vol. 128 (11): pp.1109-1113, (2006).
- [Jac 2002] A. Jacquot, B. Lenoir and Dauscher
Numerical simulation of the 3ω method for measuring the thermal
conductivity,
Journal of applied physics, Vol. 7, pp. 4733-4738, (2002).
- [Jac 2003] A. Jacquot
Ingénierie des Matériaux et des Microgénérateurs Thermoélectriques
Planaires,
Thèse de doctorat, Université Martin-Luther de Halle-Wittenberg et Institut
National Polytechnique de Lorraine, pp. 52, (2003).
- [Kon 2008] D. De Koninck
Thermal conductivity measurements using the 3-omega technique:
Application to power harvesting Microsystems,
Master's thesis, McGill University, pp. 13, 31, 38, 40. (2008).
- [Lee 1997] S. M. Lee, D. G. Cahill, R. Venkatasubramanian
Thermal conductivity of Si-Ge superlattices,
Applied Physics Letters, Vol. 70 (22): pp. 2957-2959, (1997).
- [Mic 2001] L. Michalski, K. Echkersdorf, J. Kucharski and J. McGhee
Temperature Measurement,
Chichester, West Sussex, John Wiley et Sons, Ltd. (2001).
- [Moo 1996] I.K. Moon, Y. H. Jeong, and S. I. Kwun
The three omega technique for measuring dynamic specific heat and thermal
conductivity of a liquid or solid,
Review of Scientific Instruments, Vol. 67(1): pp 29-35, (1996).

- [Pen 2018] G. Pennelli, E. Dimaggio et M. Macucci
Improvement of the 3ω thermal conductivity measurement technique for its application at the nanoscale,
Review of Scientific Instruments Vol. 89: pp. 016104, (2018).
<https://doi.org/10.1063/1.5008807>
- [Ste 1983] G. R. Steward
Measurement of low-temperature specific heat,
Review of scientific instrument, Vol. 58 (1): pp. 1-11, (1983).

Chapitre 3 : Validation du dispositif de mesure basé sur la technique 3-oméga

Chapitre 3 : Validation du dispositif de mesure basé sur la technique 3-oméga.

Sommaire

3.1 INTRODUCTION	73
3.2 DISPOSITIF EXPERIMENTAL	74
3.2.1 Amplificateur à verrouillage (Lock-in amplifier).....	74
3.2.2 Micro-positionneurs (micromanipulateurs).....	75
3.2.3 Circuits à amplificateurs différentiels.....	76
3.2.4 Aménagement du dispositif expérimental et précautions de manipulation	77
3.2.5 Mode de fonctionnement du banc de mesures de la technique 3-oméga	77
3.3 MESURE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE DE MATERIAUX DE REFERENCE	80
3.3.1 Réalisation des éléments chauffants par la technologie photolithographie.....	81
3.3.1.1 Masques contenant les motifs des éléments chauffants	82
3.3.1.2 Procédures de dépôts des lignes de chauffe sur la surface de l'échantillon.....	83
3.4. MESURE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE D'UN SUBSTRAT SEUL	89
a) Limites fréquentielles de la zone linéaire :.....	93
b) Mesure expérimentales et discussions	95
3.4.1 Mesure du coefficient de température en résistance β_h (TCR).....	102
3.4.2 Précision et erreurs de mesure sur la conductivité thermique d'un substrat seul	105
3.5 ANALYSE NUMERIQUE BASEE SUR LA METHODE DES ELEMENTS FINIS (FEM).....	107
3.5.1 Introduction	107
3.5.2 Processus de modélisation et de simulation sous Comsol Multiphysics.....	109
3.5.3 Modélisation et simulation numérique par FEM de la technique 3ω	109
3.5.3.1 Description de la structure en 2D (géométrie et conditions aux limites).....	110
3.5.3.2 Module de transfert thermique	110
3.5.3.3 Source de chaleur	111
3.5.3.4 Maillage de la structure	111
3.5.3.5 Détermination de l'oscillation de la température ΔT_{AC}	113
3.5.3.6 Profil de diffusion thermique en profondeur de l'échantillon.....	116
3.6 VALIDATION DU MODELE DE SIMULATION PAR FEM SOUS COMSOL	119
3.7 CONCLUSION	124
3.8 BIBLIOGRAPHIE	126

3.1 INTRODUCTION

Nous avons présenté dans le chapitre précédent le principe et la théorie de la méthode 3-oméga pour la détermination de la conductivité thermique d'un matériau. Le travail qui est présenté dans cette partie a été réalisé dans le cadre de mes recherches en thèse effectuées au sein du groupe de recherche MITEC de l'IEMN à Lille (France).

La première partie de ce chapitre est consacrée à la présentation du dispositif et du protocole expérimental pour la caractérisation de la conductivité thermique de matériaux par la méthode 3-oméga.

Dans la deuxième partie de ce chapitre, nous présentons les différentes étapes de réalisation des lignes de chauffe métalliques (en or) sur l'échantillon à caractériser par la technique de photolithographie optique. Plusieurs dimensions (longueur l et largeur $2b$) sont choisies pour la ligne chauffante (résistance métallique). Deux exigences majeures concernant les caractéristiques de la ligne de chauffe sont à respecter : (i) une largeur et des bords uniformes de la ligne, (ii) une bonne adhérence entre la ligne déposée et la surface du matériau.

Dans la section expérimentale, afin de valider notre banc de mesure, nous caractérisons différents types d'échantillons dits de référence : le Br SiO₂, le Kapton MT et le GaAs qui ont des propriétés thermo physiques connues et disponibles dans la littérature scientifique. Dans cette partie, d'une part nous montrons les mesures du 3^{ème} harmonique de la tension et la variation de la température aux bornes d'une ligne métallique déposée sur la surface des échantillons investigués, dans la zone linéaire. D'autre part, nous décrivons la méthode d'extraction de la conductivité thermique de chaque matériau sous test à partir de la méthode de la pente. Les limites fréquentielles de la zone linéaire sont déterminées par une profondeur de pénétration thermique bien supérieure à la demi-largeur de l'élément chauffant et très inférieure à l'épaisseur du substrat. Puis nous présentons/interprétons nos résultats expérimentaux avant de les comparer à ceux obtenus théoriquement par la solution analytique de D. G. Cahill.

Enfin, dans la dernière partie du chapitre, nous présentons les résultats issus d'un modèle numérique de la méthode 3ω , basé sur la méthode des éléments finis (FEM) et construit à l'aide du logiciel Comsol Multiphysics®. Ce modèle de simulation prend en considération tous les paramètres utilisés dans la technique 3-oméga, tels que les géométries exactes de l'élément de chauffe et de l'échantillon, les conditions aux limites thermiques et les

propriétés physiques des matériaux. Il prend également en compte les hypothèses sur la ligne de chauffe et l'échantillon sous test posées par D. Cahill. Puis nous nous intéressons à la caractérisation, à travers cette méthode numérique, de l'évolution spatiale de la température depuis la source de chaleur (la ligne métallique) vers le fond de l'échantillon. Finalement, un traitement des données permet de faire une étude de comparaison entre les résultats obtenus expérimentalement, ceux issus de la simulation par la méthode des éléments finis et ceux obtenus à partir de la solution analytique proposée par D. G. Cahill. Cette étude comparative permet d'éventuels ajustements du modèle numérique par FEM.

3.2 DISPOSITIF EXPERIMENTAL

Un des premiers objectifs de notre travail était la mise en place d'un banc de mesure de la technique 3ω . Pour ce faire, il a été nécessaire d'assembler différents composants tels qu'un amplificateur (Amplificateur Lock-in SR830), un microscope, des micro-positionneurs, un thermomètre électronique (de type Digi-Sense), un micro-ohm mètre (de type Agilent 34420A à 4 fils), un multimètre (de type Agilent 34411A), un générateur de signaux arbitraires/fonctions (de type Agilent 33210A) et une carte d'acquisition à base d'amplificateurs différentiels (fabriquée dans le laboratoire). Nous faisons ci-après une brève description de chaque élément du banc de mesure.

3.2.1 Amplificateur à verrouillage (Lock-in amplifier)

Les amplificateurs Lock-in sont utilisés pour isoler les signaux en les verrouillant sur une fréquence particulière et en rejetant toutes les autres qui sont inutiles. Cet outil permet de mesurer des tensions avec un rapport signal sur bruit très faible. Un amplificateur nécessite un signal de référence pour déterminer la fréquence et la phase relative de la tension à mesurer [Thi 2013]. Dans ce travail, nous utilisons un amplificateur à verrouillage SRS 830 (Stanford Research Systems) pour mesurer le signal de la tension 3ω . Ce dispositif permet d'acquérir l'amplitude et la phase pour de faibles signaux (tensions et courants). A travers une technique appelée 'detection phase-sensitive', le filtrage peut être réalisé.

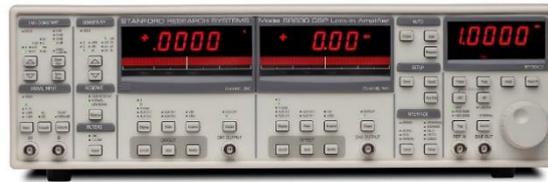


Figure 3.1 : Amplificateur à verrouillage modèle Lock-in SR830 (affiche simultanément la phase et l'amplitude du signal).

Plus de détails sur la mise en œuvre de cet amplificateur à verrouillage sont disponibles dans l'annexe B.

3.2.2 Micro-positionneurs (micromanipulateurs)

Les micro-positionneurs à 3 axes sont couramment utilisés dans l'industrie électronique et micro-électronique pour les tests d'appareils au niveau du prototypage. À l'extrémité du bras du micromanipulateur il y a de petites épingles dites microsondes d'un rayon de $7\ \mu\text{m}$ (à l'extrémité de la pointe) fabriquées en tungstène. Ils offrent un déplacement, très précis, reproductible et linéaire en positions X, Y (jusqu'à 7-8 mm) et un déplacement vertical Z qui peut aller jusqu'à 25 mm. Ils ont une résolution allant jusqu'à $20\ \mu\text{m}$, ce qui les rend pratiques pour sonder des pistes (points de contact) pouvant aller jusqu'à des dimensions de $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$. Pour ce fait, ils sont une excellente alternative à la connexion par fil lorsque des contacts temporaires sont nécessaires pour des tests.

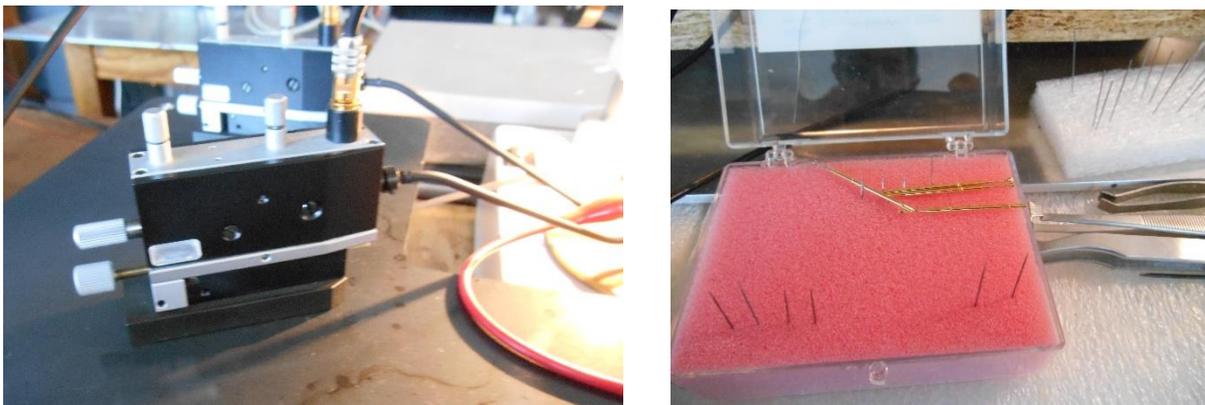


Figure 3.2 : Photographie d'un micro-positionneur à 3 axes (à gauche) et une boîte de microsondes (à droite) utilisés dans le banc de mesure 3-oméga.

3.2.3 Circuit à amplificateurs différentiels

La carte d'acquisition est constituée d'une résistance variable R_v (résistance d'équilibrage) en série avec la résistance métallique R (Fig. 3.3a). Deux amplificateurs différentiels type AD 624, de gain égal à 1, sont utilisés pour isoler la tension aux bornes de la résistance variable et celle de la ligne métallique. Ce type d'amplificateur de gain unitaire a une grande précision et présente un faible bruit de l'ordre de $0.2 \mu V_{p-p}$ pour une gamme de fréquences comprises entre 0.1 Hz et 10 Hz. Ils sont connectés aux entrées A et B d'amplificateur à verrouillage SRS 830 (au mode A-B). La résistance variable R_v est ajustée afin d'obtenir une tension nulle à la sortie de l'amplificateur SRS 830 pour une fréquence ω , d'où la valeur de cette résistance R_v et celle de la ligne métallique sont égales.

En passant au mode '3^{ème} harmonique', l'évolution fréquentielle de la tension aux bornes de la ligne de chauffe peut donc être mesurée et ainsi permettre la détermination de la valeur de la conductivité thermique de l'échantillon sous test. La validation de ce montage est effectuée au moyen d'une comparaison de nos résultats expérimentaux avec les données issues d'une part de l'exploitation de la solution analytique de Cahill et d'autre part de la littérature.

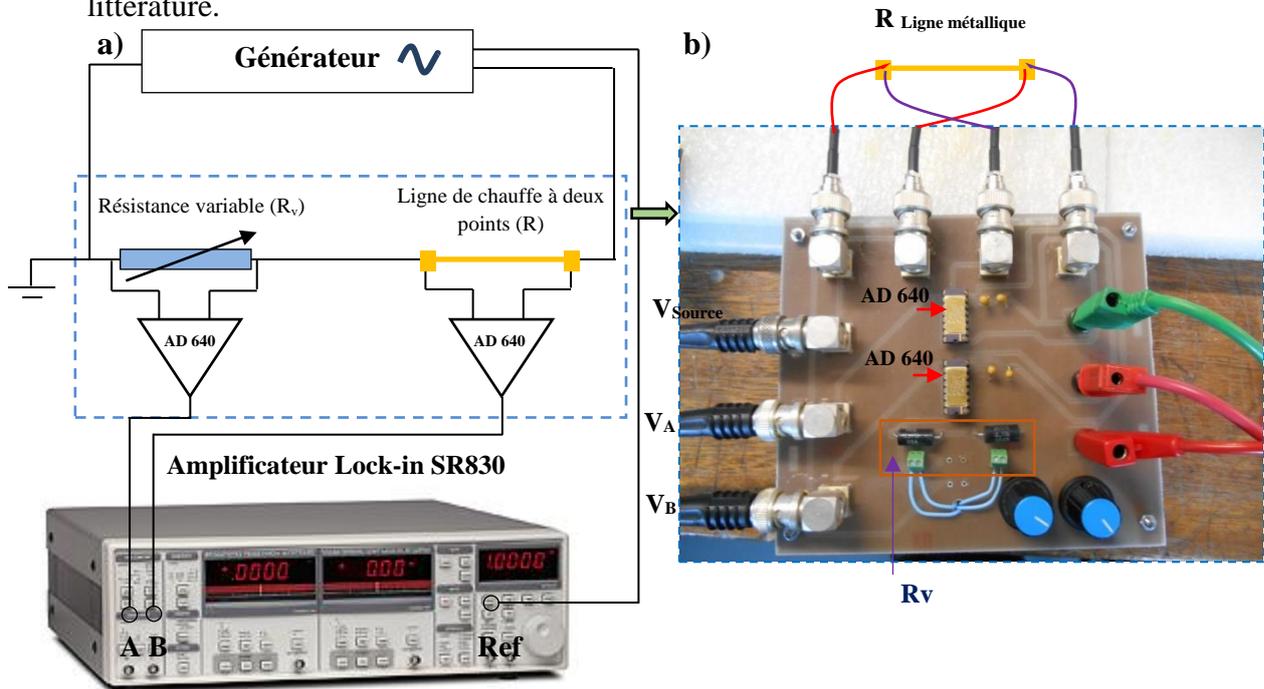


Figure 3.3 : a) Schéma pour le circuit utilisé dans le banc de mesure 3-oméga et b) carte d'acquisition (d'amplificateur différentiel, résistance variable, ...)

3.2.4 Aménagement du dispositif expérimental et précautions de manipulation

a. Isolation du banc de mesure vis-à-vis des vibrations extérieures : par nature, les vibrations provenant de l'extérieur sont les sources les plus importantes de bruit au niveau des micro-positionneurs. Ces vibrations peuvent conduire à une diminution substantielle du contact microsondes (pointes/échantillon).

Les principales vibrations, transmises par le sol sont les vibrations naturelles de basses fréquences et les vibrations générées mécaniquement par les possibles courants d'air existant dans la salle de mesure où se trouve le dispositif de mesure.

Pour une performance maximale, le banc de mesure a été placé sur une table 'anti-vibration' qui l'isole de toutes les fréquences provenant du sol. Ainsi, le microscope, le porte échantillon ainsi que les micro-positionneurs sont positionnés sur cette table. Les autres instruments, tels que les appareils électroniques (micro-ohm mètre,...) sont disposés à proximité de cette installation (Fig. 3.4).

b. Environnement du dispositif expérimental : il est très important de maintenir le banc de mesure dans un environnement à température ambiante constante. En effet, des changements importants de température de l'environnement du banc de mesure peuvent entraîner des phénomènes de dilatation, de contraction, ... de la ligne métallique (capteur thermique) conduisant à des perturbations de mesures.

La température ambiante de la salle de mesure varie de 22 à 29 °C. L'humidité relative est d'environ 35 %. Ces conditions expérimentales sont favorables à un bon fonctionnement du dispositif.

3.2.5 Mode de fonctionnement du banc de mesures de la technique 3-oméga

Le protocole de mesure se décompose en plusieurs étapes. D'abord, il est nécessaire de mesurer la résistance R_0 de la ligne métallique, à la température ambiante T_0 (salle), par la méthode dite des quatre fils. Le substrat, l'échantillon à tester, est placé sur une plaque de cuivre sous un microscope optique (modèle CLASSMAG). Puis, la résistance métallique est connectée à l'amplificateur différentiel par quatre micromanipulateurs. Un générateur de tension est activé à une fréquence correspondant à celle en régime linéaire. Il faut alors attendre quelques minutes, jusqu'à ce que l'échantillon atteigne l'équilibre thermique. Ensuite, nous faisons l'équilibre du circuit amplificateur différentiel en jouant sur la résistance variable de sorte que l'amplificateur différentiel Lock-in SR830® donne une

information de tension égale à zéro à la fréquence ω fondamentale. Ensuite, l'amplificateur différentiel Lock-in fournit les composantes en phase (in-phase) et en quadrature de phase (out-in-phase) du 3^{ème} harmonique de la tension. Ces étapes sont répétées pour un grand nombre de fréquences comprises dans la zone linéaire. Finalement, après avoir mesuré la tension à plusieurs fréquences 3ω , l'échantillon sous test est retiré du dessus de la plaque en cuivre et il est déposé sur une plaque chauffante afin de mesurer le coefficient de température en résistance (TCR). Comme nous le verrons dans les prochains paragraphes, cette mesure se fait à l'aide de trois thermocouples.

Une mesure 3-oméga correcte nécessite d'appliquer ce protocole avec beaucoup de soin. Le dispositif de mesure est présenté ci-dessous :

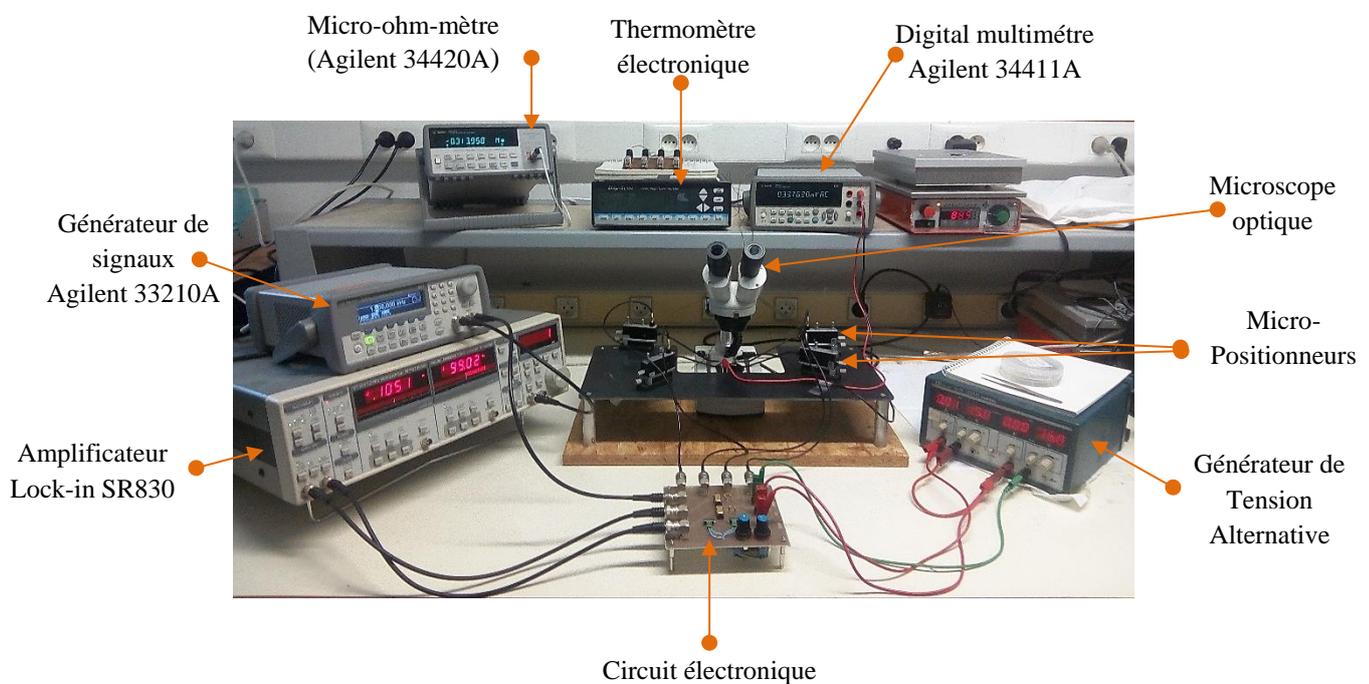


Figure 3.4 : Photographie d'ensemble du banc 3-oméga permettant la mesure de la conductivité thermique de matériaux.

Nous résumons ci-après la procédure de mesure sous forme d'actions.

1. Relever la température ambiante de la salle par un Scanning Thermocouple Thermomètre (Digi-Sense®),
2. Placer l'échantillon sur un support (porte échantillon) sous une vision d'un microscope optique.
3. Fixer les 4 pointes des micro-positionneurs à l'aide d'un microscope (modèle CLASSMAG) afin d'assurer une très bonne connexion avec les points (pads) de la ligne

métallique. La ligne de chauffe est, donc, en série avec une variable (circuit électronique).

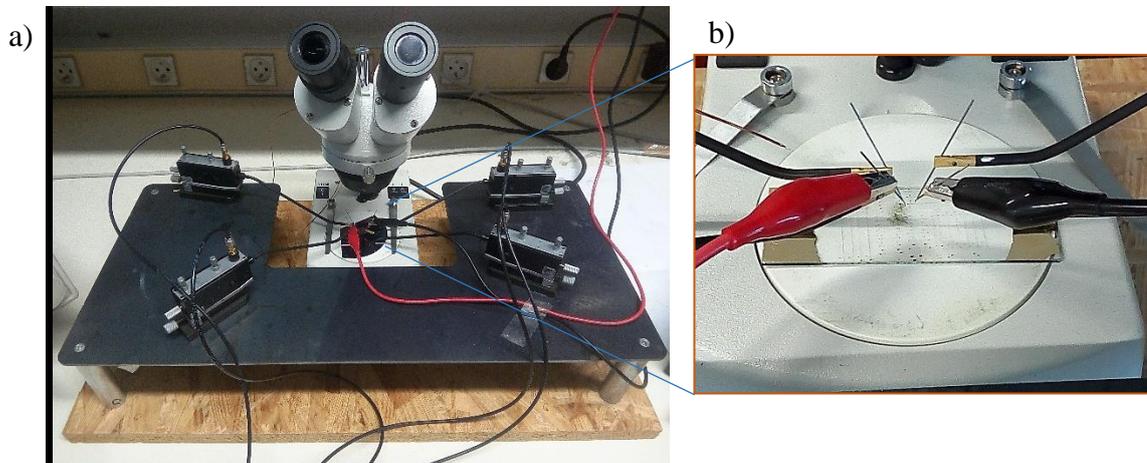


Figure 3.5 : a) Photographie d'un microscope optique pour pouvoir observer/connecter les 4 points à travers les 4 micro-positionneurs (type Cascade Micro Tech DPP105-AI-S) b) Zoom au microscope optique pour la mise en contact d'une ligne à deux points par 4 microsondes.

- Mesurer la résistance de ligne de chauffe R_0 à température ambiante T_0 . Pour se faire un micro-ohmmètre Agilent 34420A à 4 fils est connecté à la ligne métallique par les pointes des micro-positionneurs. La valeur de cette résistance est une donnée importante dans le calcul de la conductivité thermique du matériau. Nous enregistrons alors les valeurs moyennes, maximale et minimale de la résistance de la ligne métallique (une résolution maximale de $0.1 \mu\Omega$ sur la gamme de 1Ω). Le temps d'acquisition pour cette mesure est d'environ 15 minutes.
- Alimenter le circuit à l'aide d'un générateur de fonctions Agilent 33210A (source d'excitation). Cette source permet de générer un signal sinusoïdal allant jusqu'à $7 V_{rms}$ sur une bande fréquentielle allant de 1 mHz à 10 MHz . En effet, il est déconseillé d'appliquer une grande puissance pour réduire les pertes de chaleur par convection dans l'air.
- Choisir une fréquence maximale ainsi que la constante de temps T_c , pour avoir des valeurs stables.
- Equilibrer, à l'aide d'un potentiomètre, la résistance de la ligne de chauffe, de sorte que la phase affichée sur l'écran de l'amplificateur Lock-in SR830 atteigne 90° . Autrement

dit, la résistance est réglée pour avoir la même valeur que la résistance de la ligne métallique.

8. Relever la valeur de la tension AC initiale aux bornes de la résistance de chauffe à l'aide d'un Micro-ohm-mètre (Agilent 34420A), puis passer en mode 3^{ème} harmonique.
9. Noter la tension $V_{3\omega}$ (tension en 3^{ème} harmonique) et la phase, pour chaque fréquence du domaine de linéarité prédéfinie, après stabilisation des valeurs affichées sur l'écran de l'amplificateur Lock-in SR830.

Sous un environnement informatique (Matlab[®] ou Excel[®]), nous traçons la tension $V_{3\omega}$ en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les composantes en phase et en quadrature de phase (in-phase et out-of-phase). A partir du tracé de la composante en phase, nous obtenons une droite dont la pente donne directement accès à la conductivité thermique de l'échantillon par application de l'équation 2.50. rappelée ici:

$$k = \frac{V_0^3 \beta_h}{4\pi l R_0} * \frac{\ln\left(\frac{\omega_2}{\omega_1}\right)}{(V_{3\omega_1} - V_{3\omega_2})} \quad (2.50)$$

Rappelons que $V_{3\omega_1}$ et $V_{3\omega_2}$ sont les 3^{èmes} harmoniques de la tension mesurée aux fréquences angulaires ω_1 et ω_2 respectivement.

3.3 MESURE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE DE MATERIAUX DE REFERENCE

Afin de valider le banc de mesure, dans un premier temps nous effectuons des mesures, à température ambiante, sur des échantillons de référence. Pour cela, nous avons choisi des échantillons de conductivité thermique connue et répertoriée dans la littérature et plus particulièrement des matériaux commercialisés par la société Goodfellow [Goo 2020], comme le BrSiO2[®], le Kapton MT[®] et le GaAs. Ces matériaux ont été choisis parce qu'ils couvrent une large gamme de conductivités thermiques et aussi car ce sont des substrats (rigides et flexibles) en couches minces très utilisés actuellement dans l'industrie de la micro et nano technologie.

Comme il a été annoncé dans la partie précédente, les mesures doivent être effectuées sur une plage de fréquences, dite de régime thermique linéaire. Les lignes, comprenant deux ou quatre points (pads), sont déposées par photolithographie sur différents échantillons. Dans cet arrangement, les points extérieurs sont utilisés pour connecter les sondes qui servent à injecter

le courant de pulsation ω , alors que les deux autres points (intérieurs) sont utilisés pour mesurer la différence de potentiel électrique à la 3^{ème} harmonique aux bornes de l'élément de chauffe.

3.3.1 Réalisation des éléments chauffants par la technologie photolithographie

L'aspect le plus important de la technique 3ω réside dans la mesure précise du signal de troisième harmonique à travers les lignes de chauffe (micro-capteurs) déposées sur la surface de l'échantillon. Des procédures ont été déployées pour identifier et éliminer tout signal parasite à 3ω . Cependant, il faut également s'assurer que les mesures issues de ces lignes sont des indicateurs précis de mesure de la température dans l'échantillon. Ci-dessus, nous avons supposé une résistance thermique négligeable entre la ligne métallique et l'échantillon. Cette hypothèse cruciale repose sur notre capacité à fabriquer des éléments chauffants qui sont en contact thermique intime avec la surface de l'échantillon.

Rappelons que la méthode 3ω est basée sur la variation de la résistance de la ligne de chauffe en fonction de la température. Nous avons constaté que ces lignes nécessitaient un coefficient de résistance thermique (TCR) important pour générer un changement de la température par effet joule. En général, le matériau de choix pour la réalisation des lignes est l'or en raison de la linéarité de son TCR sur une large plage de températures, de sa stabilité à haute température ainsi que, dans une moindre mesure, de son coût réduit par rapport à d'autres matériaux (ex. le platine). Malheureusement, l'or n'accroche pas toujours très bien sur la surface de certains substrats. Aussi, nous lui avons associé une couche d'accroche de chrome (ou de Titane) de 30 à 50 nm, qui est d'abord déposée sur le substrat pour augmenter l'adhésion des lignes métalliques [Hua 2003].

Cette section décrit donc les différentes procédures utilisées dans ce travail pour le dépôt des lignes en couches minces Or/Chrome (Titane).

Il existe deux types de lithographies. La lithographie optique, celle que nous avons utilisée pour déposer une ligne de chauffe, et la lithographie électronique, qui est certes beaucoup plus précise mais très coûteuse. Dans notre cas la précision offerte par la lithographie optique est suffisante.

Nous donnons dans la suite les étapes propres à la lithographie optique que nous avons mises en œuvre dans ce travail.

3.3.1.1 Masques contenant les motifs des éléments chauffants

Le masque réalisé contient des lignes métalliques, lignes de chauffe, de différentes dimensions. Celles-ci sont conçues avec deux ou quatre pads de contact qui servent comme il a été dit précédemment à poser les pointes pour le passage du courant au travers de la ligne métallique, pour échauffer l'échantillon par effet-joule, et en même temps à mesurer la tension du troisième harmonique. Ce masque est un masque négatif qui a été utilisé pendant les travaux de recherche pour la détermination de la conductivité thermique de matériaux par la méthode 3ω d'une doctorante du groupe MITEC [Alk 2014]. Excepté le dépôt sur le substrat flexible en Kapton qui a été réalisé à partir d'un masque contenant d'autres motifs de lignes dites coplanaires (Fig. 3.6.a), la majorité de notre travail a bénéficié du 1^{er} masque (Fig. 3.6.b).

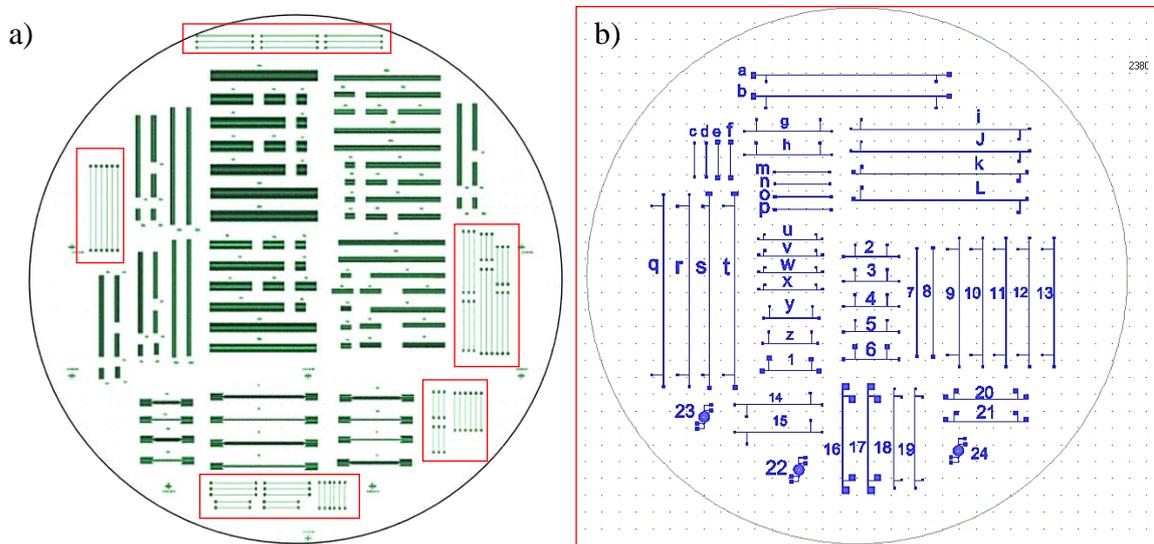


Figure 3.6 : Schématisation du masque optique pour le dépôt des lignes métalliques sur la surface de l'échantillon sous test (zones marquées en rouge). a) masque utilisé lors de dépôt ligne métallique sur le substrat flexible en Kapton et b) masque utilisé lors de dépôt des lignes de chauffes dans la majorité des échantillons étudiés.

Il s'agit de masques optiques en quartz de dimension 4", dont les motifs des lignes de chauffe sont créés à l'aide d'un logiciel, layout-editor. La figure 3.6 montre la géométrie des lignes généralement utilisées dans les mesures 3ω . Les éléments de chauffe sont constitués de deux pads ou de quatre pads de contact à leurs extrémités. Deux pads sont utilisés pour appliquer un courant et les deux autres pour mesurer la tension 3ω ainsi que la tension 1ω aux bornes de la ligne. Généralement, l'élément de chauffe est de forme rectangulaire et la longueur de la ligne de chauffe doit être beaucoup plus grande que la largeur, afin d'assurer

les critères de la solution 2D de la ligne de chauffe discutée au chapitre 2. Dans le cas présent, les longueurs des lignes varient entre 1 et 7 mm tandis que les largeurs sont comprises entre 5 μm et 50 μm . Toute rugosité ou déformation sur le bord latéral de la ligne entraîne une incertitude sur la largeur de la ligne et limite la précision des mesures. Aussi plusieurs lignes de largeurs et de longueurs différentes sont imprimées sur les échantillons, d'une part pour augmenter les possibilités d'obtenir des micro-capteurs de haute qualité et d'autre part pour estimer l'influence des caractéristiques de ces capteurs (incertitude sur la largeur, rugosité,...) sur la précision des mesures.

3.3.1.2 Procédures de dépôts des lignes de chauffe sur la surface de l'échantillon

Le procédé de réalisation de lignes métalliques sur la surface de l'échantillon pour les mesures 3ω est une étape critique. La mise en œuvre de la méthode de dépôt par photolithographie optique pour certains matériaux (échantillons) peut s'avérer difficile pour plusieurs raisons. En effet, il est nécessaire de disposer de diverses caractéristiques telles que la température de dilatation qui provoque l'apparition de fissures dans la résine ou encore la sensibilité/résistivité aux produits chimiques tels que l'acétone, l'éthanol ou encore les alcalins durant le dépôt.

La photolithographie optique crée des motifs dans un matériau sensible aux UV (appelé photorésist), qui sert de masque de gravure (Fig. 3.6). Tout d'abord, une goutte de résine photosensible placée au centre du substrat est enduite par rotation sur le substrat (spin coating). Deuxièmement, un masque photo positif, contenant les caractéristiques à transférer à la résine photosensible, est placé au-dessus du substrat. En exposant le substrat aux rayons UV, la partie exposée de la résine photosensible devient soluble. La résine photosensible est ensuite développée, laissant derrière elle le motif souhaité (zone non exposée).

Plus précisément, la réalisation des micro-capteurs métalliques par la technique de lithographie optique sur la surface de l'échantillon dont on veut extraire la conductivité thermique se déroule selon les étapes suivantes :

a) Nettoyage de substrat :

Le nettoyage de l'échantillon est primordial pour obtenir des résultats pertinents et reproductibles. Il permet d'éliminer les contaminants issus des nombreuses étapes de production antérieures telles que les poussières ou les impuretés organiques. En effet, afin

de minimiser la résistance de l'interface thermique et d'assurer l'adhérence des lignes métalliques à l'échantillon, une surface propre exempte de particules et de solvants est requise. Ainsi, l'échantillon est nettoyé dans des bains successifs de solvants. Il est d'abord immergé dans un bain d'acétone, qui est un bon solvant organique et s'évapore facilement, puis traité par ultrasons à 40 ° C pendant 5 à 10 minutes pour éliminer les contaminants de surface. Étant donné que l'acétone laisse son propre résidu, ce dernier doit être éliminé par un traitement similaire à l'aide d'un bain d'alcool isopropylique (IPA) pendant 3 minutes suivi d'un rinçage à l'eau désionisée (DI) pour éliminer toute trace de l'IPA. Ensuite, un séchage sous flux d'azote comprimé pour empêcher tout résidu en suspension de se déposer à nouveau sur la surface est réalisé. Enfin, l'échantillon est soumis à un recuit à 110°C pour éliminer toutes traces d'humidité et donc augmenter l'adhérence de la résine.

Dans le cas d'un substrat flexible, il est nécessaire d'utiliser un collage temporaire sur un substrat rigide. En effet, la lithographie directe sur un substrat souple impose beaucoup de contraintes liées à la flexibilité du substrat polymère. Généralement, le recours à des solutions chimiques ainsi que les traitements thermiques utilisés lors de la lithographie optique, entraînent la déformation des substrats polymères. Pour résoudre ce problème, nous avons opté pour le collage temporaire du substrat flexible sur un substrat rigide comme le silicium (voir annexe A).

b) Enduction :

Comme indiqué plus haut, le dépôt de la résine est effectué à la tournette, par "spin-coating". Dans notre cas, nous avons utilisé une résine négative, les zones non-insolées sont donc éliminées lors du développement (pour une résine positive ce sont les zones insolées qui sont éliminées). Chaque résine photosensible a un développeur spécifique. La résine sélectionnée dans ce travail est appelée AZnLOF 2020. Celle-ci est déposée à une vitesse de rotation de 4000 tours/min avec une accélération de 1000 tours/s pendant 14 secondes pour obtenir une distribution uniforme de la résine photosensible sur toute la surface de l'échantillon. L'épaisseur de la résine photosensible doit être d'environ 1 à 2 µm pour éviter les bulles d'air. Ensuite, l'échantillon résiné est recuit à 110 °C pendant 2 minutes afin d'évaporer le solvant contenu dans la résine et de la durcir [Pho 2020].

c) Insolation :

La seconde étape de la lithographie est l'insolation UV au travers d'un masque optique comportant l'un des motifs précités. L'exposition consiste à insoler ou exposer la résine

photosensible à un rayonnement de lumière ultraviolette de façon sélective en masquant la lumière aux endroits qui n'ont pas à être exposés. L'échantillon doit être très proche du masque pour éviter les effets de diffraction qui peuvent affecter la qualité des motifs reproduits. Une image latente correspondant au masque ou à son complément est obtenue dans la couche photosensible. Le masque est alors exposé à la lumière UV ($\lambda = 365 \text{ nm}$ et intensité = 10 mW/cm^2). La résine négative AZnLOF2020 est exposée à la lumière UV pendant 4 secondes avant un recuit à 110 °C pendant 3 minutes.

d) Développement :

La dernière étape de la lithographie est le développement (ou révélation). Il consiste à révéler l'image latente par la dissolution sélective de la couche photosensible. Selon que l'on a utilisé de la résine positive ou négative, l'image obtenue dans la résine sera l'image même du masque ou encore son complément :

- Résine positive : les zones exposées sont solubles au développeur, ce qui n'a pas été exposé demeure.
- Résine négative : les zones exposées sont insolubles au développeur, qui n'a pas été exposé est soluble.

Dans notre cas (résine négative), nous avons révélé les motifs par immersion de l'échantillon dans un bain contenant une solution spécifique, appelé développeur AZ326, à température ambiante pendant 1 minute et 30 secondes.

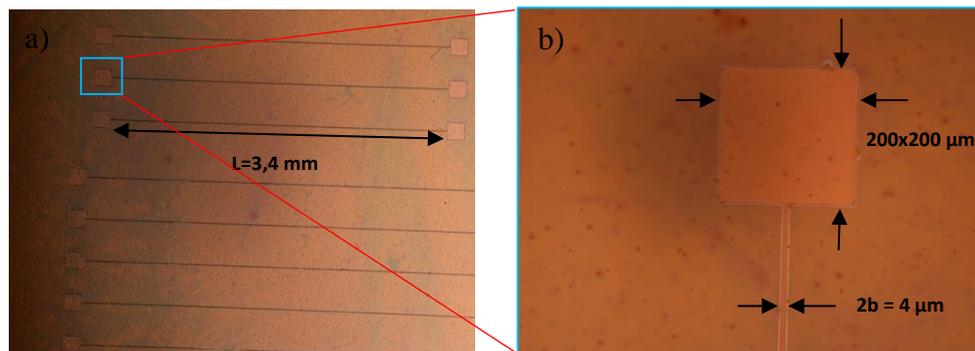


Figure 3.7 : Images réalisées grâce un microscope optique de l'élément chauffant sur le substrat (Kapton) avant le dépôt de la couche métallique (d' Au/Cr).b) Zoom de l'extrémité de la ligne de chauffe.

e) Métallisation par évaporation sous vide :

La méthode 3ω étant basée sur la variation de la résistance de la ligne de chauffe en fonction de la température, il est donc nécessaire de contrôler l'épaisseur de l'or déposé car la valeur de la résistance est directement liée à l'épaisseur de la piste.

La technique utilisée pour le dépôt du bicouche Au/Cr (410 / 30 nm) est l'évaporation sous vide. Cette technique consiste simplement à déposer sur le substrat une couche mince par condensation de la vapeur du métal. L'évaporation des métaux a lieu par chauffage d'un creuset en tungstène contenant le métal. A haute température, le métal se liquéfie et s'évapore, les particules de métal montent du creuset vers le substrat placé au-dessus comme illustré sur la figure 3.8. Afin d'améliorer l'homogénéité des couches, on place l'échantillon sur un porte échantillon sous vide et l'or est vaporisé. La couche obtenue présente une épaisseur uniforme sur la surface de l'échantillon. Pour contrôler cette épaisseur nous avons recours à une balance à quartz.

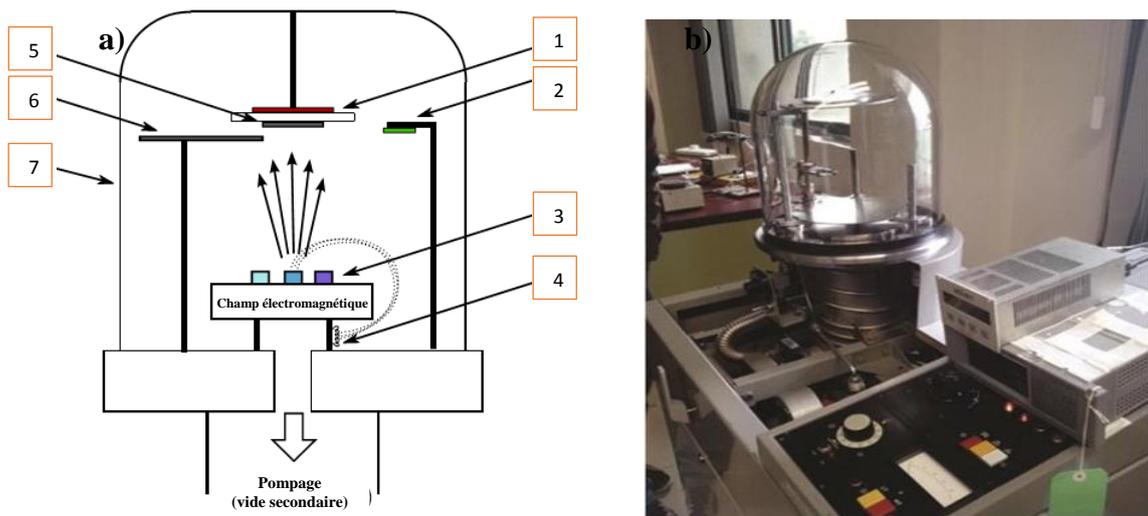


Figure 3.8 : a) Schéma et b) photographie d'une chambre d'évaporation du métal dans laquelle s'effectue le dépôt de couches minces métalliques (or) par évaporation. 1) Porte d'échantillon, 2) Balance à quartz, 3) Creuset (Cr, Ti, Au), 4) Filament en tungstène, 5) Echantillon, 6) Cache rotatif et 7) Enceinte sous vide.

Généralement, ce qui est notre cas, le dépôt de cette couche d'or est précédé du dépôt d'une sous couche d'adhésion en chrome (ou en titane) afin de renforcer l'adhérence de la couche d'or. Il faut noter que la couche d'adhérence doit rester très mince (10 à 50 nm) afin de ne pas introduire de résistance thermique parasite.

Des études ont montré que l'or déposé sur une fine couche de chrome (ou de titane) présente à la fois des propriétés d'adhésion intéressantes et un coefficient β_h élevé [Kim 1999, Kit 2019].

f) Procédé de "lift-off" :

Une fois métallisé, l'échantillon est plongé dans un bain de remover SVC 14 à 70 °C afin d'effectuer le "lift-off". A la fin du processus, le substrat est rincé avec de l'acétone et de l'isopropanol puis finalement séché avec un flux d'azote.

Un traitement de surface au plasma O₂ est effectué après le développement, avant la métallisation, afin de maintenir des lignes sur la surface d'échantillon [Nak 1996].

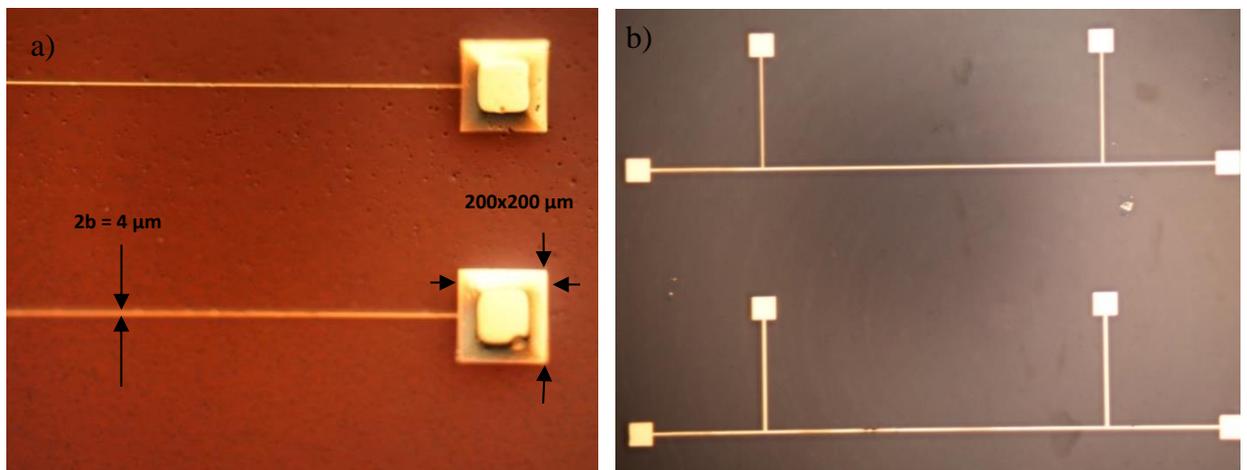


Figure 3.9 : Vue au microscope optique des lignes de chauffe déposées sur la surface d'un substrat après le dépôt de la couche métallique a) un substrat flexible (Kapton) avec des lignes à 2 pads et b) un substrat de GaAs avec des lignes à 4 pads.

Nous avons rencontré quelques problèmes au cours de cette procédure quand il s'agissait de substrats flexibles (Kapton). En effet, parmi les lignes obtenues, certaines sont discontinues (cassées) comme nous le montre la figure 3.10. Généralement, ce problème est dû à la couche d'accroche ou à la largeur très fine des lignes.

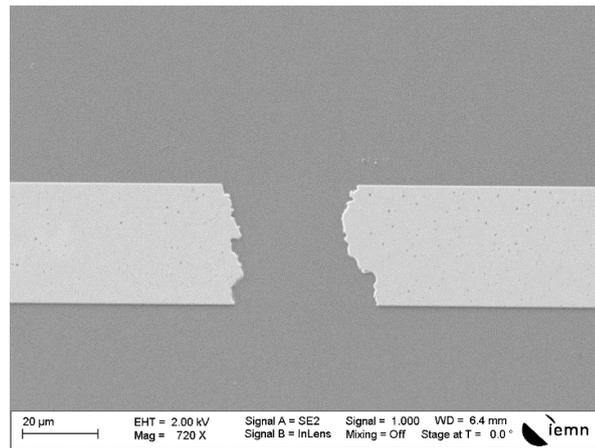


Figure 3.10 : Vue par une microscopie électronique à balayage (MEB) d'une ligne de chauffe mal formée (discontinue).

La figure suivante résume les différentes étapes de dépôt des lignes métalliques sur la surface d'un échantillon.

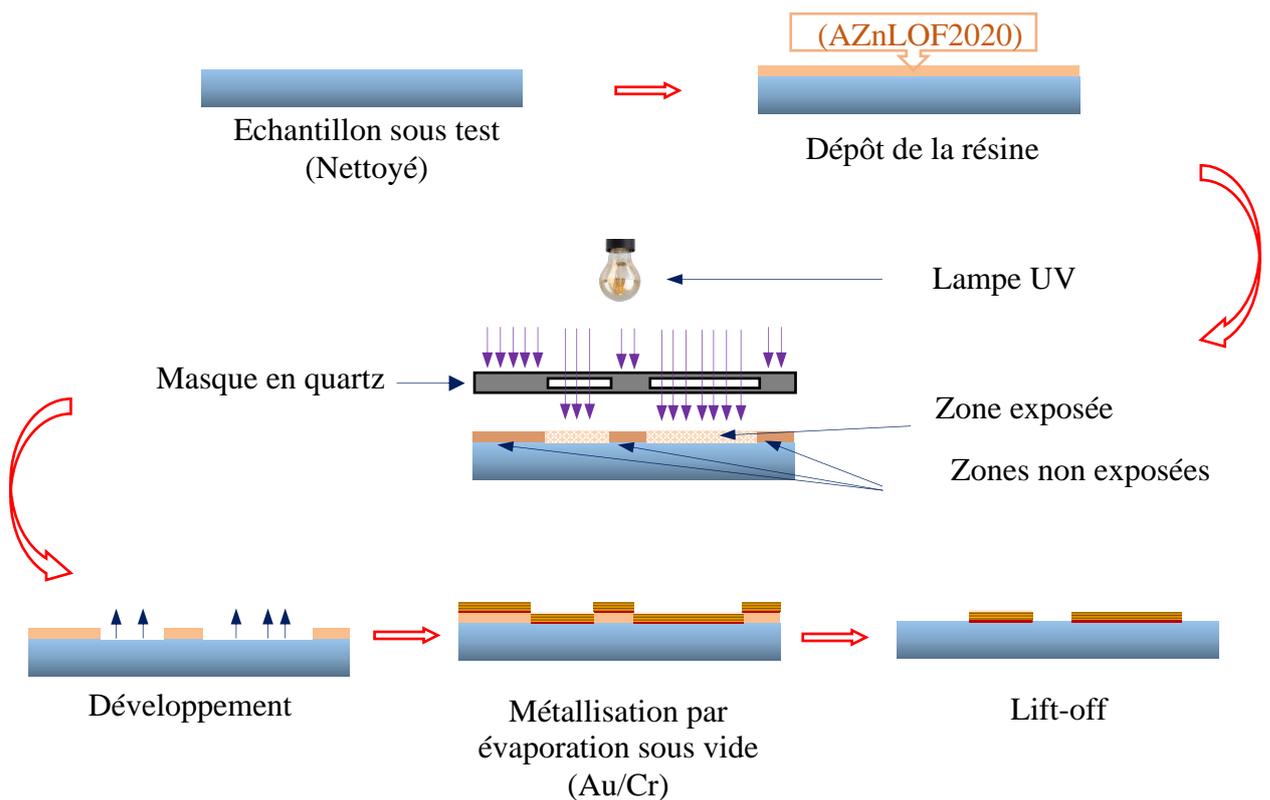


Figure 3.11 : Procédé de fabrication des lignes de chauffe sur la surface de l'échantillon par la technique de lithographie optique. La couleur bleue représente le substrat, le rouge et le jaune sont la couche d'accroche en chrome et la couche en or, respectivement.

Pour une meilleure précision, les dimensions de lignes de chauffe ($2b, l$) sont caractérisées à l'aide d'une microscopie électronique à balayage (MEB) ou par un profilomètre.

3.4. MESURE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE D'UN SUBSTRAT SEUL

Comme cela a été annoncé précédemment, de manière à valider le montage expérimental, nous avons déposé des lignes de chauffe sur des échantillons de conductivité thermique différente : le BrSiO₂[®], le Kapton MT[®] et le GaAs[®], dont les propriétés thermo physiques sont connues dans la littérature scientifique ou dans les fiches techniques pour les matériaux commercialisés. Les mesures sont effectuées au moyen du banc installé dans la salle de mesure, sur une large gamme de fréquences pour le régime thermique linéaire. Nos résultats expérimentaux sont ensuite comparés à la solution analytique de D. G. Cahill et les valeurs obtenues de la conductivité thermique comparées à celles trouvées dans la littérature.

Le premier échantillon choisi est le Borosilicate (BrSiO₂) ou le verre borosilicaté qui représente une catégorie de verre supportant d'assez hautes températures. Il est composé de 81 % de silice (SiO₂), 13 % d'oxyde de Bore (B₂O₃), 4 % d'oxydes alcalins (Na₂O, K₂O) et 2 % d'alumine (Al₂O₃) [Ded 2020, Gin 2015]. Il présente un faible coefficient de dilatation et se distingue par une excellente résistance thermique, 500 °C sur une courte durée. Cette résistance est trois fois supérieure à celle du verre courant. C'est le matériau le plus utilisé pour la fabrication de matériel de laboratoire, dans l'industrie électronique ou optique (écrans électroluminescents, capteur solaire thermique, substrat électronique, tube sous vide, ...) et dans l'industrie nucléaire. Il résiste à l'eau et à la plupart des produits chimiques exception faite de l'acide fluorhydrique (HF), de l'acide phosphorique (H₃PO₄) et des solutions alcalines qui peuvent l'attaquer [Cal 1999, Gin 2015].

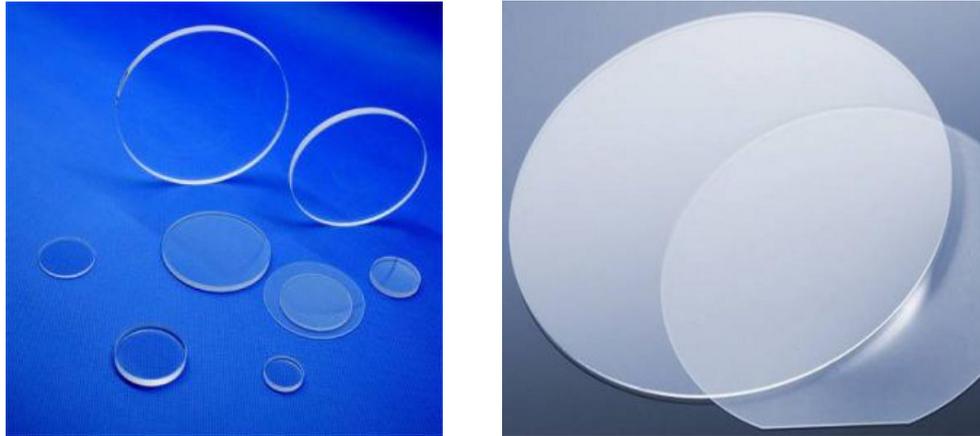


Figure 3.12 : Photographie d'un substrat de Borosilicate (BrSiO_2).

Cet échantillon a une épaisseur d_s de 700 μm et les lignes sont formées par une couche d'accroche de chrome d'environ 10 à 20 nm, recouverte d'une couche d'or de 430 nm d'épaisseur. La valeur de la diffusivité thermique est calculée en utilisant les valeurs de la conductivité thermique k trouvée dans la littérature qui varie entre 1.14 et 1.2 W/m.K [Wik 2020, Har 2012, Die 2020, Mat 2020], de la capacité thermique $C_p=750$ J/kgK et de la masse volumique $\rho=2230$ kg/m³.

Le deuxième matériau est un polyimide nommé Kapton (polymère à base d'imide) développé par la société DuPont non fissible et coloré (souvent ambré) [Dup 2019, Goo 2020]. Il possède un ensemble unique de propriétés qui le recommande pour un grand nombre d'applications dans de nombreuses industries grâce à son excellent équilibre entre les caractéristiques électrique, thermique (stabilité dans une plage étendue de températures de -269 °C à 400 °C), mécanique, physique et chimique. Il est utilisé dans le processus de fabrication des circuits imprimés souples et pour l'isolation de certains fils électriques dans les domaines aéronautiques et spatiaux (lanceurs et satellites) [Kap 2020]. Il est très utile dans le domaine de l'impression 3D grâce à son adhérence avec d'autres matériaux plastiques à des températures dépassant les 40 °C. Il existe plusieurs type de Kapton commercialisés sur le marché comme le Kapton MT (chargé d'oxyde d'aluminium), le HN (Kapton normal), le KJ (thermoplastique), le VN, le FN etc... [Dup 2019, Goo 2020].

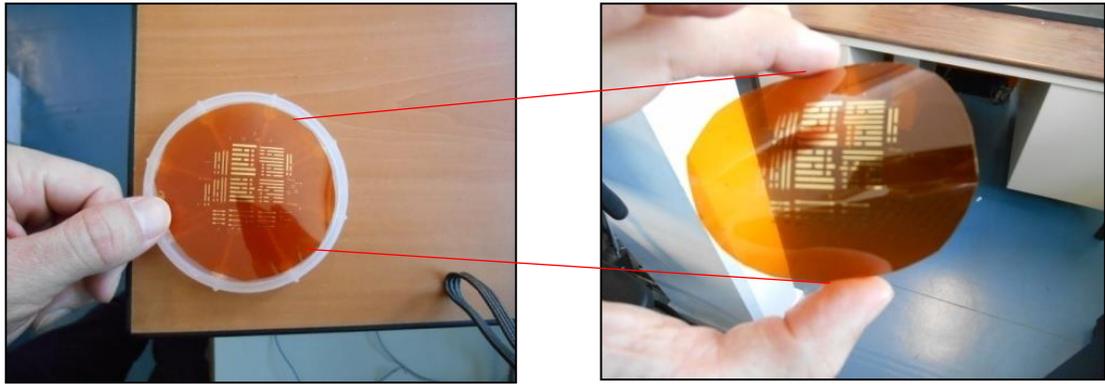


Figure 3.13 : Photographie d'un film de Kapton® MT.

Dans ce travail, nous avons choisi un film de Kapton MT avec une épaisseur d_s de $127 \mu\text{m}$, une conductivité thermique k (à $23 \text{ }^\circ\text{C}$) tirée de littérature variant entre 0.32 et 0.37 W/m.K [Jac 2003, Alk 2014], une densité $\rho = 1420 \text{ kg/m}^3$ et une chaleur spécifique $C_p = 1090 \text{ J/kg K}$. Plusieurs lignes métalliques formées par une couche d'accroche de chrome (entre 20 et 30 nm d'épaisseur) couverte d'une couche d'or (d'épaisseur 400 nm) ont été déposées sur la surface de cet échantillon. La figure 3.13 représente le film flexible de Kapton MT avec les lignes métalliques déposées à sa surface.

La figure suivante (Fig. 3.14) montre un zoom d'une ligne à deux pads déposée sur la surface d'un Kapton MT.

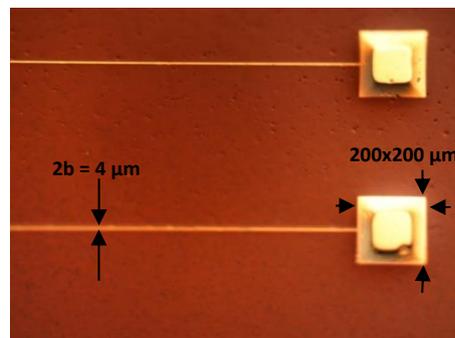


Figure 3.14 : Photographie par microscope optique des lignes métalliques déposées par photolithographie à la surface de Kapton® MT.

Le masque que nous avons utilisé dans la procédure de lithographie, pour le dépôt des lignes, est celui présenté dans la partie précédente (Fig. 3.6.a)

Le troisième échantillon sélectionné est l'arséniure de gallium (GaAs) qui appartient à la famille des semi-conducteurs III-V [Mad 1982]. Il a été créé par la société Goldschmidt en 1929, mais les premières propriétés électroniques de ce semi-conducteur ne furent

démontrées qu'en 1952 [Gol 1929]. C'est un matériau semi-conducteur à gap direct (contrairement au silicium qui a lui un gap indirect), ce qui en fait un matériau de choix pour des applications en optoélectronique [Nms 2020, Luo 2013]. Cela signifie que le minimum de la bande de conduction est directement au-dessus du maximum de la bande de valence. Les transitions entre la bande de valence et la bande de conduction ne nécessitent donc qu'un seul changement d'énergie, et non un changement de moment [Gru 1979, Yub 1988]. Par contre, il est oxydable dans l'air, ce qui dégrade ses performances en tant que semi-conducteur. Il est surtout utilisé pour réaliser des composants micro-ondes, des circuits intégrés monolithiques hyperfréquences notamment parce que les dispositifs en technologie GaAs génèrent moins de bruit en hautes fréquences que ceux à base de silicium. Il est très utile pour la fabrication de diodes électroluminescentes et de lasers à semi-conducteurs, car un photon est émis quand un électron change de niveau d'énergie en passant de la bande de conduction à la bande valence [Ohk 2003, Ter 1999]. A l'inverse, un photon incident peut exciter un électron de la bande de valence à la bande de conduction, ce qui permet d'utiliser le GaAs dans les détecteurs photovoltaïques [Amb 2006, Los 2002, Sil 2013]. Il est couramment utilisé comme substrat pour la croissance épitaxiale d'autres éléments dans le groupe III-V tels que l'arséniure de gallium indium $\text{In}_x \text{Ga}_{1-x} \text{As}$ et l'arséniure de gallium aluminium $\text{Al}_x \text{Ga}_{1-x} \text{As}$ [Yam 2017].

Le cristal GaAs est composé de deux sous-réseaux identiques, sous forme Cubique à Faces Centrées (FCC). Chacun est décalé par rapport à l'autre par la moitié de la diagonale du cube. Cette configuration cristalline est connue sous le nom blende de zinc et elle est représentée sur la figure 3.15.

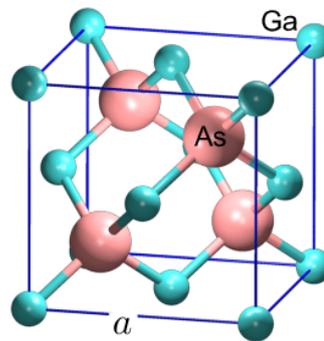


Figure 3.15 : Réseau cristallin du GaAs (blende de zinc).

Le substrat d'arséniure de gallium utilisé dans cette étude se présente sous la forme d'un wafer d'une épaisseur d_s de 350 μm et de 2 pouces de diamètre (environ 50 mm) avec une

orientation cristallographique (100). Il existe plusieurs références bibliographiques qui donnent une estimation de la conductivité thermique de ce matériau à température ambiante. Les valeurs se situent entre 43 et 55 W/m.K environ [Mio 2005, Nms 2020, Luo 2013, Iny 2003]. Les valeurs retenues pour la densité et la chaleur spécifique sont respectivement $\rho=5320 \text{ kg/m}^3$ et $C_p=327 \text{ J/kg K}$. Par la technique de lithographie optique nous avons pu déposer des lignes métalliques de 450 nm d'épaisseur (une couche d'or d'épaisseur 430 nm avec une couche d'adhésion en chrome de 20 nm).

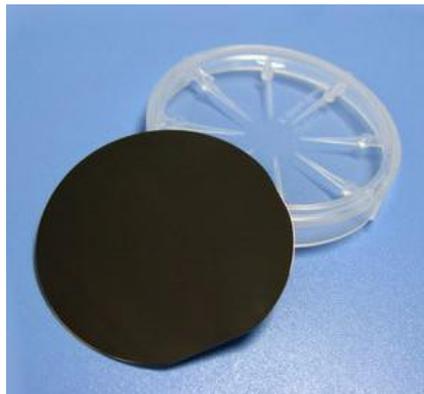


Figure 3.16 : Photographie d'un wafer, de 2 pouces de diamètre, d'Arséniure de gallium GaAs (100).

a) Limites fréquentielles de la zone linéaire :

Les limites fréquentielles de la zone thermique linéaire correspondant à chaque ligne sont calculées à partir de l'équation 2.52. Pour ces matériaux, nous avons calculé les bornes de cette zone à partir de données trouvées dans la littérature scientifique. La zone est ensuite légèrement ajustée suivant la valeur de la conductivité thermique trouvée au cours de nos mesures.

Rappelons que dans le cas où les propriétés du matériau (diffusivité,..) sont inconnues, nous utilisons les propriétés de matériaux qui présentent une structure semblable, afin d'avoir une première estimation de la zone linéaire.

Nous présentons dans le tableau 3.1 les limites de cette zone dans le cas d'un échantillon de Br SiO₂.

Ligne	2b (μm)	Zone linéaire (Hz)
Ligne 1. (a,b,c)	30 ± 0.2	2,92 < f < 8.929
Ligne 2	10 ± 0.2	2,92 < f < 63.605
Ligne 3	20 ± 0.2	2,92 < f < 22.838

Tableau 3.1 : Bornes du régime thermique linéaire pour chaque ligne de chauffe déposées à la surface du BrSiO₂.

Nous remarquons que la limite inférieure de la zone linéaire est la même pour toutes les lignes, $f_{inf} = 2.92$ Hz, car l'épaisseur du substrat d_s reste invariable.

Dans le cas de l'échantillon flexible de Kapton, le domaine fréquentiel sur lequel nous effectuons les mesures est calculé à partir d'une valeur de la conductivité thermique égale à 0.36 W/m.K. Notre échantillon ayant une épaisseur d_s et une largeur $2b$ de la ligne de chauffe fixes (voir tableau 3.2), les fréquences minimale et maximale de cette zone reste identique tout au long de nos mesures.

Ligne	2b (μm)	Zone linéaire (Hz)
Ligne 4, 5. (a,b,c) et 6	30 ± 0.2	29.31 < f < 190.22

Tableau 3.2 : Bornes du régime thermique linéaire pour chaque ligne de chauffe déposées à la surface du Kapton.

Concernant l'arséniure de gallium, la valeur de la conductivité thermique retenue pour l'estimation de la plage fréquentielle linéaire est égale à 46 W/m.K. Le tableau suivant donne les limites du domaine linéaire pour chaque ligne métallique de l'arguer $2b$.

Ligne	2b /μm	Zone linéaire /Hz
Ligne 7	10 ± 0.2	401 < f < 2939.581
Ligne 8	10 ± 0.2	401 < f < 2939.581
Ligne 9. (a,b,c)	20 ± 0.2	401 < f < 803.532

Tableau 3.3 : Bornes du régime thermique linéaire pour chaque ligne de chauffe déposées à la surface de GaAs.

Nous remarquons que la borne inférieure de la zone linéaire reste ici encore constante pour toutes les lignes, $f_{inf} = 401$ Hz, car l'épaisseur du substrat d_s reste invariable. En

outre, les lignes 7 et 8 ayant la même largeur $2b$, les bornes supérieures de la zone linéaire sont égales, $f_{sup} = 2939.581$ Hz.

b) Mesure expérimentales et discussions

Le tableau 3.4 résume les caractéristiques des lignes de chauffe ainsi que les paramètres nécessaires à la mesure de la 3^{ème} harmonique de la tension par la technique 3ω . Nous y retrouvons les dimensions de la ligne de chauffe ($2b$, l), la résistance et la tension initiales à la température ambiante de la salle T_0 , le coefficient de température en résistance β_h et la puissance linéique P_{rms} utilisée pour chaque ligne métallique. La dernière colonne donne la température ambiante de la salle T_0 . Rappelons également que nous avons mesuré les résistances électriques de ces lignes par la méthode à 4 fils.

Ligne	$2b$ (μm)	L (mm)	R_o (Ω)	V_0 (v)	P_{rms} (W/m)	β_h ($1/^\circ C$)	T_0 ($^\circ C$)
Br SiO ₂							
Ligne 1.a			18.001	0.468	1.472		26.40
Ligne 1.b	30	8	17.982	0.614	2.735	2.900×10^{-3}	26.40
Ligne 1.c			18.011	0.837	4.868		26.70
Ligne 2	10	7.2	45.285	0.708	1.540	2.880×10^{-3}	27.55
Ligne 3	20	3	10.110	0.314	3.307	2.810×10^{-3}	27.45
Kapton MT							
Ligne 4	4	2.4	31.588	0.275	1.027	3.380×10^{-3}	24.65
Ligne 5.a			46.393	0.322	0.669		24.35
Ligne 5.b	4	3.4	46.071	0.650	2.698	3.120×10^{-3}	28.55
Ligne 5.c			46.018	0.972	6.038		28.85
Ligne 6	4	4.5	61.689	0.358	0.456	3.343×10^{-3}	22.45
GaAs							
Ligne 7	10	5	33.201	0.799	3.840	3.040×10^{-3}	27.35
Ligne 8	10	3.8	26.436	0.771	5.916	3.070×10^{-3}	26.55
Ligne 9.a			30.028	0.764	2.286		27.25
Ligne 9.b	20	8.5	29.836	0.871	2.988	3.060×10^{-3}	26.45
Ligne 9.c			29.829	1.034	4.214		26.50

Tableau 3.4 : Caractéristiques des lignes de chauffe déposées sur les échantillons sélectionnés par la technique de lithographie optique.

Nous avons montré, dans les paragraphes précédents, le protocole à suivre pour la mesure de la tension 3ω ainsi que de la variation de la température au moyen d'un banc de mesure basé sur la technique 3-oméga. Dans un premier temps, nous présentons les variations de la composante en phase et en quadrature de phase de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$, des lignes 1,5 et 9, en fonction du logarithme népérien de 2ω , pour des puissances différentes.

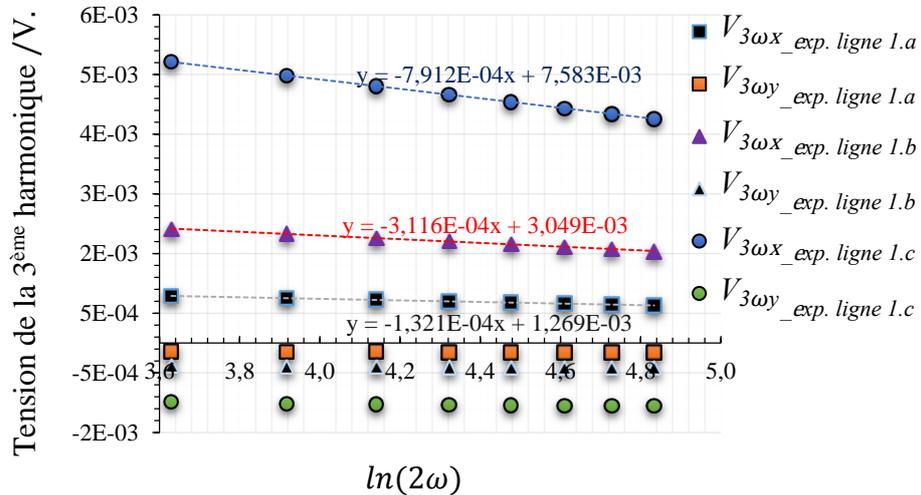


Figure 3.17 : Résultats expérimentaux de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ (composantes en phase et en quadrature de phase) en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 1 (pour différentes puissances).

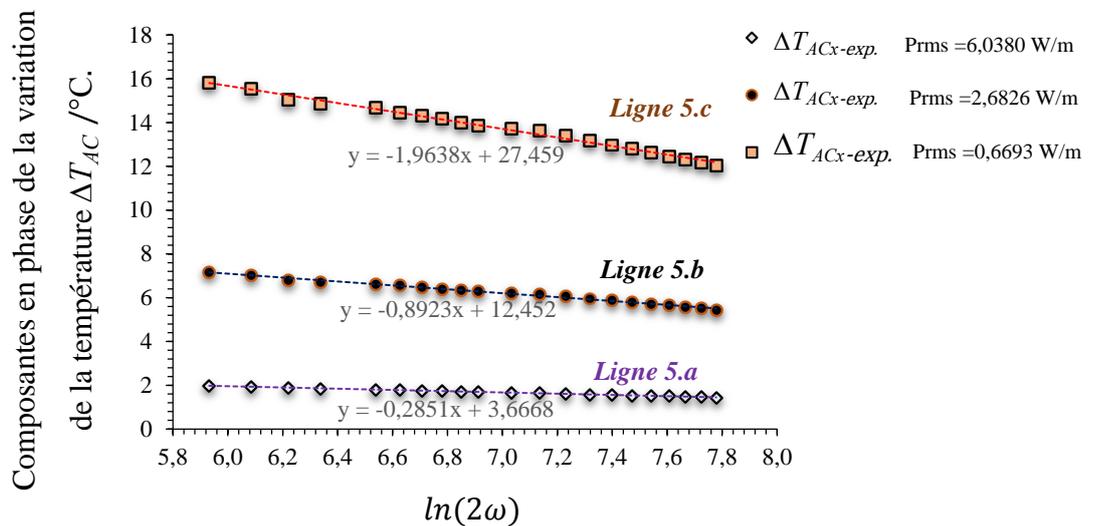


Figure 3.18 : Résultats expérimentaux de variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ (composantes en phase) pour la ligne 5 (pour différentes puissances).

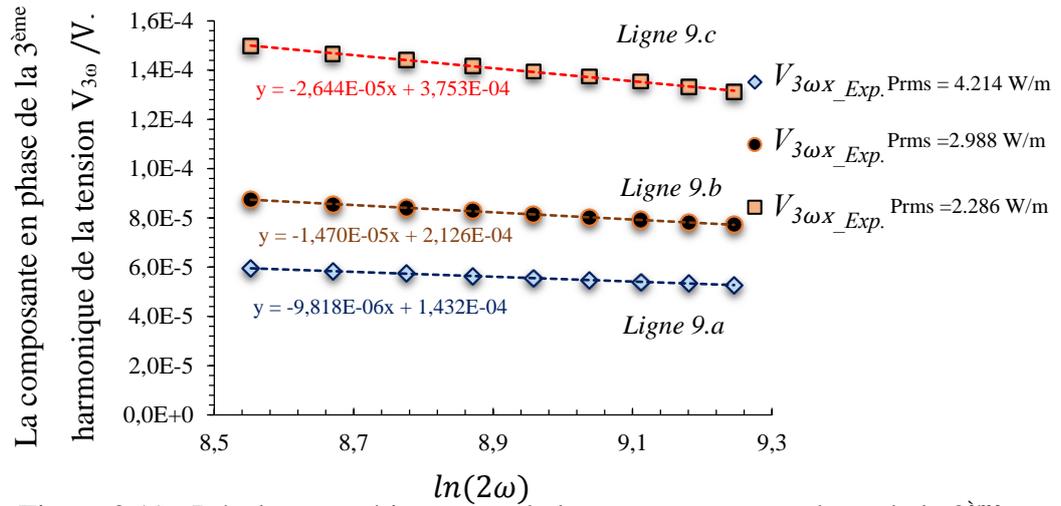


Figure 3.19 : Résultats expérimentaux de la composantes en phase de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 9 (pour différentes puissances).

Nous remarquons une faible variation de la pente de la partie en phase de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ (ou de la température) lorsque la puissance appliquée est augmentée. Par contre, les parties en quadrature de phase de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ (ou de la température) restent quant à elle quasi constantes. Pour cette raison nous présentons uniquement les composantes en phase. Nous notons sur ces figures que la pente augmente, légèrement en fonction de la puissance. Il est donc déconseillé de mettre trop de puissance afin de ne pas influencer sur la valeur de conductivité thermique mesurée de l'échantillon.

Les figures suivantes présentent les résultats obtenus expérimentalement et ceux issus des solutions analytiques de D. G. Cahill de la variation de la température ΔT_{AC} (ou la 3^{ème} harmonique de la tension) en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes 2, 3, 4, 6, 7 et 8.

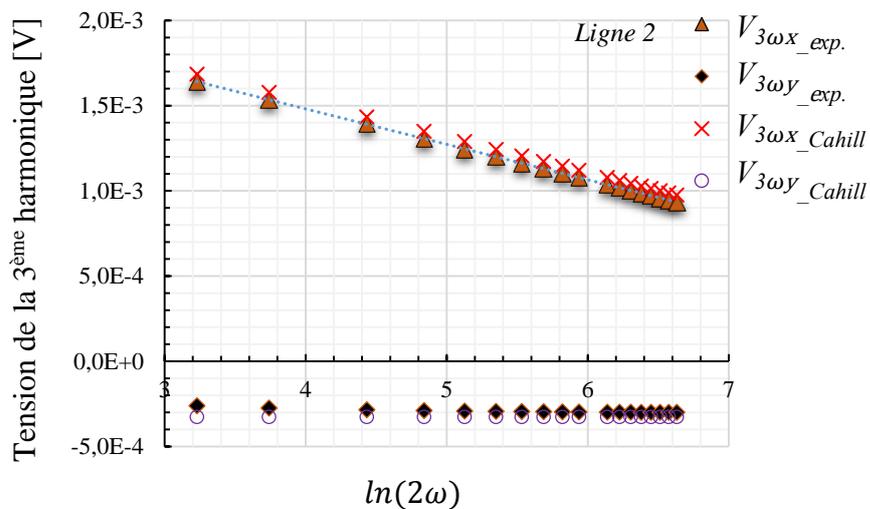


Figure 3.20 : Composantes en phase et en quadrature de phase de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 2. (Pour le BrSiO_2)

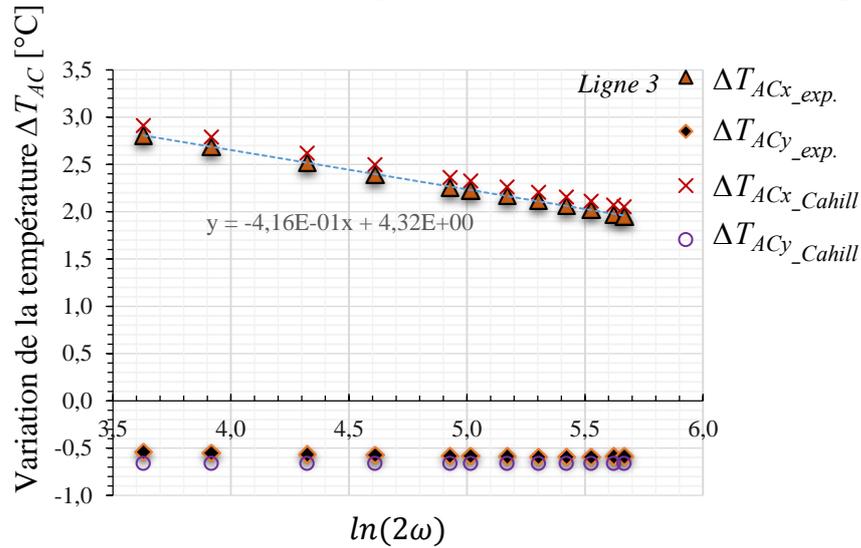


Figure 3.21 : Composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 3. (pour le BrSiO₂)

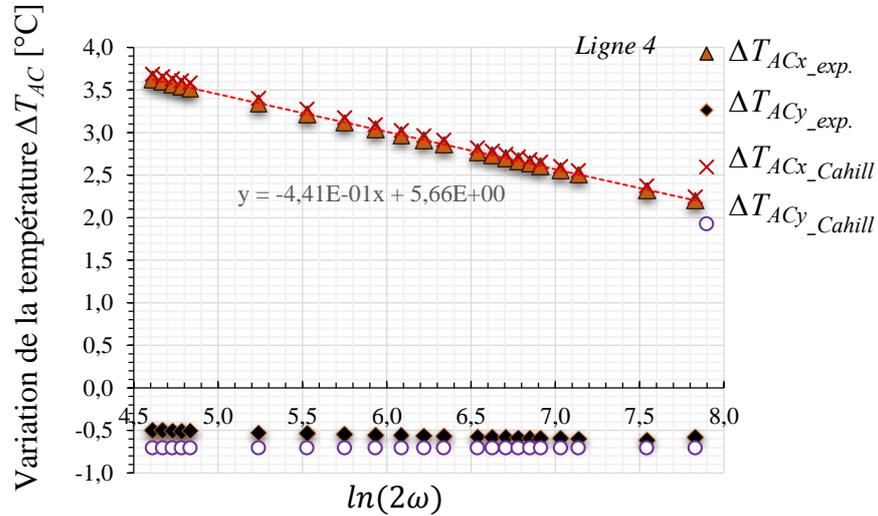


Figure 3.22 : Composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 4. (pour le Kapton)

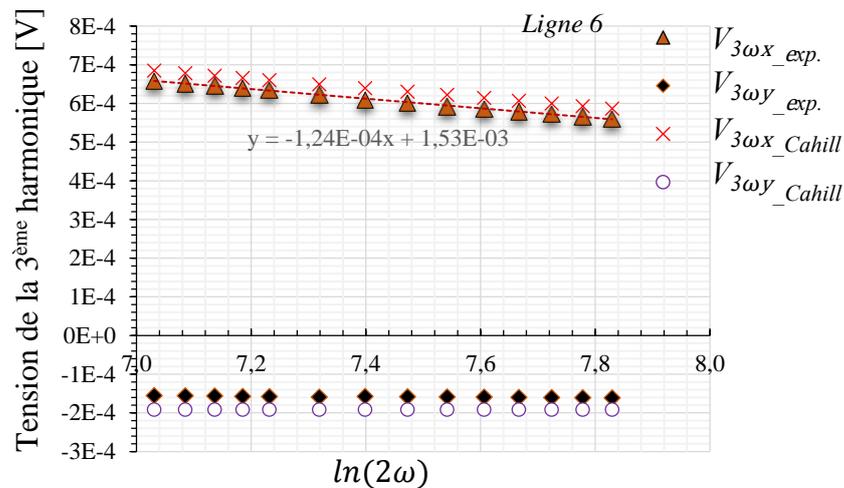


Figure 3.23 : Composantes en phase et en quadrature de phase de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 6. (pour le Kapton)

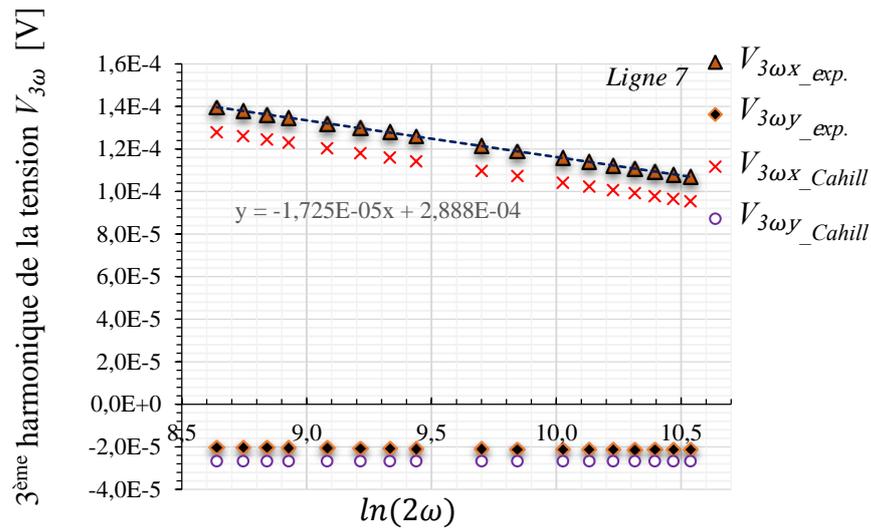


Figure 3.24 : Composantes en phase et en quadrature de phase de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 7 (avec $P_{rms} = 3.8422$ W/m). (pour le GaAs)

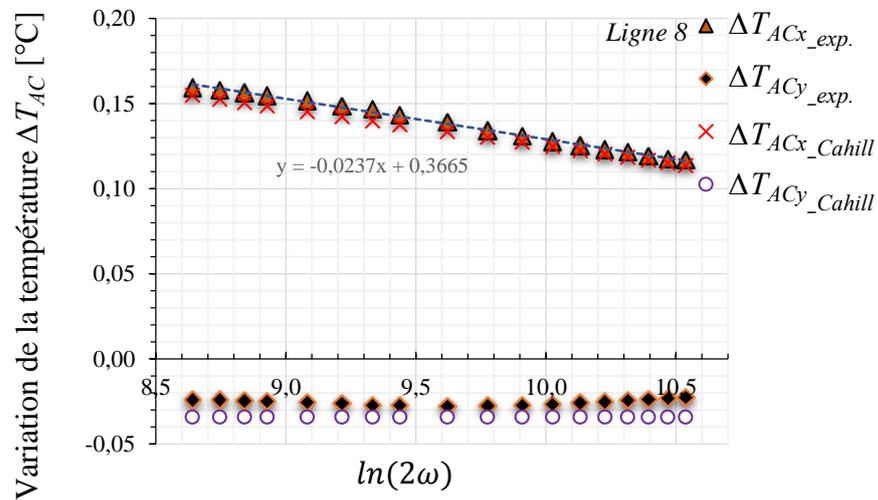


Figure 3.25 : Comparaison entre les résultats obtenus expérimentalement et la simulation analytique de Cahill. Les composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 8 (avec $P_{rms} = 5.9164$ W/m), (pour le GaAs).

Sur les figures ci-dessus, les courbes formées par des triangles et des losanges représentent respectivement les composantes en phase ΔT_{ACx} et quadrature de phase ΔT_{ACy} de la variation de température ΔT_{AC} (ou la 3^{ème} harmonique de la tension), obtenues expérimentalement. Alors que les courbes représentées à partir de croix rouges et de cercles représentent respectivement les composantes en phase et quadrature de phase de la variation de la température ΔT_{AC} (ou la 3^{ème} harmonique de la tension), calculées selon la solution de D. G. Cahill (Eq. 2.48) simulée sous Matlab®. Rappelons que la 3^{ème} harmonique de la

tension et la variation de la température sont liées par un facteur de proportionnalité (éq. 2.12).

Nous remarquons par exemple sur la Figure 3.24 un léger décalage, entre le tracé de la composante en phase de la 3^{ème} harmonique de la tension ($V_{3\omega x}$) obtenue expérimentalement et celui tiré de la solution analytique de D.G. Cahill. Nous attribuons cet écart à l'existence d'une résistance thermique de contact entre la ligne de chauffe et la surface du substrat de GaAs. Nous proposons dans le dernier chapitre de ce manuscrit une étude fine de cette résistance thermique de contact.

Généralement, nous remarquons que les résultats expérimentaux et les résultats obtenus à partir de la solution de D. G. Cahill sont pratiquement confondus. Cela signifie que la solution analytique proposée par D. G. Cahill offre une très bonne approximation (dans la zone linéaire).

Le tableau 3.5 résume les valeurs expérimentales de la conductivité thermique des échantillons sous test obtenues pour un ensemble de lignes déposées sur la surface des matériaux considérés. Celle-ci est déduite grâce à la méthode de la pente (Eq. 2.50).

<i>Ligne</i>	<i>k mesurée</i> W/(m.K)	<i>k moyenne</i> W/(m.K)	Δk W/(m.K)	ε %
Br SiO ₂				
Ligne 1.a	1.201	1.201	0.688×10^{-3}	0.057 %
Ligne 1.b	1.190		11.608×10^{-3}	0.966 %
Ligne 1.c	1.187		14.448×10^{-3}	1.202 %
Ligne 2	1.199		2.468×10^{-3}	0.205 %
Ligne 3	1.200		0.968×10^{-3}	0.081 %
Kapton MT				
Ligne 4	0.367	0.365	2.622×10^{-3}	0.718 %
Ligne 5.a	0.368		5.273×10^{-3}	1.444 %
Ligne 5.b	0.363		-1.617×10^{-3}	0.443 %
Ligne 5.c	0.382		17.326×10^{-3}	4.743 %

Ligne 6	0.353		-11.467×10^{-3}	3.140 %
GaAs				
Ligne 7	43.648	43.188	0.459	1.064 %
Ligne 8	43.284		0.095	0.222 %
Ligne 9.a	43.914		0.725	1.681 %
Ligne 9.b	43.457		0.268	0.621 %
Ligne 9.c	41.113		-2.075	4.806 %

Tableau 3.5 : Résultats expérimentaux de la conductivité thermique du borosilicate k_{BrSiO_2} , du Kapton k_{Kapton} et de l'arséniure de galium k_{GaAs} obtenue par la méthode de la pente.

La dernière colonne du tableau ci-dessus, représente l'écart type standard sur la conductivité thermique mesurée par rapport à la valeur moyenne.

La valeur moyenne de la conductivité thermique du 1^{er} échantillon (borosilicate) k_{BrSiO_2} mesurée par la méthode 3-oméga est donc égale à $1.201 \pm 7.5 \times 10^{-3}$ W/(m.K) avec un très une faible erreur relative qui ne dépasse pas les 2%. Nous constatons que cette valeur est en très bon accord avec la valeur disponible dans la littérature scientifique [Har 2012, Die 2020, Mat 2020]. Pour le 2^{ème} échantillon, la conductivité thermique moyenne k_{Kapton} du substrat de Kapton MT mesurée est égale à $0.365 \pm 6.7 \times 10^{-3}$ W/(m.K), avec une erreur relative qui ne dépasse pas les 4%. Ici encore, nous avons constaté que la conductivité thermique du Kapton mesurée au moyen de notre banc de mesure est en très bon accord avec la valeur trouvée dans la littérature scientifique [Jac 2003, Alk 2014, Dup 2019]. Concernant le dernier substrat caractérisé d'arséniure de gallium, la conductivité thermique mesurée k_{GaAs} est égale à 43.189 ± 1.457 W/(m.K). Nous constatons que celle-ci également est comparable à celle trouvée dans la littérature [Mio 2005, Luo 2013, Iny 2003]. L'ensemble de ces résultats permet une validation de notre banc de mesure.

Dans cette partie du chapitre nous avons donc montré que nous étions capables de mesurer la conductivité thermique de différents matériaux en couche mince (Borosilicate, Kapton et GaAs) au moyen du banc de mesure développé au laboratoire avec une bonne précision.

3.4.1 Mesure du coefficient de température en résistance β_h (TCR)

Nous présentons dans cette partie la méthode de mesure du coefficient thermique de l'élément chauffant en or. Le coefficient de température en résistance TCR noté β_h qui s'exprime en K^{-1} ou $^{\circ}C^{-1}$ est un paramètre essentiel pour la mesure 3ω . En effet, la tension 3ω dépend linéairement de ce coefficient (Eq. 2.12), il convertit les valeurs de la tension $V_{3\omega}$ en valeurs de la température ΔT_{AC} . Il est donc impératif de le mesurer avec une précision importante. La valeur de TCR de l'élément chauffant en couche mince, qui dépend fortement du processus de dépôt, du matériau et de sa géométrie, doit être déterminée expérimentalement. Le TCR peut être différent selon que le matériau soit en couche mince ou sous forme massive. Rappelons que la relation qui lie la résistance et le TCR est la suivante :

$$R = R_0(1 + \beta_h \Delta T) \quad \text{avec} \quad \Delta T = T - T_0 \quad \text{et} \quad \beta_h = \frac{1}{R_0} \frac{dR}{dT}$$

où, T est la température à l'instant t et R_0 est la résistance à température ambiante.

Pour mesurer ce coefficient, il est impératif de connaître la valeur de la résistance initiale R_0 de ligne métallique, à la température ambiante T_0 . Celle-ci se mesure avec un multimètre Agilent 34420A® à quatre fils. L'échantillon est alors placé sur une plaque chauffante (Fig. 3.26). Trois thermocouples de type K sont connectés à différents endroits de la surface de l'échantillon et à proximité de la ligne métallique pour laquelle nous voulons mesurer la variation de la résistance en fonction de la température. Différentes méthodes de fixation de ces thermocouples à la surface d'échantillon ont été testées. Le contact mécanique est le plus simple, mais souvent il se traduit par une connexion avec une grande résistance thermique, ce qui rend les mesures peu fiables. Pour assurer une bonne conduction thermique entre les thermocouples et l'échantillon nous utilisons donc une patte thermique.



Figure 3.26 : a) Photographie d'une plaque chauffante b) Photographie de l'échantillon au-dessus de la plaque chauffante avec 2 fils de thermocouple pour la mesure de TCR.



Figure 3.27 : Thermomètre à balayage pour la mesure la température à l'aide de thermocouples (type Digi-Sense).

Il est à noter que la mesure du TCR est relativement longue car elle requiert des temps de stabilisation longs pour la plaque chauffante à chaque palier de température.

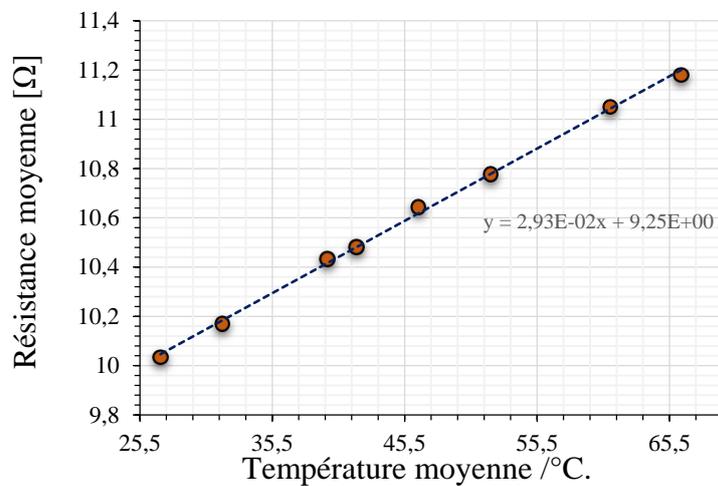


Figure 3.28 : Mesure de la variation de la température d'une ligne de chauffe de largeur $2b = 20 \mu\text{m}$ et de longueur $l = 3 \text{ mm}$ déposée sur un substrat de BrSiO_2 ($R_0 = 10.034 \Omega$ et $\beta_h = 2.919 \times 10^{-3} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$).

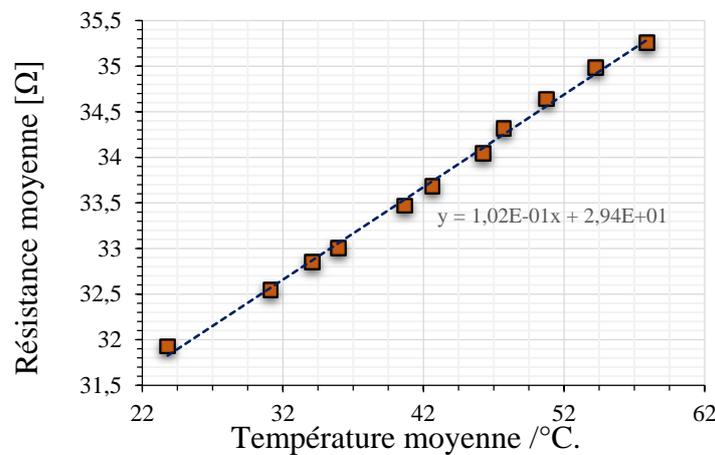


Figure 3.29 : Mesure du TCR pour la ligne 4 de largeur $2b = 4 \mu\text{m}$ et de longueur $l = 2.4 \text{ mm}$ déposée sur un substrat flexible de Kapton ($R_0 = 31.927 \Omega$ et $\beta_h = 3.194 \times 10^{-3} \text{ }^\circ\text{C}^{-1}$).

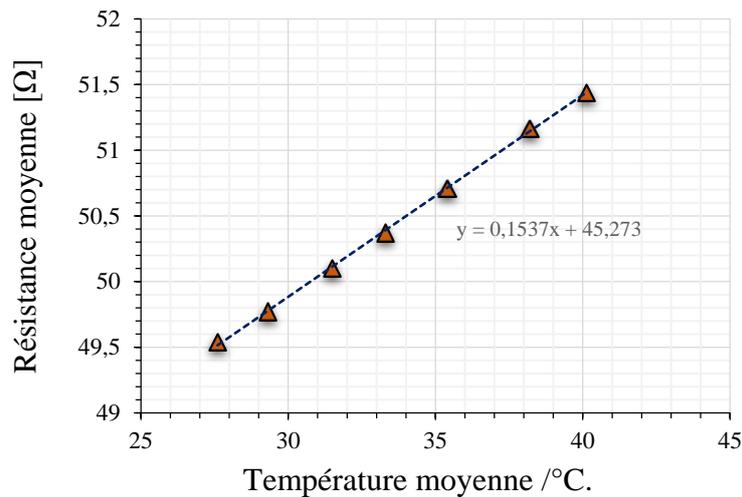


Figure 3.30 : Mesure du TCR pour une ligne métallique de largeur $2b = 10 \mu\text{m}$ et de longueur $l = 5 \text{ mm}$ déposée sur un substrat de GaAs.

$$(R_0 = 49.541 \Omega \text{ et } \beta_h = 3.082 \times 10^{-3} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}).$$

Les figures ci-dessus représentent les tracés de la variation de la résistance des lignes de chauffe déposées à la surface des échantillons de référence en fonction de la température. La pente de ces courbes donne accès à la valeur de TCR de chaque ligne en utilisant l'équation 2.10.

La résistivité ρ de ces lignes métalliques peut être calculée à partir de la valeur de résistance mesurée R_0 . Rappelons que la résistivité d'une ligne métallique en fonction de son épaisseur d_h s'écrit (Eq. 2.1) :

$$\rho = R_0 \frac{A}{l}$$

$$\text{avec } A = 2b * d_h$$

où la résistivité électrique du métal (ρ) est en $\Omega \cdot \text{m}$, la longueur de la ligne métallique (l) est en m et la résistance initiale de la ligne (R_0) est en Ω . A est l'aire de la section transversale de la ligne métallique en m^2 .

Le tableau suivant donne la valeur de la résistivité électrique de quelques lignes métalliques déposées sur la surface des échantillons de référence (Borosilicate, Kapton et GaAs).

<i>Echantillon</i>	<i>Ligne métallique</i>	<i>Résistivité ρ ($\Omega.m$)</i>
Br SiO ₂	Ligne 2	3.453×10^{-8}
	Ligne 3	3.033×10^{-8}
Kapton	Ligne 4	2.331×10^{-8}
	Ligne 5.a	2.347×10^{-8}
GaAs	Ligne 7	2.997×10^{-8}
	Ligne 8	2.974×10^{-8}

Tableau 3.6 : Résistivité électrique de quelques lignes métalliques déposées sur la surface des échantillons sous test.

Nous pouvons remarquer que la résistivité électrique pour l'or déposée par évaporation calculée dans le tableau 3.2 est comparable aux valeurs trouvées dans la littérature [Bro 1967, Wis 2007].

3.4.2 Précision et erreurs de mesure sur la conductivité thermique d'un substrat seul

Dans cette partie nous intéressons, en particulier, à la précision sur la valeur de la conductivité thermique mesurée. Celle-ci dépend essentiellement des erreurs provenant des mesures de la tension V_0 , de la résistance initiale R_0 , de la tension $V_{3\omega}$ ainsi que du coefficient de température en résistance β_h .

Nous discutons ci-après les différentes sources d'erreurs qui entachent la mesure de la conductivité thermique.

- Au cours de nos mesures, nous considérons que l'incertitude sur la chaleur spécifique volumique (ρC_p) est négligeable. En effet, les valeurs trouvées dans la littérature sont d'une grande constance.
- La ligne de chauffe est fabriquée par la technique photo lithographique. Sa longueur l peut légèrement dévier de celle du masque, du fait de mauvais paramètres d'exposition ou développement, ou encore à cause de la diffraction aux bords du masque. Néanmoins, l'incertitude totale ne saurait excéder quelques μm ($\pm 10 \mu\text{m}$ au maximum). Sachant que les longueurs de lignes (l) varient de 5 à 8 mm, cette erreur est de l'ordre de 0.1 à 0.2 %. La largeur des lignes métalliques ($2b$) est quant à elle mesurée à l'aide d'un profilomètre ou grâce à un microscope électronique à balayage MEB. Nous estimons

une erreur de 0.4 à 2 % sur cette grandeur, d'où une incertitude absolue sur la largeur Δb de $\pm 0.2 \mu\text{m}$ pour des largeurs de lignes variant entre 4 et 50 μm .

- D'après les spécifications de l'amplificateur lock-in SR830, l'incertitude sur la tension de la 3^{ème} harmonique aux bornes de la ligne de chauffe est très faible. Elle est de l'ordre $\pm 1\%$.
- La tension initiale V_0 aux bornes de la bande métallique doit être mesurée au début de chaque expérience avant que la ligne ne commence à chauffer. Comme il est noté précédemment, il est important de connaître la valeur de cette tension avec une grande précision (utilisation d'un multimètre Agilent 34411A 6 ½ digit). En effet, la tension apparaît au carré lors du calcul de la conductivité thermique (voir Eq. 2.12). Enfin, celle-ci dépend aussi de la gamme fréquentielle dans laquelle nous effectuons les mesures. L'erreur sur cette tension initiale V_0 provoque une incertitude de 1.6 à 2 % sur la valeur de la conductivité thermique mesurée.
- L'erreur sur la mesure du coefficient de température en résistance TCR de la ligne métallique par la méthode de la plaque chauffante a été estimée de 3 à 5%.

En conclusion, dans cette partie nous avons rapporté une série de tests sur des échantillons de référence qui ont permis de valider le banc de mesure qui a été mis en place. Les valeurs de la conductivité thermique mesurée pour ces échantillons ont été déterminées à partir de la méthode de la pente appliquée sur la composante en phase des variations de la température ΔT_{ACx} ou de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega x}$. Puis, nous avons comparé ces résultats avec ceux trouvés à partir de la solution analytique de D.G. Cahill et ceux issus de la littérature scientifique. Ensuite, nous avons estimé les erreurs sur les différents paramètres d'intérêt et nous avons conclu à une erreur de mesure totale de l'ordre de 7 à 9 % sur la conductivité thermique mesurée.

L'ensemble de cette étude permet ainsi de conclure à une assez bonne précision et donc performance de notre dispositif basé sur la méthode 3-oméga pour la mesure de la conductivité thermique de matériaux en couche mince.

Dans la section suivante, nous développons une approche numérique basée sur une méthode des éléments finis dans le domaine temporel à l'aide du logiciel COMSOL® Multiphysics qui permet de déterminer l'évolution de la température générée par l'élément chauffant et qui diffuse dans l'échantillon sous test.

3.5 ANALYSE NUMERIQUE BASEE SUR LA METHODE DES ELEMENTS FINIS (FEM)

3.5.1 Introduction

La simulation numérique, qui permet de modéliser et de comprendre le fonctionnement de systèmes complexes, est devenue quasi indispensable dans tous les domaines de la recherche scientifique. Elle repose sur la mise en œuvre de modèles théoriques utilisant différents programmes et outils mathématiques dont la technique des éléments finis. Au départ les idées essentielles de la méthode des éléments finis (FEM), apparues dans la première moitié du XXe siècle, sont portées par trois groupes de scientifiques : mathématiciens, physiciens et ingénieurs. Au cours de la dernière décennie, l'application de la méthode des éléments finis à de nombreux problèmes d'ingénierie complexes a été amplifiée et améliorée par la croissance rapide des moyens informatiques (augmentation de la vitesse des processeurs et de la mémoire, utilisation de processeurs parallèles, etc).

La méthode des éléments finis peut-être décrite comme une technique d'analyse numérique permettant d'acquérir des solutions approchées fiables pour une grande variété de problèmes. L'idée de base de la méthode est de reproduire un domaine réel donné avec un assemblage de formes géométriques simples, petites et interconnectées, appelées éléments finis [Dah 2005, Cui 2011]. Les éléments utilisés peuvent être des triangles ou des quadrilatères, tous ensembles ils constituent le maillage du domaine. Etant donné que ces éléments de géométrie simples peuvent être assemblés de nombreuses manières, des formes extrêmement complexes peuvent être représentées. Ainsi, l'un des principaux avantages de cette méthode est sa capacité à formuler des solutions pour des éléments individuels avant de les assembler pour créer la géométrie entière du problème. Les premiers modèles d'éléments finis proposés pour les problèmes de transfert de chaleur, et spécifiquement pour le calcul de la conductivité thermique, ont été écrits en langage de programmation Fortran.

Aujourd'hui, compte tenu des ressources informatiques disponibles, de nombreux progiciels commerciaux par éléments finis sont disponibles. Ceux-ci offrent, en particulier, une grande puissance de calcul et une interface conviviale qui en font des outils très largement utilisés dans les laboratoires. Par ailleurs, un certain nombre d'entre eux donnent la possibilité d'approches multi-physiques. Parmi les outils disponibles aujourd'hui qui ont un intérêt pour nos études nous pouvons citer ANSYS et Comsol Multiphysics. Dans ce travail, nous avons opté pour Comsol Multiphysics®.

Comsol Multiphysics, dont la première version est apparue en 1999 sous le nom de Femlab, consiste en un environnement puissant pour la modélisation et la simulation de tous types de problèmes scientifiques et techniques basés sur la résolution des équations aux dérivées partielles. Ce logiciel ne nécessite pas une connaissance approfondie des mathématiques ou de l'analyse numérique pour modéliser, simuler et résoudre un problème. Il fournit une interface utilisateur facile à prendre en main qui permet d'adresser une très grande variété de problèmes. Il inclut un grand nombre de fonctionnalités, en particulier l'utilisateur a la possibilité de configurer des constantes, des variables, ainsi que des fonctions mathématiques et logiques. De plus, il est relativement ouvert. En effet, il offre la possibilité d'accéder aux modèles en utilisant la programmation de scripts dans le langage de script de Comsol ou dans celui de Matlab, pour définir les propriétés, les sources, les conditions aux limites, etc. Un certain nombre de modules physiques sont disponibles, parmi lesquels nous trouvons la mécanique des fluides, le transfert thermique, l'électricité, l'électromagnétisme, la chimie, la mécanique des structures, etc. La procédure pour concevoir la géométrie du modèle est assez simple. L'utilisateur peut créer des objets solides simples, déjà disponibles dans le logiciel (par exemple des rectangles, des cercles, des blocs, des cônes, des sphères, etc.), puis il peut les combiner en utilisant des opérations booléennes, comme l'union, l'intersection et la différence, afin de construire un solide composite.

Une grande caractéristique du logiciel Comsol Multiphysics est sa flexibilité pour mélanger/utiliser des sous domaines de différentes dimensions d'espace dans le même problème, simplifiant ainsi la procédure de modélisation et diminuant le temps d'exécution. Le logiciel Comsol Multiphysics dispose d'une vaste bibliothèque de matériaux, extensible, aux propriétés physiques, mécaniques, électromagnétiques et thermiques prédéfinies. Enfin, en plus du maillage automatique des structures définies il existe la possibilité d'un maillage manuel.

Dans cette section, nous présentons les étapes pour modéliser et simuler une structure similaire à celle utilisée lors des mesures de la conductivité thermique par la méthode 3-oméga afin de déterminer les variations de la température des lignes de chauffe déposées sur la surface d'un substrat. Pour valider le modèle, une étude de comparaisons entre les résultats des simulations numériques par FEM et ceux obtenues expérimentalement pour les échantillons de références : Borosilicate, le Kapton et le GaAs est alors réalisée.

3.5.2 Processus de modélisation et de simulation sous Comsol Multiphysics

Nous donnons ci-après les principales étapes lors du processus de modélisation et de simulation numérique par la méthode des éléments finis sous Comsol Multiphysics :

1. Exécutez l'Assistant Model : ce qui implique de choisir le système de coordonnées pour le modèle, la physique pertinente au problème, et le type d'études souhaitées (stationnaire ou temporelle).
2. Définir les paramètres, les équations et les variables pertinentes pour le modèle (Global Definition).
3. Définir la géométrie du modèle ou du système (Geometry).
4. Choisir les différents matériaux dans la bibliothèque (Materials).
5. Définir les conditions aux limites et initiales du modèle physique choisi (Heat Transfer in Solids).
6. Choisir la taille des éléments à utiliser pour le maillage (Meshing) de la structure.
7. Choisir et régler les paramètres du solveur ainsi que les paramètres de convergence, puis lancer la résolution du problème dans le répertoire d'études (Study).
8. Afficher les résultats souhaités dans 'Post treatment' (temperature) en accédant au répertoire résultat (Result).

3.5.3 Modélisation et Simulation numérique par FEM de la technique 3 ω

Dans le chapitre précédent, nous avons présenté la solution analytique de l'équation de la chaleur pour des lignes de chauffe de 1D et 2D déposées sur un substrat. Sachant que ces solutions nécessitent plusieurs hypothèses telles que : le substrat a une épaisseur considérée comme semi-infinie, la ligne est de longueur infinie, l'élément chauffant possède une épaisseur négligeable et que pendant les mesures le coefficient d'échange thermique avec l'air (convection) est très faible. Afin de déterminer les effets de ces hypothèses, nous avons développé une approche de simulation numérique dans laquelle les problèmes de transfert de chaleur du système (substrat / ligne de chauffe) sont résolus sur la base de la méthode des éléments finis (FEM) en utilisant le logiciel COMSOL[®] Multiphysique [Jac 2002, Rau 2003, Bat 2007]. Idéalement, la résolution se fait en 3D mais celle-ci nécessite un temps de calcul et une taille de mémoire vive très importants. Aussi, compte tenu des dimensions de la ligne de chauffe, une approche 2D est adoptée.

3.5.3.1 Description de la structure en 2D (géométrie et conditions aux limites)

L'objectif ici est de se rapprocher au plus près de la configuration expérimentale. Ainsi, la géométrie en 2D de la structure, pour le modèle de simulation numérique par FEM, est constituée d'une ligne métallique de largeur $2b$ déposée au-dessus de la surface d'un échantillon d'épaisseur t_s , placé sur une plaque de cuivre (Fig. 3.31). Sur les deux faces latérales et le fond (face inférieure de support) de la structure la température est fixée à la température ambiante T_0 (initiale) à laquelle l'expérience est réalisée. La chaleur se propage à l'intérieur de l'échantillon de référence par contre la surface supérieure de la ligne de chauffe est convective. Dans cette région l'échange de la chaleur avec l'environnement (l'air) est représenté par un faible coefficient de convection thermique ($H = 3$ à $5 \text{ w.m}^2.\text{c}^{-1}$), qui correspond à une convection naturelle sur une surface horizontale pour une faible différence de température entre le milieu ambiant et la ligne de chauffe.

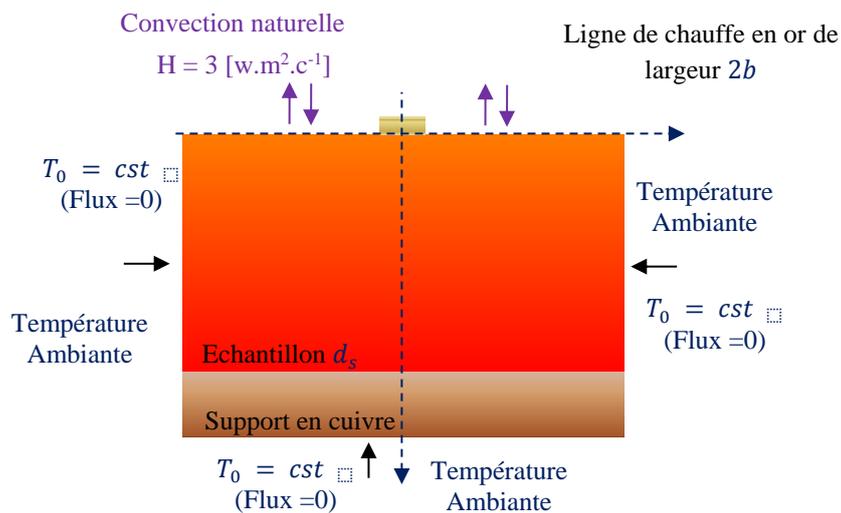


Figure 3.31 : Géométrie en 2D de la structure simulée par FEM qui contient un élément chauffant de largeur $2b$ au-dessus d'un échantillon d'épaisseur d_s

(Sous conditions aux limites).

3.5.3.2 Module de transfert thermique

La méthode des éléments finis est une approche numérique qui permet de trouver des solutions approximatives aux problèmes de valeurs limites à partir de la résolution d'équations différentielles. L'équation résolue dans le modèle de "heat transfer in solids" de Comsol, qui dépend du temps, s'écrit sous la forme suivante :

$$\rho C_p \frac{\partial \Delta T}{\partial t} + \rho C_p \vec{u} \cdot \nabla T = \nabla \cdot (k \nabla T) + Q \quad (3.1)$$

où ρ est la densité en kg/m³, C_p est la capacité thermique spécifique en J/kg, \vec{u} est le vecteur vitesse, k est la conductivité thermique, Q est le terme de la source de chaleur en W/m³ et T est le champ de température en °K (ou en °C).

3.5.3.3 Source de chaleur $P(t)$

Expérimentalement, la ligne métallique se comporte comme une source de chaleur, qui correspond à un flux de chaleur thermique entrant dans le domaine. Cette énergie résulte d'une puissance électrique, dissipée par effet Joule, produite par le courant initial I_0 appliqué à une résistance R_0 (résistance de la ligne métallique sous une température ambiante T_0). Rappelons que l'expression de cette puissance est de la forme (Eq. 2.3) :

$$P(t) = R_0 \cdot I^2(t) = R_0 I_0^2 \cos^2(\omega t) = \frac{R_0 I_0^2}{2} (1 + \cos(2\omega t)) \quad (3.2)$$

Dans la simulation par FEM sous COMSOL, la ligne de chauffe est modélisée par une source de chaleur volumique interne $Q(t)$ exprimée en W/m³. Celle-ci est supposée uniforme et s'écrit :

$$Q(t) = \frac{P(t)}{2b \cdot l \cdot t_h} \quad (3.2)$$

avec t_h est l'épaisseur de la ligne de chauffe

3.5.3.4 Maillage de la structure

La méthode des éléments finis nécessite un maillage bien adapté à la structure étudiée. En effet, un maillage suffisamment fin doit être considéré pour que la simulation soit la plus précise possible. La zone la plus importante dans le maillage de la structure se situe au voisinage de l'élément de chauffe. Dans un premier temps, le maillage utilisé au cours de notre modélisation est un maillage basique "free triangle" sur l'ensemble de la structure. Ensuite, nous affinons le maillage au moyen de fonctions dédiées (les fonctions "extremely thin" et "size"). Par exemple, nous pouvons voir sur la figure 3.32 que le maillage est nettement plus fin au niveau de l'élément chauffant que pour le substrat en Kapton, afin de ne pas alourdir le calcul.

A titre d'exemple nous donnons sur la figure suivante (Fig. 3.32) le maillage d'une de ligne déposée sur la surface d'un film de Kapton (ligne 5.a).

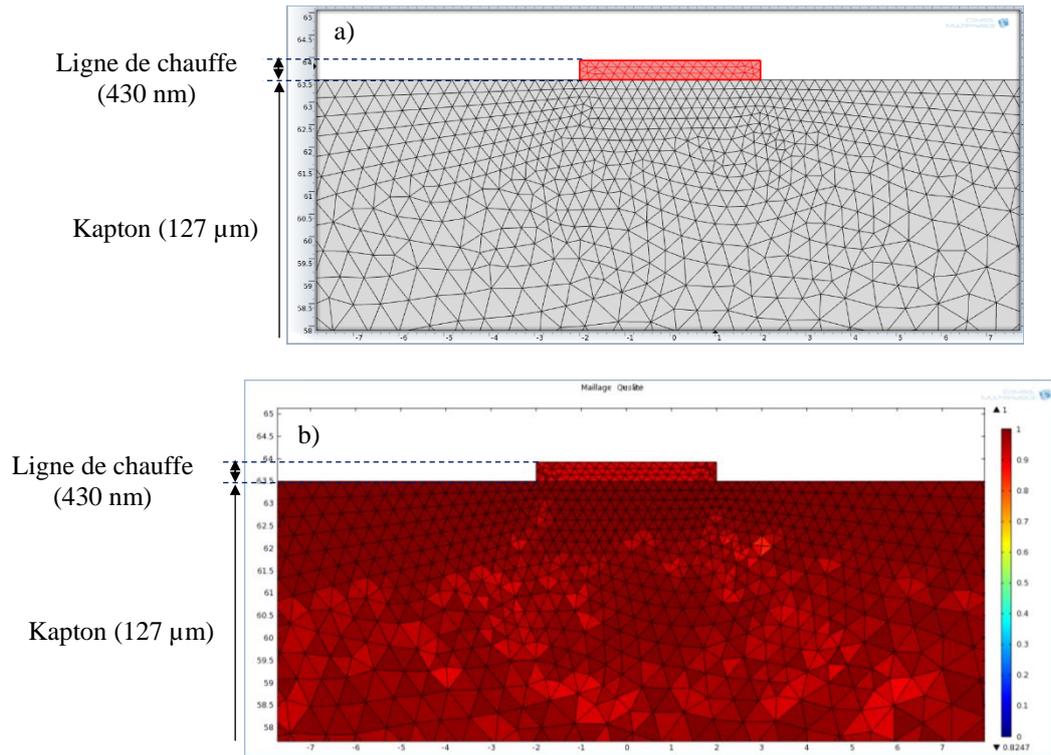


Figure 3.32 : a) Maillage 2D utilisé au cours de la simulation par la FEM sous Comsol de la ligne 5.a déposée sur Kapton, b) représentation de la qualité du maillage utilisé pendant la simulation par la FEM.

Dans le logiciel Comsol Multiphysics, la qualité du maillage se traduit au travers de la quantité $q_{\text{él.}}$. Pour les éléments triangulaires celle-ci est calculée à partir de l'expression suivante :

$$q_{\text{él.}} = \frac{4 \sqrt{3} A}{l_1^2 + l_2^2 + l_3^2} \quad (3.3)$$

où A est l'aire de l'élément triangulaire et l_1 , l_2 et l_3 sont les longueurs des côtés du triangle.

La qualité du maillage se traduit par un nombre compris entre 0 et 1 [Com 2012]. Par exemple, dans notre modèle de simulation, la qualité minimale du maillage est de 0,84, qui est représentative d'un très bon maillage (Fig. 3.32) afin d'avoir des résultats au plus proches de la réalité.

Il est clair, une modélisation par FEM du transfert de chaleur sera d'autant plus fiable que le maillage sera fin. Pratiquement, il est nécessaire de faire un compromis entre la finesse du maillage, le temps de calcul et la taille mémoire.

3.5.3.5 Détermination de l'oscillation de la température ΔT_{AC}

Après avoir conçu la structure, défini les conditions aux limites et les conditions initiales, localisé la source de chaleur et créé un maillage, il reste à déterminer l'oscillation de température au niveau de l'élément chauffant (la source de chaleur $Q(t)$ est sinusoïdale à une fréquence 2ω). Ainsi, l'oscillation de température $\Delta T_{AC}(t)$, simulée par FEM, est estimée à partir du calcul de la valeur moyenne de la température de la ligne métallique. Aussi, l'amplitude de l'oscillation de la température ΔT_{AC} à la fréquence thermique 2ω ainsi que le déphasage par rapport à la source de chaleur $P(t)$ doivent être déterminés. Lorsque la source périodique est mise en fonctionnement (à $t=0$) le champ de température évolue selon deux régimes (Fig. 3.33). Le premier régime correspond à une évolution temporelle transitoire qui dépend fortement de l'état thermique initial. Le second régime, celui qui nous intéresse le plus, est périodique. Dans cette partie, la ligne métallique est alimentée par une puissance continue P_{DC} (avec $P_{DC} = P_{rms}$). En effet, le régime transitoire qui apparait lors de simulations en fonction du temps est très court. A titre d'illustration la figure 3.33 représente l'évolution temporelle des oscillations de température ΔT_{AC} de la ligne 5.a obtenues pour 8T, où T est la période fournie par le générateur, avec $f=35$ Hz. Pour cet exemple, la température ambiante T_0 est égale à 24.35 °C et la fréquence f est incluse dans la zone de fréquentielle du régime linéaire de cette ligne.

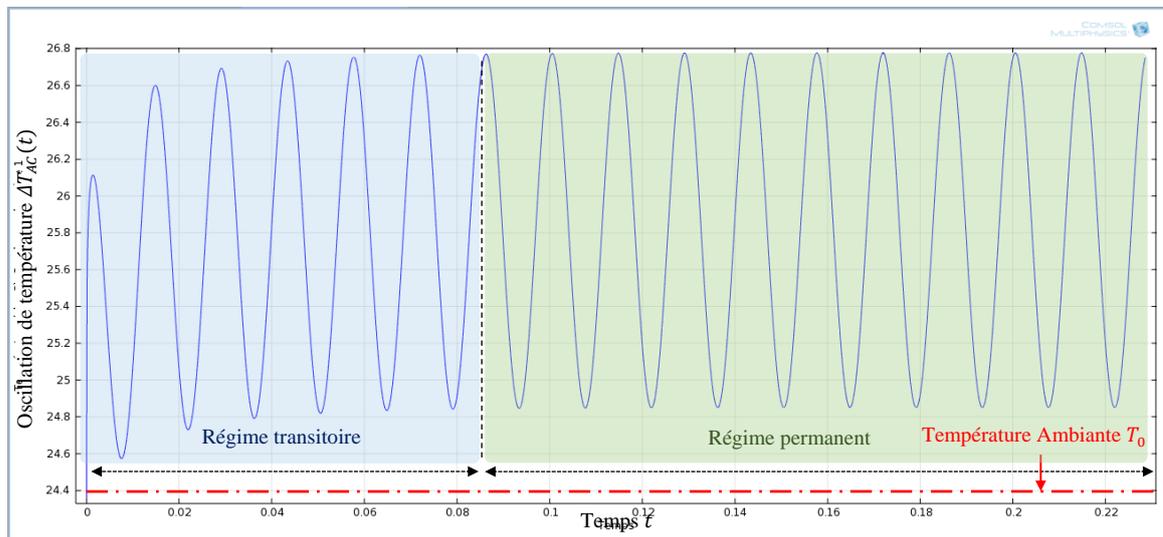


Figure 3.33 : Evolution temporelle de la température $\Delta T_{AC}(t)$ de la ligne 5.a déposée sur un film de Kapton pour une fréquence $f = 35$ Hz obtenue par la simulation FEM.

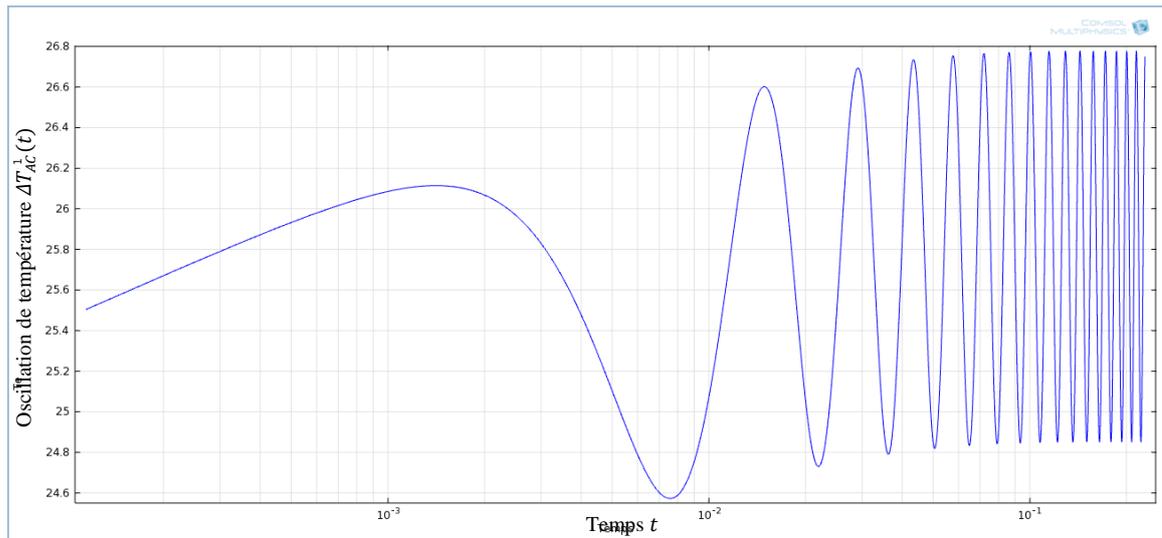


Figure 3.34 : Le tracé de l'évolution temporelle de la température $\Delta T_{AC}(t)$, de la ligne 5.a, pour une fréquence $f = 35$ Hz obtenue par la simulation FEM

(en échelle temporelle logarithmique)

Tout au long de nos simulations par FEM, nous avons retenu un pas de calcul égal à $T/250$ (avec T est la période fournie par le générateur). Afin d'analyser uniquement les données obtenues en régime stationnaire, nous ne prenons pas en compte la première période de la fréquence fondamentale

Dans notre exemple (ligne 5.a), le temps final du régime transitoire est $t = 0.08571$ s et le régime permanent démarre à $t = 0.08582$ s jusqu'à $t = 0.228751$ s.

La dernière étape dans cette simulation consiste à déterminer l'amplitude A_T et la phase ϕ_T des oscillations de température par rapport à l'oscillation à 2ω de la source de la chaleur $P(t)$. La phase de référence correspond à celle de la puissance thermique $P(t)$.

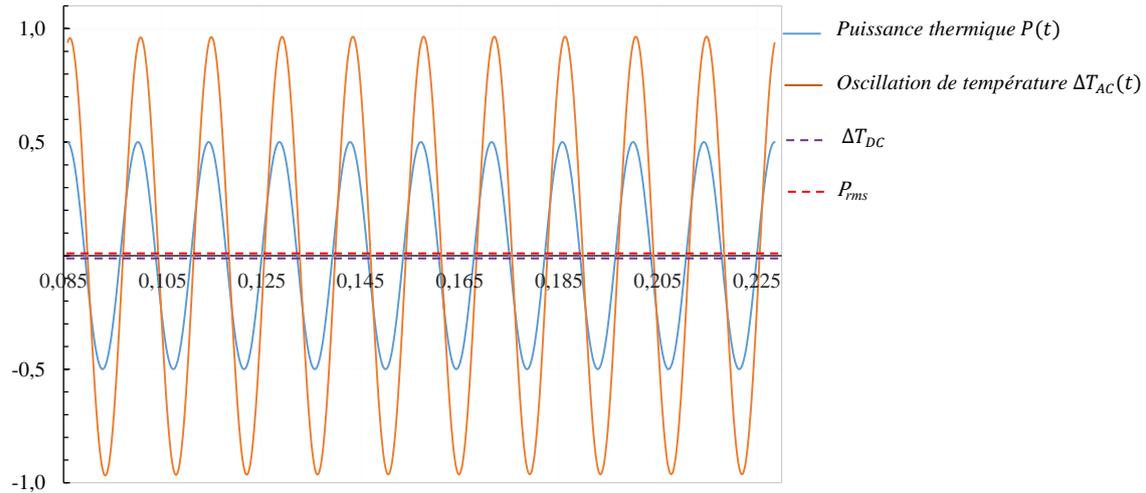


Figure 3.35 : Représentation du déphasage de l'oscillation de la température par rapport à la puissance thermique $P(t)$ en fonction du temps t (cas de la ligne 5.a pour une fréquence $f = 35$ Hz à une température ambiante T_0).

Sur cette figure (Fig. 3.35), nous avons superposé l'évolution temporelle à une fréquence $f = 35$ Hz de l'oscillation de température $\Delta T_{AC}(t)$ et de puissance thermique $P(t)$. La ligne en pointillés rouges, représente la puissance moyenne en DC ($P_{DC} = P_{rms}$), tandis que la composante DC de la température est présentée par une ligne en pointillés violets. Il est clair que la réponse de l'oscillation de température $\Delta T_{AC}(t)$ est déphasée par rapport à la puissance thermique $P(t)$.

La détermination des paramètres A_T (avec $A_T = |\Delta T_{AC}|$) et ϕ_T se fait par ajustement (fitting) de sorte que l'équation 3.4 corresponde aux points de l'oscillation de température trouvée en simulation par FEM. Pour cela, nous utilisons un algorithme d'optimisation, sous Matlab®, appelé 'lsqcurvefit'.

$$\Delta T_{AC} = A_T \cos(2\omega t + \phi_T) \quad (3.4)$$

avec ΔT_{AC} la variation de la température due à la puissance $P_{AC}(t)$, et ϕ_T le déphasage entre cette puissance et la température.

Le déroulement des procédures pour déterminer ces paramètres est comme suit : à la fin du régime transitoire ($\approx 3T$), nous programmons une sauvegarde automatique de tous les points nécessaires pour effectuer les calculs pendant une durée de $5T$ (régime permanent). Pour un pas de temps égal à $T/250$, nous obtenons 1250 points. Ensuite, un échantillonnage aléatoire de centaines de points est effectué en utilisant la procédure d'optimisation sous Matlab. Nous

effectuons, environ, 50 tirages au sort dans cet ensemble de points (Fig. 3.36). Finalement, pour chaque tirage au sort les paramètres A_T et ϕ_T sont déterminés ainsi que leurs valeurs moyennes calculées à l'issue de tous les tirages au sort.

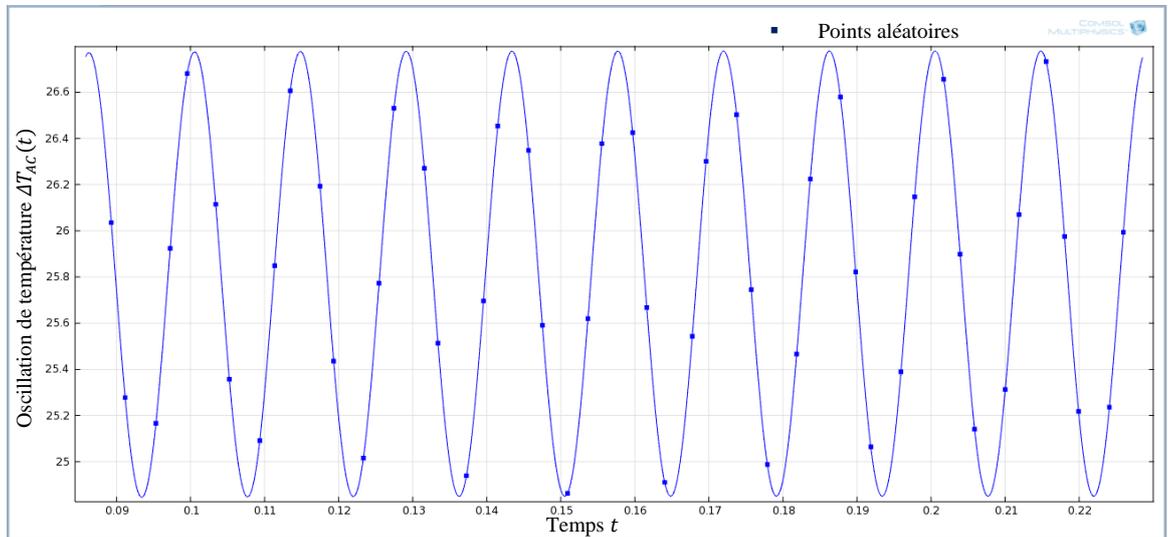


Figure 3.36 : Exemple des points aléatoires qui permettent de déterminer les paramètres A_T et ϕ_T (Ligne 5.a).

Sur la figure ci-dessus (Fig. 3.36), nous avons présenté sur le tracé de l'oscillation de température ΔT_{AC} un exemple d'échantillonnage aléatoire de 50 points (carrés en bleu).

Ainsi pour cet exemple, l'amplitude A_T et le déphasage ϕ_T par rapport à la puissance thermique $P(t)$ de la ligne 5.a trouvés grâce aux simulations par FEM à $f = 35$ Hz sont respectivement de 0.963 °C et -0.226 rad.

3.5.3.6 Profil de diffusion thermique en profondeur de l'échantillon

Nous avons montré, dans le chapitre 2, le rôle de la longueur de pénétration thermique (L_{pt}) pour distinguer les différents régimes thermiques intervenant selon la fréquence de l'excitation thermique. Cette distance, qui représente l'épaisseur sur laquelle l'onde thermique diffuse au sein de l'échantillon, dépend de la diffusivité thermique du substrat ainsi que la fréquence de l'excitation thermique. Pour rendre compte du phénomène de diffusion de l'onde thermique ainsi que la distance de propagation thermique L_{pt} et du profil de température, nous avons choisi de simuler par FEM sous Comsol la ligne 4 déposée sur du Kapton.

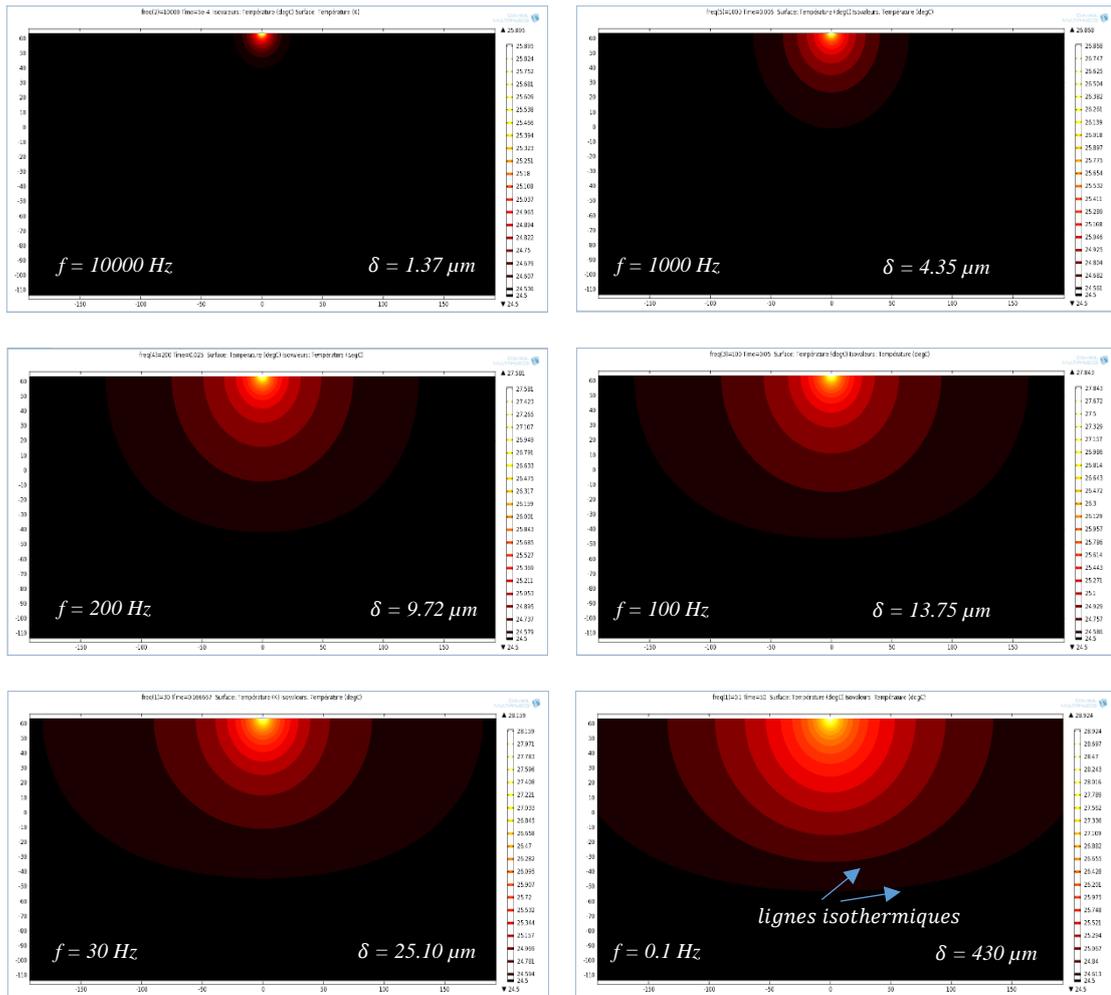


Figure 3.37 : La diffusion de l'onde thermique au sein de l'échantillon pour différentes fréquences dans le cas de la ligne 4 déposée sur du Kapton.

La figure 3.37 représente l'oscillation de la température obtenue dans le cas de la ligne 4 déposée sur du Kapton à différentes fréquences (10000 Hz, 1000 Hz, 200 Hz, 100 Hz, 30 Hz et 0.1 Hz). Les valeurs de la longueur de pénétration thermique L_{pt} sont calculées à partir de l'équation 2.44. Nous avons pris soin d'inclure dans cet ensemble les fréquences limites de la zone linéaire (30 Hz et 200 Hz).

Cette figure permet de visualiser la diffusion de la chaleur au sein du matériau. Ainsi, nous relevons qu'à 10 KHz la diffusion s'effectue perpendiculairement à la ligne, sur une profondeur δ très faible de l'ordre de $1.37 \mu\text{m}$. Cette profondeur augmente en fonction de la fréquence pour atteindre $430 \mu\text{m}$ à 0.1 Hz. Nous pouvons également noter l'influence de la condition isotherme à la limite inférieure du substrat de Kapton qui se traduit par un aplatissement des isothermes à l'approche de cette frontière. Cela se s'observe pour des fréquences au-dessous de 100 Hz.

Nous constatons donc que la température en profondeur de l'échantillon varie avec la fréquence. Plus la fréquence d'excitation thermique est petite, plus l'onde thermique diffuse profondément au sein de l'échantillon. Ainsi, pour une fréquence suffisamment basse, la diffusion peut concerner l'intégralité de l'épaisseur de substrat (la profondeur de pénétration thermique est alors pratiquement égale à l'épaisseur du substrat).

Sur les figures 3.38 et 3.39, nous affichons une capture d'écran typique du profil de température, en 2D et en 3D (à titre d'exemple), obtenu par la simulation FEM toujours dans le cas de la ligne 5.a déposée sur du Kapton pour une fréquence thermique $f = 35$ Hz. Sont également représentées les lignes isothermiques dans le substrat en fin de simulation, c'est-à-dire, à $t = 0.228751$ s.

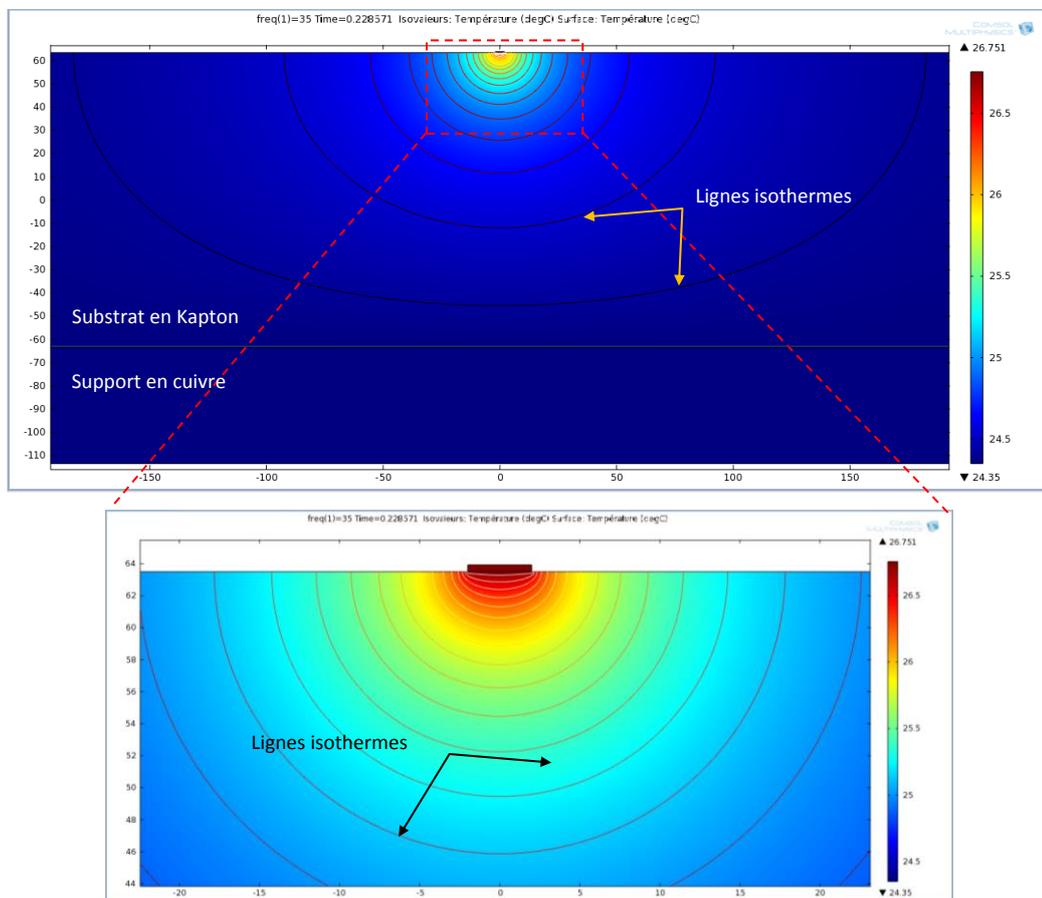


Figure 3.38 : a) Profil de température obtenu par la simulation en 2D sous Comsol de la ligne 5.a déposée sur un substrat de Kapton (fréquence $f = 35$ Hz) et b) Zoom plus près de la ligne de chauffe.

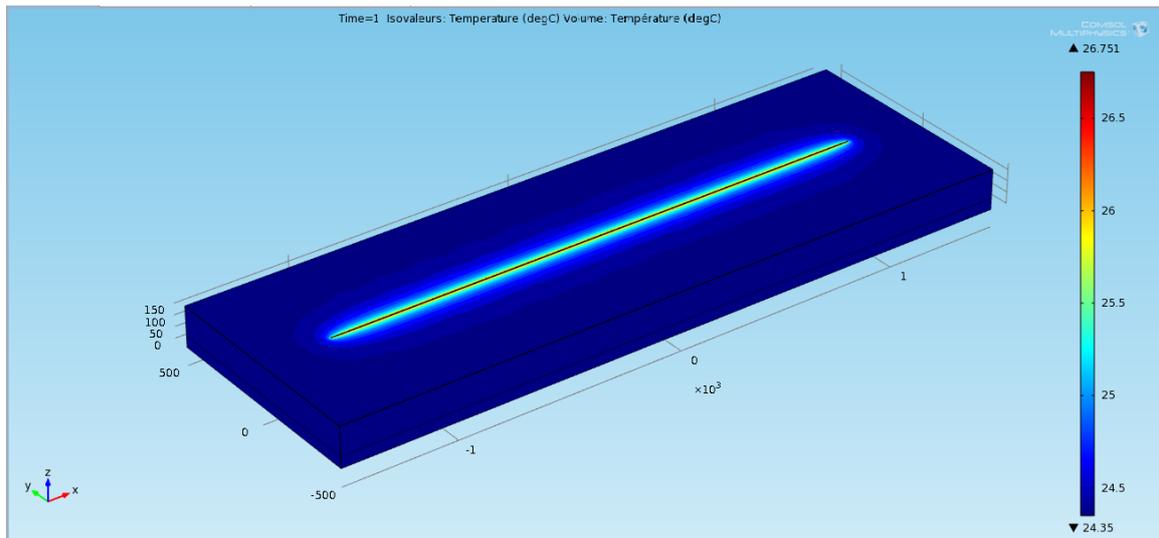


Figure 3.39 : Profil de température obtenu par la simulation en 3D sous Comsol de la ligne 5.a déposée sur un substrat de Kapton (fréquence $f = 35$ Hz).

Grâce à cette simulation sous Comsol, nous avons pu analyser le comportement de l'onde thermique qui se diffuse dans le substrat, à partir de l'élément de chauffe, en fonction de la fréquence.

Dans la suite nous présentons une étude comparative entre les résultats obtenus par notre modèle de simulation par FEM sous Comsol, ceux donnés par le modèle de D. G. Cahill et ceux extraits des campagnes de mesure.

3.6 VALIDATION DU MODELE DE SIMULATION PAR FEM SOUS COMSOL

Afin de comparer notre modèle de simulation par FEM à la solution analytique proposée par D. G. Cahill ainsi qu'aux résultats expérimentaux, nous examinons les résultats obtenus pour les oscillations de température obtenus au niveau des lignes de chauffe déposées sur les matériaux choisis comme référence (borosilicate, Kapton et GaAs). Pour chaque matériau, deux lignes prise au hasard sont testées. La comparaison est effectuée sur une large gamme fréquentielle dans la zone linéaire.

Dans les tableaux 3.7 et 3.8 nous donnons, pour rappel, les caractéristiques et les propriétés essentielles des lignes considérées pour chaque matériau.

<i>Echantillon</i>	<i>Ligne</i>	t_h / nm	$2b / \mu m$	$P_{rms} / W.m^{-1}$	$T_0 / ^\circ C$
Br SiO ₂	2	450	10	1.540	27.55
	3		20	3.307	27.45
Kapton	4	430	4	1.027	24.65
	5.a			0.669	24.35
GaAs	7	450	10	3.840	27.35
	8			5.916	26.55

Tableau 3.7 : Caractéristiques des lignes métalliques retenues pour l'étude comparative.

<i>Echantillon</i>	$t_s / \mu m$	$C_p / Jkg^{-1}K^{-1}$	$\rho / kg.m^{-3}$	$k / Wm^{-1}K^{-1}$
Br SiO ₂	700	750	2230	1.201
Kapton	127	1090	1420	0.365
GaAs	350	327	5320	43.189

Tableau 3.8 : Caractéristiques et propriétés des échantillons de référence (BrSiO₂, Kapton et GaAs).

Les autres propriétés (physiques, thermiques) nécessaires pour la simulation par FEM, comme par exemple le coefficient de dilatation thermique, le module d'Young sont disponibles dans la bibliothèque de Comsol Multiphysics dédiée aux matériaux.

Les figures suivantes (Fig. 3.40, Fig. 3.41 et Fig. 3.42) établissent une comparaison entre les résultats déjà donnés précédemment dans la partie expérimentale, et ceux issus d'une part de la simulation sous Comsol et d'autre part de l'application du modèle analytique par D. G. Cahill, ceci pour les trois matériaux de référence (Br SiO₂, Kapton et GaAs).

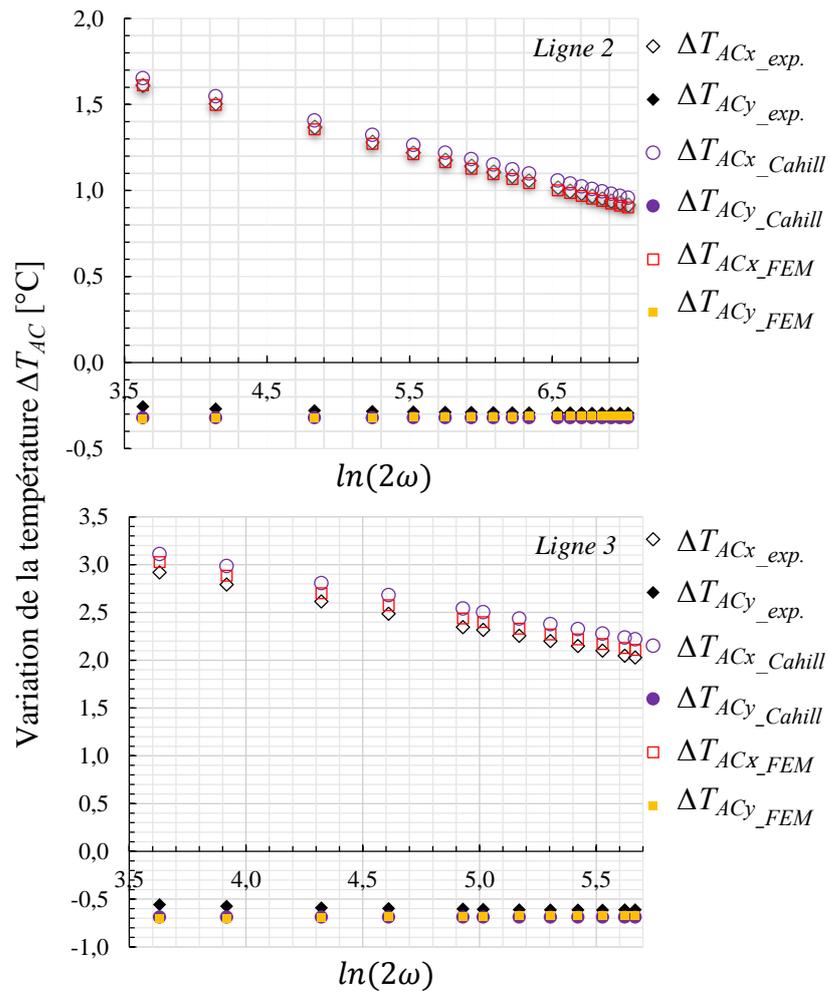


Figure 3.40 : Comparaison entre les résultats expérimentaux, théorique obtenus par le modèle analytique de Cahill et la simulation par FEM sous Comsol. Les composantes (en phase et en quadrature de phase) de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour la ligne 2 et la ligne 3 (substrat de Br SiO2).

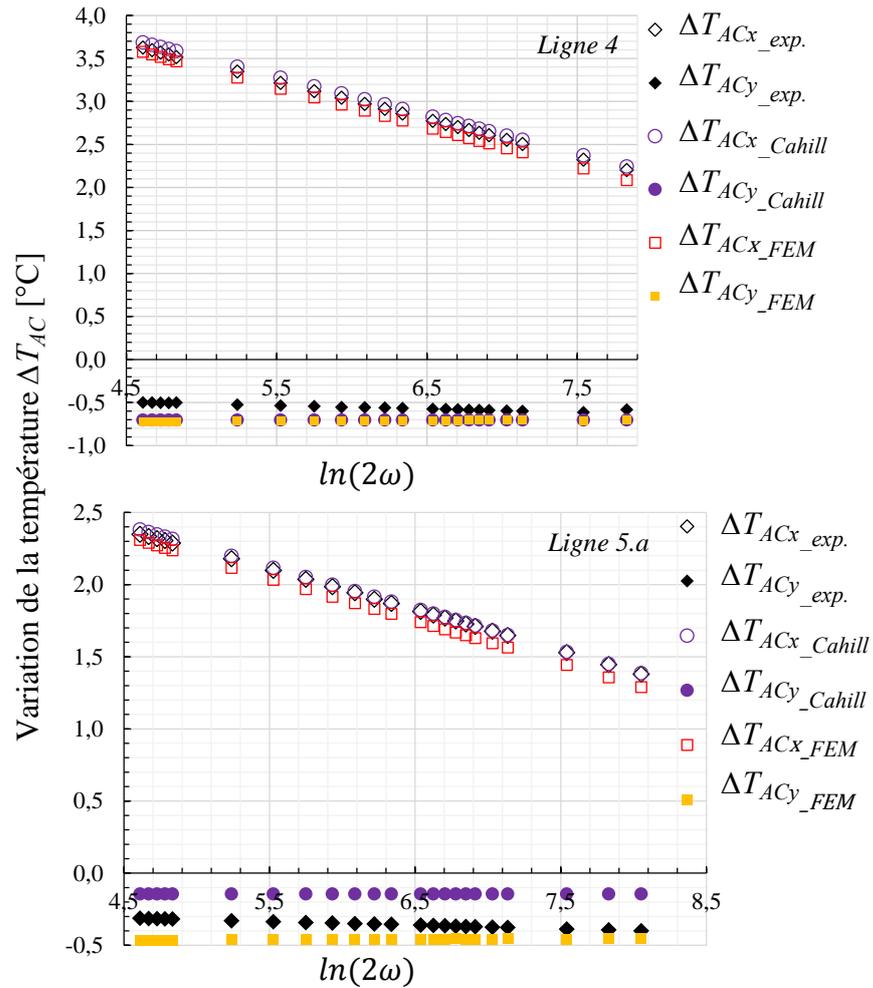


Figure 3.41 : Comparaison entre les résultats expérimentaux, théorique obtenus par le modèle analytique de Cahill et la simulation par FEM sous Comsol. Les composantes (en phase et en quadrature de phase) de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes 4 et 5.a (Substrat flexible de Kapton).

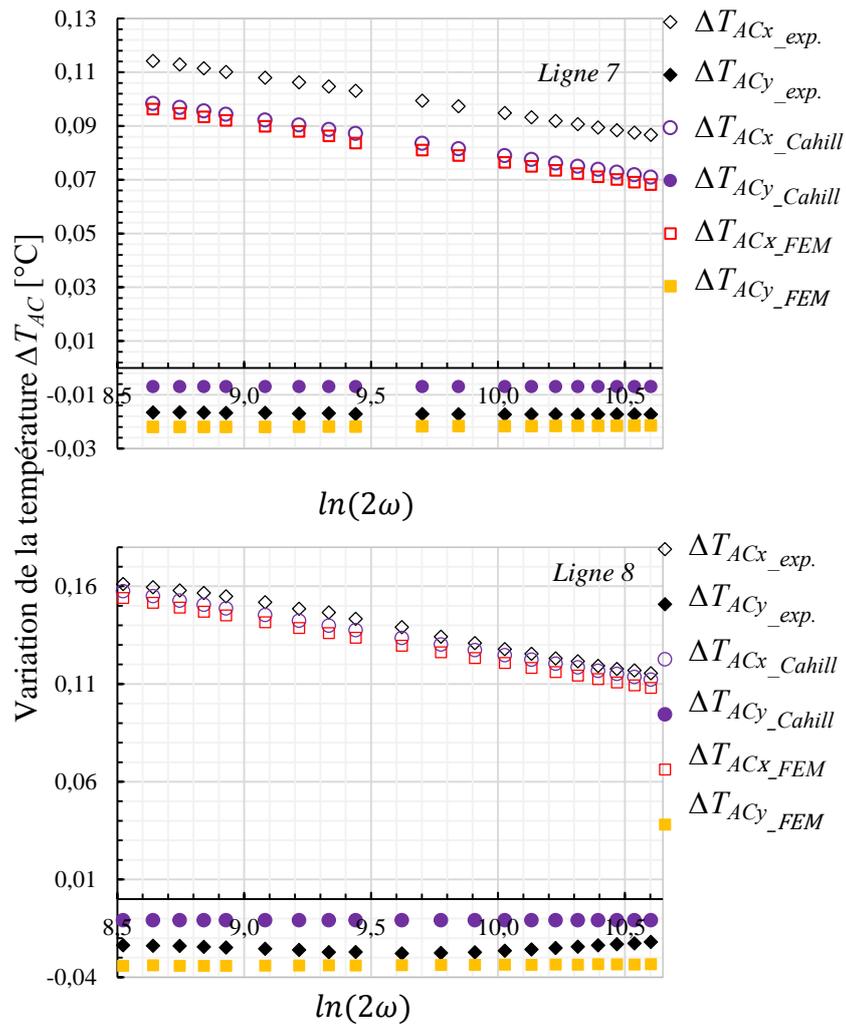


Figure 3.42 : Comparaison entre les résultats expérimentaux, théorique obtenus par le modèle analytique de Cahill et la simulation par FEM sous Comsol. Les composantes (en phase et en quadrature de phase) de la variation de la température ΔT_{AC} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes 7 et 8 (Substrat de GaAs).

Les figures ci-dessus (Fig. 3.40, Fig. 3.41 et Fig. 3.42), présentent une comparaison entre les tracés des composantes de l'oscillation de la température ΔT_{AC} obtenues par les lignes 2, 3, 4, 5.a, 7 et 8. Les losanges creux et pleins représentent, respectivement, les composantes en phase $\Delta T_{ACx_exp.}$ et en quadrature de phase $\Delta T_{ACy_exp.}$ de l'oscillation de la température ΔT_{AC} expérimentales. Les cercles creux et pleins représentent, respectivement, les composantes en phase ΔT_{ACx_Cahill} et en quadrature de phase ΔT_{ACy_Cahill} de l'oscillation de la température ΔT_{AC} obtenues par la solution analytique de Cahill. Les carrés creux et pleins représentent, respectivement, les composantes en phase ΔT_{ACx_FEM} et en quadrature de phase ΔT_{ACy_FEM} de l'oscillation de la température ΔT_{AC} simulées par FEM sous Comsol.

Ces figures montrent que l'expérimentation, la solution analytique de D. G. Cahill et simulation par FEM Comsol, fournissent des résultats comparables que ce soit pour la composante en phase ou en quadrature de phase des oscillations de température.

Néanmoins, bien que proches, un léger décalage entre les résultats de simulation par FEM et ceux obtenus expérimentalement (en particulier sur les courbes de la figure 3.42) est noté. La présence d'une résistance thermique de contact entre la ligne et le substrat est la principale cause de ce shift. Dans le prochain chapitre (chapitre 5), nous exposons une méthode pour l'estimation de cette résistance thermique de contact.

En conclusion, nous pouvons dire que globalement les résultats obtenus par ce modèle de simulation par FEM sous Comsol permettent une bonne approximation des données issues de l'expérimentation pour les différents matériaux considérés. Nous estimons donc que cette étude de comparaison permet la validation du modèle de simulation par FEM. Par ailleurs nous nous constatons que la solution de D. G. Cahill permet également une bonne approximation du problème.

3.7 CONCLUSION

Dans ce chapitre nous avons présenté dans un premier temps, le dispositif expérimental basé sur la méthode 3-oméga, qui a été mis en place afin de caractériser la conductivité thermique de matériaux. Ce banc de mesure se compose principalement d'un générateur de fonctions qui alimente la ligne métallique, avec un courant alternatif, et d'un amplificateur lock-in qui permet la mesure du module et de la phase du troisième harmonique de tension présent aux bornes de la ligne métallique.

Dans un second temps, nous avons décrit les procédures de réalisation des lignes de chauffe métalliques (micro-capteurs) destinées à la mesure de la conductivité thermique du matériau sur lequel elles sont déposées par lithographie optique. Le métal choisi pour la réalisation des lignes est l'or, avec une couche d'accroche de chrome, car celui-ci (l'or) possède un coefficient de température en résistance (TCR) élevé.

Ensuite, dans la troisième partie de ce chapitre, nous avons caractérisé différents types de matériaux choisis comme référence, afin de valider le bon fonctionnement du banc de mesure. Les matériaux retenus sont le borosilicate, le Kapton MT et l'arséniure de gallium. Les mesures effectuées sur une plage de fréquences appartenant à la zone de linéarité, ont montré une bonne adéquation avec les données issues du modèle proposé par D. G. Cahill ou encore avec celles

disponibles dans la littérature. L'ensemble des caractérisations menées à l'aide du dispositif proposé permet une estimation de l'erreur de mesure sur la conductivité thermique de l'ordre de $\pm 10\%$.

Enfin, dans la dernière partie du chapitre, nous avons présenté les résultats d'une approche de simulation numérique de la méthode 3ω basée sur la méthode des éléments finis (FEM). Celle-ci, qui s'appuie sur le logiciel Comsol, permet d'une part une prise en compte fine des caractéristiques de l'échantillon sous test (la géométrie ainsi que les caractéristiques du matériau et de l'élément chauffant) et d'autre part des simulations en deux. Les résultats issus de la simulation numérique ont alors été comparés à ceux estimés par le modèle analytique proposé par D. G. Cahill et aux valeurs mesurées par le banc expérimental, pour les matériaux de référence. Cette étude comparative a mis en évidence des résultats cohérents. En particulier, les résultats obtenus par simulation Comsol sont en bonne adéquation avec les valeurs mesurées. Ces simulations ont également mis en évidence l'existence d'une résistance thermique de contact entre la ligne et le substrat, matérialisée par le léger décalage observé (vert le haut) entre les résultats de simulation par FEM, ou modèle de D.G. Cahill, et les données expérimentales. Une évaluation de cette résistance est proposée dans la suite du manuscrit.

En conclusion, nous pouvons dire que nous disposons d'un banc de mesure opérationnel qui permet la détermination de la conductivité thermique de matériaux en film mince avec une précision de l'ordre de 10% .

3.8 BIBLIOGRAPHIE

- [Alk 2014] N. Al-Khudary,
Material thermal conductivity measurement by the 3-omega method application to polymer characterization using inkjet printing technology, Thèse de doctorat, Université de Lille, (2014).
- [Amb 2006] M. Ambrico, M. Losurdo, P. Capezzuto, G. Bruno, T. Ligonzo, and H. Haick, Probing electrical properties of molecule-controlled or plasma-nitrided GaAs surfaces: Two different tools for modifying the electrical characteristics of metal/GaAs diodes, Appl. Surf. Sci., Vol. 252 (21): pp. 7636, (2006).
- [Bat 2007] J. L. Battaglia, C Wiemer, and M Fanciulli.
An accurate low-frequency model for the 3 method.
J. Appl. Phys., Vol. 101, 104510, (2007). <https://doi.org/10.1063/1.2721389>
- [Bir 1987] N. O. Birg and S. R. Nagal
Wide – frequency specific heat spectrometer,
Review of Scientific Instrument. Vol. 58, pp. 1464-1487, (1987).
- [Bro 1967] P. Broquet and V. Nguyen.
Variations avec la température de la résistivité des couches mince d'or.
Surface Science. Vol. 6: pp. 98, (1967).
- [Cal 1999] W. D. Callister,
Matériel sciences et en génie: Introduction,
5e éd., John Wiley Sons Inc, (1999). ISBN 0-471-35243-8.
- [Com 2009] COMSOL Multiphysics User's Guide,
<http://www.comsol.com>
Version 4.2, (April, 2009).
- [Com 2012] COMSOL Multiphysics, Heat transfer module User's Guide,
Version 4.3, May (2012).
- [Cui 2011] J. Cuilliere
Introduction à la méthode des éléments finis,
Editor : DUNOD, ISBN 978-2-10-056438-5, (2011).
- [Ded 2020] <https://www.dedietrich.com/fr/solutions-et-produits/email-verre-borosilicate/proprietes-du-verre-borosilicate>
- [Dha 2005] G. Dhatt, G. Touzot, and E. Lefrancois
Méthode des éléments finis,
Paris : Lavoisier, ISBN 2-7462-0979-9, (2005).
- [Die 2020] <https://za.dedietrich.com/products-solutions/borosilicate-glass-properties>
- [Dup 2019] <https://marianinc.com/wp-content/uploads/2019/08/2019-08-16-DS-S-KaptonSummaryofProperties.pdf>

- [Fra 2004] S. Franssila
Introduction to micro-fabrication, 2nd Edition
Book: John Wiley and Sons, (2010). [DOI:10.1002/9781119990413](https://doi.org/10.1002/9781119990413)
- [Ges 1997] G. Gesele, J. Linsmeier, V. Drach, J. Fricke and R. Arens-Fisher
Temperature dependent thermal conductivity of porous silicon,
Journal of Physics D: Applied Physics, Vol. 30 (21): pp. 2911-2916, (1997).
- [Gin 2015] <https://www.futura-sciences.com/sciences/dossiers/physique-traitement-dechets-nucleaires-avenir-857/page/4/>
- [Gol 1929] V. M. Goldshmidt,
Crystal structure and chemical constitution,
Trans. Faraday. Soc., Vol. 25: pp. 253, 1929.
- [Goo 2020] <http://www.goodfellow.com>
Catalogue Goodfellow.
- [Gru 1979] F. J. Grunthner, P. J. Grunthner, R. P. Vasquez, and J. Maserjian,
Local atomic and electronic structure of oxide/GaAs and SiO₂/Si interfaces
using highresolution XPS,
J. Vac. Sci. Tech., Vol. 16 (5): pp. 1443, (1979).
- [Har 2012] D. Hartung, F. Gather, and P. J. Klar,
Comparison of different methods for measuring thermal conductivities, 9th
European Conf on Thermoelectrics:
ECT2011, p. 381- 384, Thessaloniki, Greece, (2012).
- [Hp 2003] Agilent 34420A Nano Volt/ Micro OhmMeter.
Manual Part Number 34420-90010 (order as 34420-90000 manual set),
Edition 2, March (2003).
- [Hp 2008] Agilent 33210A 10 MHz Function/ Arbitrary Waveform Generator.
Publication number 33210-90010 (order as 33210-90000 manual set),
Edition 1, August (2008).
- [Hp 2013] Agilent 34410A and 34411A 6 ½ digit multimeters.
© Agilent Technologies , Inc. 2013
Published in USA, 5989-3738EN, (2013).
- [Hu 2006] X. J. Hu, A. A. Padilla, J. Xu, T. S. Fisher and K. E. Goodson
3-Omega Measurements of Vertically Oriented Carbon Nanotubes on Silicon,
Journal of Heat Transfer, Vol. 128 (11): pp.1109-1113, (2006).
- [Hua 2003] Huang, Y., H. Qiu, F. Wang, L. Pan, Y. Tian and P. Wu
Effect of annealing on the characteristics of Au/Cr bilayer films grown on
glass
Vacuum, Vol. 71(4): pp. 523-528, (2003).
[DOI: 10.1016/S0042-207X\(03\)00093-9](https://doi.org/10.1016/S0042-207X(03)00093-9)

- [Iny 2003] A. V. Inyushkin, A. N. Taldenkov, A. Y. Yakubovsky, A.V. Markov, L. Moreno-Garsia, and B.N. Sharonov
Thermal conductivity of isotopically enriched GaAs crystal,
Semiconductor Science and Technology, Vol. 18: pp. 685-688, (2003).
- [Jac 2002] A Jacquot, B Lenoir, A Dauscher, M St'olzer, and J Meusel.
Numerical simulation of the 3ω method for measuring the thermal conductivity.
J. Appl. Phys., Vol. 91(7): pp.4733-4738, (2002). [DOI: 10.1063/1.1459611](https://doi.org/10.1063/1.1459611)
- [Jac 2003] A. Jacquot
Ingénierie des Matériaux et des Micro-générateurs Thermoélectriques Planaires.
Thèse de doctorat, Institut national polytechnique de lorraine, (2003).
- [Kap 2020] www.privacy.dupont.com.
- [Kim 1999] A. F. J. H. Kim and D. Novatny.
Application of the 3ω thermal conductivity measurement method to a film on substrate of finite thickness.
Journal of applied physics Vol. 86: pp. 3959, (1999).
- [Kit 2019] C. Kittel, J. Wiley
Physique de d'état solide
Collection : Sciences Sup, Dunod, septembre (2019).
- [Lee 1997] S. M. Lee, D. G. Cahill, R. Venkatasubramanian
Thermal conductivity of Si-Ge superlattices,
Applied Physics Letters, Vol. 70 (22): pp. 2957-2959, (1997).
- [Los 2002] M. Losurdo, P. Capezzuto, G. Bruno, G. Perna, and V. Capozzi,
N₂-H₂ remote plasma nitridation for GaAs surface passivation,
Appl. Phys. Lett., Vol. 81(1): pp. 16, (2002).
- [Luo 2013] T. Luo, J. Grag, J. Shiomi, K. Esferjani, and G. Chen
Gallium Arsenide thermal conductivity And optical phonon relaxation times from first-principle calculations,
European Letters, Vol. 101, pp. 16001, (2013).
- [Mad 1982] O. Madelung,
Physics of Group IV Elements and III-V Compounds Landolt-Bornstein, New Series, Group III, Vol.17, Pt.a. (Springer, Berlin), (1982).
- [Mat 2120] <https://matmatch.com/materials>
- [Meb 2020] <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/mesures-analyses-th1/techniques-d-analyse-par-imagerie-42387210/microscopie-electronique-a-balayage-p866>
- [Mio 2005] C. Mion

- Investigation of the thermal properties of gallium nitride using the three-omega technique.
Thèse de doctorat, Université d'État de Caroline du Nord - États-Unis, (2005).
- [Nms 2020] [NMS Archive : http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/](http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/)
- [Ohk 1994] S. Ohkouchi, N. Ikoma, and I. Tanaka,
Scanning tunneling microscopy of argon-ion bombarded GaAs (001) surfaces,
J. Vac. Sci. Technol. B Micr. Nanom. Struct., Vol. 12(3): pp. 2003, (1994).
- [Rau 2003] C E Raudzis, F Schatz, and D Wharam.
Extending the 3 method for thin-film analysis to high frequencies.
J. Appl. Phys., Vol. 93: pp. 6050, (2003). <https://doi.org/10.1063/1.1569663>.
- [Sac 2011] A. Saci
Transport thermique dans le milieu nano-structuré (GaAs)_n/(AlAs)_n,
Thèse de doctorat, Université pierre et marie curie - Paris, (2011).
- [Sil 2013] T. J. Silverman, M. G. Deceglie, B. Marion, S. Cowley, and S. Kurtz,
Outdoor performance of a thin-film gallium-arsenide photovoltaic module,
Conf. Rec. IEEE Photovolt. Spec. Conf., pp. 103, (2013).
- [Ter 1999] O. E. Tereshchenko, S. I. Chikichev, and A. S. Terekhov,
Atomic structure and electronic properties of HCl-isopropanol treated and
vacuum annealed GaAs(100) surfaces,
J. Vacuum Sci. Technol. A., vol. 17: pp. 2655, (1999).
- [Thi 2013] <http://www.thinksrs.com/downloads/PDFs/Catalog/SR850c.pdf>.
Accessed May 10, (2013). 21.
<http://www.thinksrs.com/downloads/PDFs/ApplicationNotes/AboutLIAs.pdf>.
Accessed May 10, (2013).
- [Wik 2021] https://fr.wikipedia.org/wiki/Verre_borosilicate « Verre borosilicate »
- [Wis 2007] P. Wissmann, H.-U. Finzel
Electrical resistivity of thin metal films,
Springer-Verlag Berlin Heidelberg. Vol. 223, 0081-3869, (2007).
<https://doi.org/10.1007/3-540-48490-6>
- [Yam 2017] H. Yamaguchi,
GaAs-based micro/nanomechanical resonators,
Semicond. Sci. Technol, Vol. 32(10): pp. 103003, (2017).
- [Yub 1988] Y. Yuba, I. Tomohiro, G. Kenji, and N. Susumu,
Characterization of ion beam etching induced defects in GaAs,
J. Vac. Sci. Technol. B Mic. Nanom. Struct., Vol. 6(1): pp. 253, (1988).

Chapitre 4 : Caractérisation de la conductivité thermique des couches minces

Chapitre 4 : Caractérisation de la conductivité thermique des couches minces

Sommaire

4.1 INTRODUCTION	132
4.2 MODELE BICOUCHE (FILM MINCE/SUBSTRAT)	133
4.2.1 Approche différentielle	134
4.2.1.1 Effets de l'addition d'un film mince sur un substrat	136
4.2.1.2 Effet de l'épaisseur du film sur la variation de température.....	138
4.2.1.3 Effet de la largeur de ligne de chauffe sur la variation de température.....	139
4.2.2 L'anisotropie de la conductivité thermique d'un film mince.....	140
4.3 SYSTEME MULTICOUCHEs	141
4.4 MESURE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE D'UN FILM MINCE SUR UN SUBSTRAT	145
4.4.1 Le dépôt chimique en phase vapeur (CVD) des films minces.....	146
4.4.2 Etude d'un système bicouche : dioxyde de silicium/silicium (SiO ₂ /Si).....	147
4.4.2.1 Procédure de dépôt d'un film de SiO ₂ sur la surface d'un substrat de Si	148
4.4.2.2 Mesure de la conductivité thermique d'un film de SiO ₂ sur un substrat de Si.....	151
4.4.3 Etude d'un système bicouche : nitrite de silicium/silicium (Si ₃ N ₄ /Si)	157
4.4.3.1 Procédure de dépôt d'un film de Si ₃ N ₄ sur un substrat de Si	158
4.4.3.2 Mesure de la conductivité thermique d'un film de Si ₃ N ₄ sur un substrat de Si.....	159
4.5 SIMULATION NUMERIQUE D'UN MODELE BICOUCHE PAR FEM	164
4.6 CONCLUSION	172
4.7 BIBLIOGRAPHIE	174

4.1 INTRODUCTION

Ces dernières années, les matériaux déposés en couches minces sont largement utilisés dans de nombreuses applications telles que la micro et nanoélectronique [Joo 2021, Alm 2021], photovoltaïque [Den 2021, Jan 2021], les systèmes micromécaniques (MEMS) [Mai 2009, Gup 2020] et la thermoélectricité [Fan 2006, Kob 2020]. La connaissance des propriétés thermiques, en particulier la conductivité thermique, des films minces et des structures multicouches en film mince est essentielle pour optimiser les performances de nombreux dispositifs. En effet, la conductivité thermique des films minces, et des structures multicouches en film mince, est différente de celle des matériaux massifs. Cela est dû à diverses raisons, notamment les effets de taille et les imperfections de structure [Cah 2003]. Les mesures de cette grandeur sont difficiles sur une structure de faible dimension principalement à cause des pertes de chaleur par rayonnement thermique. A partir du milieu des années 1980, de nombreuses techniques de mesure de la conductivité thermique de films minces ont connu des développements significatifs. Parmi celles-ci, la technique différentielle de la méthode 3-oméga a été largement employée, en raison de sa simplicité d'utilisation, sa bonne précision et les faibles pertes de chaleur par rayonnement thermique au cours des mesures.

Comme annoncé précédemment, la première utilisation de la méthode 3-oméga par D. G. Cahill pour la mesure de la conductivité thermique d'un diélectrique en couche mince (SiO_2) déposé sur un substrat de silicium [Cah 1994].

La première section de ce chapitre est focalisée sur la présentation de la partie théorique de la technique 3-oméga différentielle (modèle bicouche). Dans la seconde partie, nous présentons les différentes étapes de réalisation de deux films minces déposés, séparément, sur un substrat de silicium par le dépôt chimique en phase vapeur à basse pression (LPCVD). Le premier film est une couche mince dioxyde de silicium (SiO_2) de 385 nm d'épaisseur, tandis que le seconde est une couche mince de nitrure de silicium (Si_3N_4) d'épaisseur 470 nm. Puis, nous présentons les résultats de la mesure de la conductivité thermique des films sélectionnés. Ensuite, un modèle de simulation par les éléments finis développé pour ce type d'échantillon (système bicouche) est décrit. Finalement, afin de valider notre modèle de simulation FEM, les résultats expérimentaux sont comparés à ceux obtenus théoriquement par application du modèle de D. G. Cahill et ceux issus de la simulation FEM sous Comsol.

4.2 MODELE BICOUCHE (FILM MINCE / SUBSTRAT)

Comme nous l'avons mentionné précédemment la méthode 3-oméga a été initialement développée pour mesurer la conductivité thermique des matériaux massifs et ensuite elle a été étendue à la caractérisation thermique de couches minces [Lee 1997]. Récemment, cette technique a été adaptée pour la mesure des conductivités thermiques parallèle et transversal au plan de films anisotropes [Bog 2017] (voir Annexe D). Elle est devenue l'une des méthodes les plus populaires pour caractériser la conductivité thermique dans le plan transversal de couches minces.

Dans cette méthode, nous considérons un film mince d'épaisseur d_f et de conductivité thermique k_f inséré entre une source de chaleur infiniment longue de largeur $2b$ (ligne de chauffe) et un substrat de conductivité thermique k_s (Fig. 4.1).

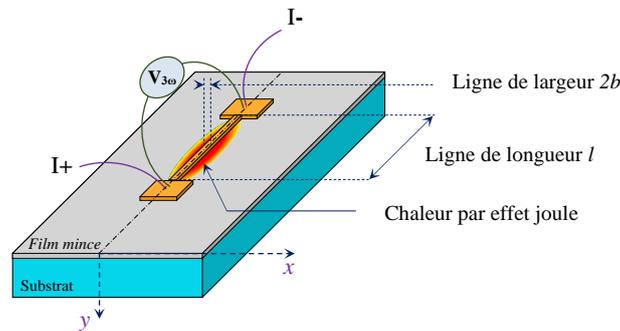


Figure 4.1 : Géométrie d'une ligne de chauffe déposée sur un système composé d'un film mince et d'un substrat.

Deux hypothèses sont envisagées. La première hypothèse consiste à considérer que l'épaisseur du film d_f est très fine par rapport à la largeur $2b$ de la ligne ($d_f \ll 2b$). Dans ce cas le flux de chaleur qui traverse le film est principalement transversal, le flux de chaleur longitudinal (parallèle) au plan à l'intérieur du film peut être négligé. Sous cette hypothèse, la ligne est considérée comme infiniment grande et les effets de bord peuvent être négligés.

Dans la deuxième hypothèse l'épaisseur du film d_f est supposée très grande par rapport à la largeur $2b$ de la ligne ($d_f \gg 2b$). Dans ce cas le flux de chaleur qui diffuse dans le film est majoritairement radial, parallèle au plan, à l'intérieur du film mince. La ligne peut alors être assimilée à une ligne unidimensionnelle (1D) (Fig. 4.2) [Lee 1997, Wie 2013].

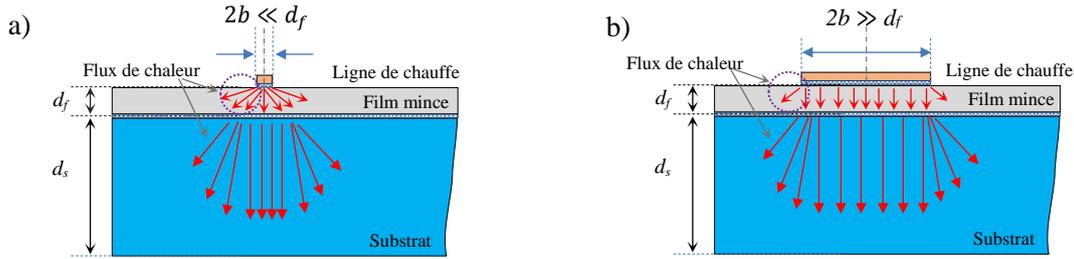


Figure 4.2 : a) Modèle de flux thermique à l'intérieur du film mince lorsque la largeur de l'élément chauffant est beaucoup plus petite que l'épaisseur du film ($2b \ll d_f$) et b) le cas où $2b \gg d_f$.

Expérimentalement, pour réaliser des lignes de chauffe avec des largeurs $2b$ très faibles par rapport à l'épaisseur du film d_f (inférieure au micron), il est nécessaire d'utiliser la technique de photolithographie électronique. Cette dernière étant très coûteuse, pour cette raison, nous avons choisi de réaliser le dépôt des lignes par lithographie optique. De ce fait, nos mesures sont effectuées sur des lignes avec des largeurs $2b$ très grandes par rapport à l'épaisseur du film d_f .

4.2.1 Approche différentielle

Pour un échantillon composé d'un substrat sur lequel est déposée couche mince dont on veut extraire la conductivité thermique, l'amplitude thermique du système ΔT_{s+f} au niveau de ligne chauffante sera composée de deux contributions [Bor 2001, Lee 1997]. Elles sont dues pour la première au substrat (ΔT_s) et pour la seconde au film (ΔT_f) qui agit comme une barrière thermique sous forme une résistance thermique indépendante de la fréquence, tel que :

$$\Delta T_{s+f} = \Delta T_s(2\omega) + \Delta T_f \quad (4.1)$$

Plus précisément, le premier terme de l'équation 4.1 (ΔT_s) représente la variation de température due à la contribution du substrat en fonction de $\ln(2\omega)$ et le second terme (ΔT_f) est lié à celle du film mince.

Cette équation n'est valable que lorsque le contraste thermique entre le substrat et le film déposé est grand, autrement dit, lorsque la conductivité thermique du film mince est très inférieure à celle du substrat ($k_s \gg k_f$) d'où :

$$\frac{k_s}{k_f} \gg 1 \quad \text{et} \quad \frac{D_s}{D_f} \gg 1 \quad (4.2)$$

Dans ce cas, le flux de chaleur à travers le film (ϕ_y) crée par l'élément de chauffe s'écrit par l'application de la loi de Fourier [Gri 1994] :

$$\phi_y = -k_f \frac{\partial \Delta T_f}{\partial y} \quad (4.3)$$

Alors, la variation de la température dans le film s'écrit sous la forme :

$$\Delta T_f = \frac{P_{rms}}{2b} R_f = \frac{P_{rms} \cdot d_f}{2b \cdot k_f} \quad (4.4)$$

où P_{rms} est la puissance rms par unité de longueur, $2b$ est la largeur de l'élément chauffant, d_f est l'épaisseur du film, k_f est la conductivité thermique du film et R_f représente la résistance thermique du film exprimée en m^2kW^{-1} .

Dans la zone des basses fréquences où la profondeur de pénétration thermique est beaucoup plus grande que l'épaisseur du film ($1/q \gg d_f$), selon l'Eq. 2.44, le film inséré entre l'élément chauffant et le substrat provoque un changement, indépendant de la fréquence, par rapport à la composante en phase de la variation de température de l'élément chauffant. Ce changement se traduit par un décalage sur la courbe représentant l'amplitude des variations de température en fonction de la fréquence thermique 2ω . Néanmoins, la pente de la composante en phase des variations de température ΔT_{s+f} reste inchangée et permet de remonter à la conductivité thermique. La composante en quadrature de phase reste quant à elle inchangée.

En résumé, nous donnons ci-après les principales observations :

- La propagation du flux de chaleur sera normale au plan de la couche.
- La conductivité thermique du film k_f est très faible par rapport à celle du substrat k_s .
- Les résistances thermiques de contact (résistance interfaciale) ligne de chauffe/film et film/substrat sont négligeables. A titre d'exemple les résistances thermiques de contact entre la ligne de chauffe et l'échantillon relevées dans littérature sont de l'ordre de 1 à $2 \times 10^{-8} m^2kW^{-1}$ [Sac 2011, Lee 1997, Xu 2008].
- La précision sur la mesure de conductivité thermique des couches minces, par la méthode 3-oméga, dépend de plusieurs facteurs : la qualité de dépôt par la technique de

photolithographie utilisée pour structurer la ligne de chauffe, la précision sur la mesure de l'épaisseur du film et la largeur de la ligne métallique.

- Lorsque l'échantillon est électriquement conducteur, tel que par exemple un substrat de silicium dopé, la variation de la température ou de la tension du 3^{ème} harmonique ne peuvent être mesurées en raison de la présence de fuites de courant à partir de la ligne de chauffe à l'échantillon. Dans ce cas, il n'est pas possible de déterminer la conductivité thermique du matériau. Pour remédier à ce problème, un film mince diélectrique est alors déposé entre l'échantillon et l'élément chauffant.

Expérimentalement, la conductivité thermique d'un film mince peut être obtenue en comparant la variation de température de la ligne métallique pour le système film/substrat (ΔT_{s+f}) avec la valeur des oscillations de température de la ligne métallique calculée pour le substrat seul (ΔT_s). Il existe des méthodes pour obtenir la conductivité thermique du film sans connaître les propriétés du substrat. Parmi ces méthodes, la première consiste à caractériser deux lignes de chauffe de largeurs différentes sur le même échantillon (film/substrat) avec la même puissance d'excitation thermique. La seconde consiste à effectuer des mesures sur une seule ligne de chauffe, mais, avec plusieurs valeurs de la puissance d'excitation thermique [Jac 2003, Bor 2001].

Dans le paragraphe suivant, nous étudions l'influence des différents paramètres sur la variation de la température d'un système composé d'une couche mince sur un substrat.

4.2.1.1 Effets de l'addition d'un film mince sur un substrat

Nous étudions ici, par simulation sous Matlab[®], l'effet du dépôt d'un film au-dessus d'un substrat sur la variation de la température. Pour cela, nous considérons une couche mince de dioxyde de silicium (SiO₂) déposée sur un substrat de Si.

Pour estimer cet effet, les paramètres nécessaires au calcul sont pris dans la littérature et résumés dans le tableau 4.1.

Grandeurs		Valeurs		
Film de SiO ₂	k_f : Conductivité thermique (W/m.K)	1.4		
	C_{pf} : Chaleur spécifique (J. kg ⁻¹ .k ⁻¹)	750		
	ρ_f : Masse volumique (kg.m ⁻³)	2200		
	d_f : Epaisseur de la couche (nm)	100	200	400
Substrat de Si	k_s : Conductivité thermique (W/m.K)	148		
	C_{ps} : Chaleur spécifique (J. kg ⁻¹ .k ⁻¹)	710		
	ρ_s : Masse volumique (kg.m ⁻³)	2329		
	d_s : Epaisseur de substrat (µm)	500		
Ligne	$2b$: Largeur de la ligne de chauffe (µm)	4	10	20

Tableau 4.1 : Valeurs retenues pour la simulation d’une couche de SiO₂ sur un substrat de Si.

La figure suivante (Fig. 4.3) présente le tracé de la variation de température ΔT_{s+f} de l’échantillon SiO₂/Si en fonction de la fréquence angulaire 2ω . La variation de la température ΔT_s due au substrat en silicium seul est calculée en utilisant la formule analytique de D. G. Cahill (Eq. 2.43 et Eq. 2.48), en considérant la valeur de la conductivité thermique du substrat (k_s) affichée dans le tableau ci-dessus.

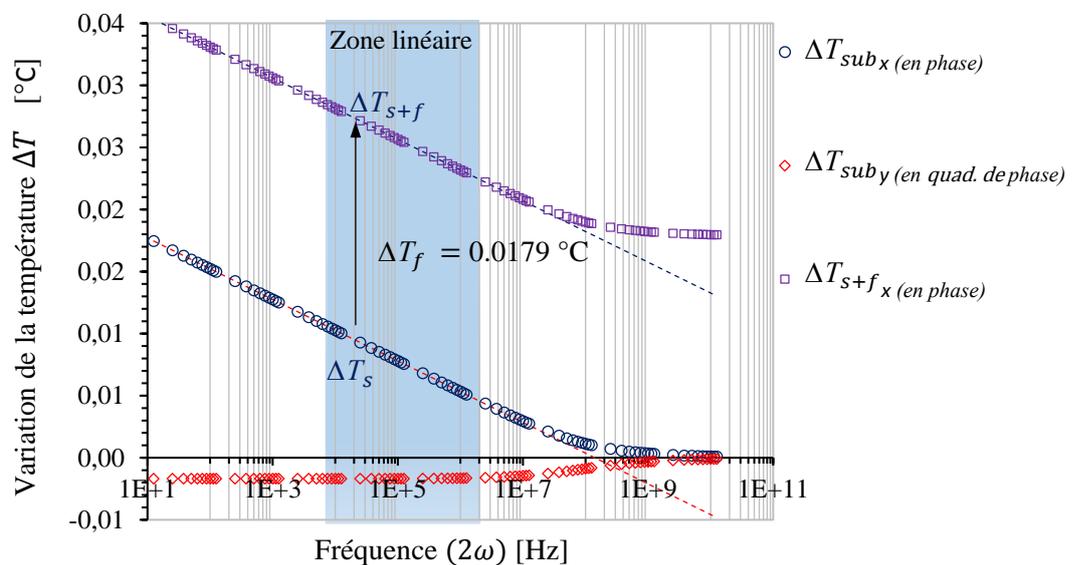


Figure 4.3 : Représentation des variations de la température ΔT_{s+f} et ΔT_s en fonction de la fréquence d’excitation thermique 2ω .

(pour $P_{rms} = 1$ W/m, $d_f = 100$ nm et $2b = 4$ µm).

Cette la figure (Fig. 4.3) montre que la présence d’une couche mince de SiO₂ déposée au-dessus du substrat de silicium ne modifie pas la pente du tracé de la partie réelle (en phase) de la variation de température observée pour le substrat seul. Par contre, un décalage est noté (niveau plus important pour la composante en phase de la variation de la température comparativement au substrat Si seul. La différence entre les composantes en phase de la variation de température totale ΔT_{s+f} (film-substrat) et celle du substrat ΔT_s (calculée selon la formule analytique de D. G. Cahill (Eq. 2.48)) conduit à l’élévation de température due à la présence du film mince. Ici, la variation de la température ΔT_f du film de SiO₂ est donc estimée à 0.0179 °C.

4.2.1.2 Effet de l’épaisseur du film sur la variation de température

Pour illustrer l’effet de l’épaisseur du film sur la variation de la température du système étudié, nous avons calculé sous Matlab®, à l’aide des équations 2.43, 4.1 et 4.4, la composante en phase de la température d’une ligne métallique de largeur $2b = 4 \mu\text{m}$ pour trois épaisseurs de films de SiO₂ (100, 200 et 400 nm) déposés sur un substrat de Si.

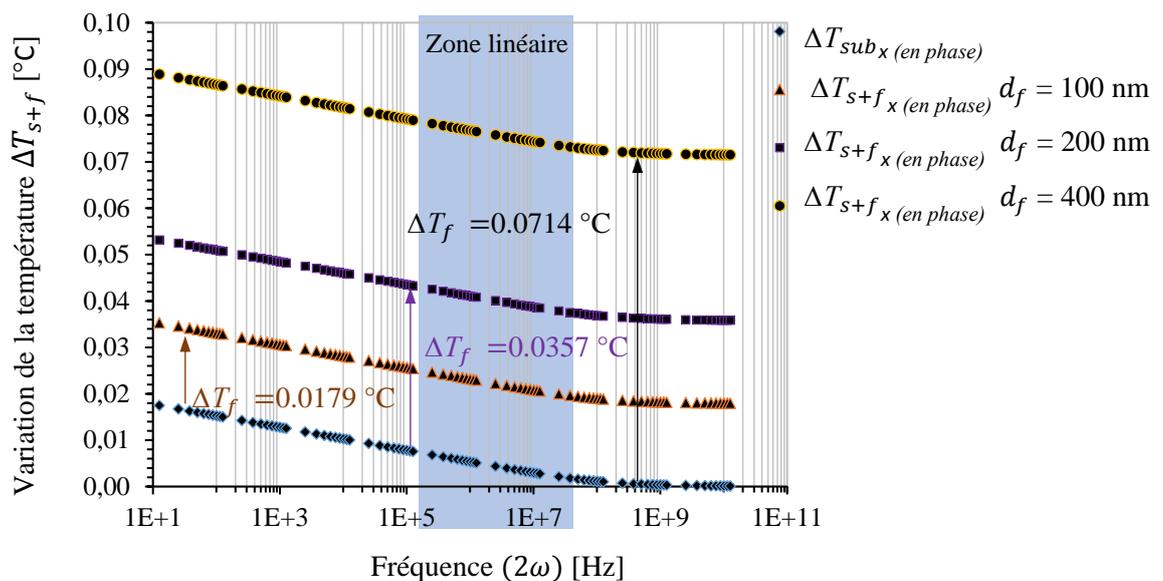


Figure 4.4 : Représentation de la composante en phase de la variation de la température ΔT_{s+f} du système et celle de substrat seul ΔT_s en fonction de la fréquence d’excitation thermique 2ω .

(pour $P_{rms} = 1 \text{ W/m}$, $d_f = 100, 200 \text{ et } 400 \text{ nm}$ et $2b = 4 \mu\text{m}$).

Comme le montre la figure 4.4, lorsque l’épaisseur du film mince augmente, l’écart entre la variation de la température ΔT_{s+f} (substrat+film) et la variation de la température ΔT_s (substrat

seul) augmente. Les films plus épais provoquent une augmentation de température plus importante avec une résistance thermique plus grande. Les variations de la température du film de SiO₂ sont respectivement 0.0179 °C, 0.0357 °C et 0.0714 °C pour des épaisseurs de 100, 200 et 400 nm.

4.2.1.3 Effet de la largeur de ligne de chauffe sur la variation de température

Dans ce paragraphe nous examinons l'influence de la largeur de la ligne de chauffe $2b$ sur le comportement de la variation de la température de l'échantillon sous test. Les valeurs que nous avons choisies pour cette étude sont $2b = 4, 10$ et $20 \mu\text{m}$.

Sur la figure suivante (Fig. 4.5), nous présentons le tracé de la composante en phase de la variation de température ΔT_{s+f} de l'échantillon SiO₂/Si et celle du substrat de silicium (ΔT_s) en fonction de la fréquence angulaire 2ω pour les différentes valeurs de largeur de l'élément chauffant.

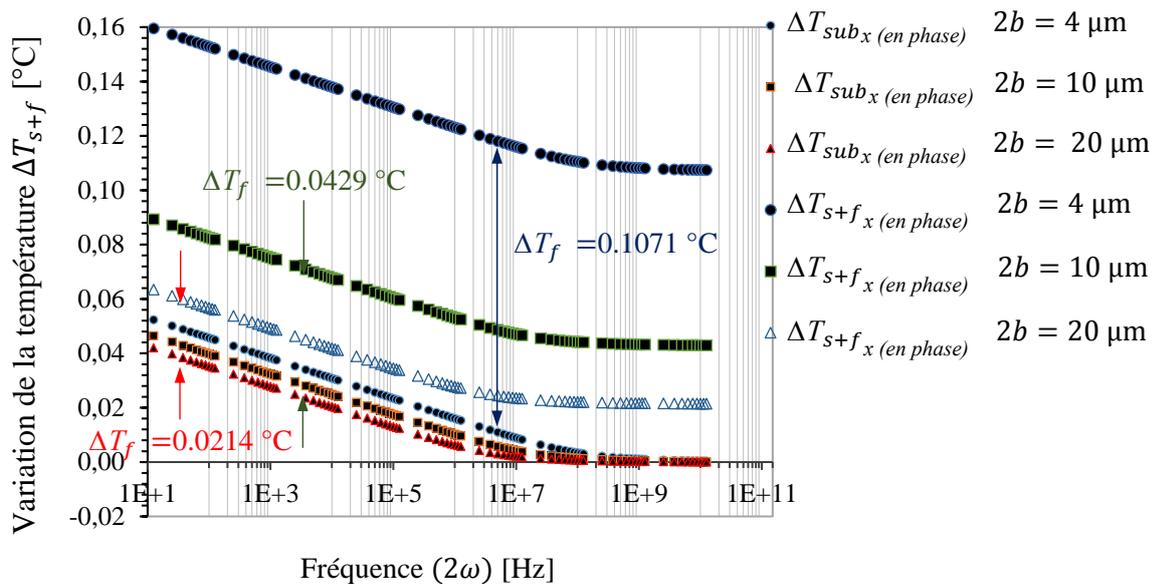


Figure 4.5 : Représentation des composantes en phase de la variation de la température du système ΔT_{s+f} et celle de substrat seul ΔT_s en fonction de la fréquence d'excitation thermique 2ω .

(pour $P_{rms} = 3 \text{ W/m}$, $d_f = 200 \text{ nm}$ et $2b = 4, 10$ et $20 \mu\text{m}$).

D'après la figure 4.5, il est clair que si la largeur de ligne de chauffe augmente, l'écart entre la variation de la température du système (film/substrat) et celle du substrat seul diminue.

Autrement dit, si la largeur de la ligne de chauffe augmente, la variation de la température du film ΔT_f devient plus petite. Dans notre cas, pour des largeurs de 4, 10 et 20 μm de la ligne de chauffe, les variations de la température du film obtenues sont respectivement 0.1071 $^\circ\text{C}$, 0.0429 $^\circ\text{C}$ et 0.0214 $^\circ\text{C}$.

4.2.2 L'anisotropie de la conductivité thermique d'un film mince

Nous avons vu dans la partie consacrée à la méthode différentielle, que la conduction de la chaleur dans le film mince est considérée comme unidimensionnelle (modèle 1D). En réalité ce n'est pas le cas, car une partie de la chaleur diffuse dans plan du film. Donc, si nous prenons en compte l'anisotropie de la conduction thermique [Liu 2001], le modèle thermique n'est plus 1D mais plutôt 2D [Bor 2001]. La variation de la température de la couche mince précédemment décrite par la relation 4.4 prend alors la forme suivante :

$$\Delta T_f = \frac{P_{rms} d_f}{2bk_{f,\perp}} C S_{xy} \quad (4.5)$$

où

C est le contraste entre la conductivité thermique du substrat et celle du film sous test.

S_{xy} représente l'influence des transferts thermiques latéraux dans le film.

Ces deux grandeurs s'expriment de la façon suivante :

$$C = 1 - \frac{k_{f,x} k_{f,y}}{k_s^2} \quad (4.6)$$

$$S_{xy} = \frac{2}{\pi} \int_0^\infty \frac{\sin^2(\eta)}{\eta^3} \frac{\tanh(\eta\beta)}{\left(1 + \frac{\sqrt{k_x k_y}}{k_s} \tanh(\eta\beta)\right) \beta} d\eta \quad (4.7)$$

avec

$$\beta = \sqrt{k_{xy}} \left(\frac{d_f}{b}\right) \quad (4.8)$$

k_x et k_y sont respectivement la conductivité thermique dans le plan et le plan transversal de la couche. Le rapport entre la conductivité thermique du film perpendiculaire k_{fy} et la conductivité thermique défini par le modèle unidimensionnel (1D) s'écrit sous la forme :

$$\frac{k_{f,y}}{k_{1D}} = C S_{xy} \tag{4.9}$$

L'étude de l'anisotropie de la conductivité thermique des matériaux en couche mince s'avère très compliquée, les références [Bor 2001, Jac 2003, Sac 2011, Tri 2004] peuvent être consultées pour des informations complémentaires.

4.3 SYSTEME MULTICOUCHES

Dans cette partie, nous décrivons un modèle général pour caractériser la variation de température dans le cas d'un système composé d'un empilement de couches déposées sur la surface d'un substrat semi-infini (ou d'épaisseur finie). La ligne de chauffe est située au sommet de l'empilement (Fig. 4.6).

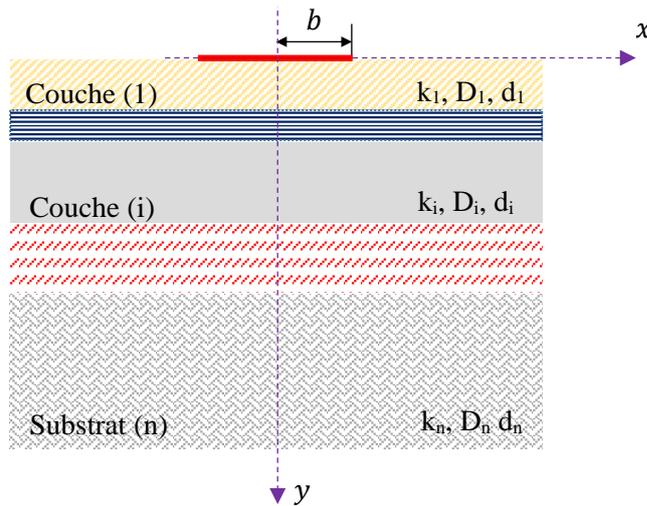


Figure 4.6 : Schéma illustrant les notations introduites dans le modèle multicouches proposé par Borca-Tascui et al. [Bor 2001].

Les travaux réalisés par Borca-Tascui et al. [Bor 2001] permettent de prendre en compte la capacité thermique de la ligne de chauffe, les résistances thermiques d'interface entre les différents matériaux et l'éventuelle anisotropie du transfert thermique dans le système sont prises en compte. Ainsi, l'expression de la variation de température de l'élément chauffant est donnée par l'équation suivante [Bor 2001, Tri 2004]:

$$\Delta T = \frac{-P_{rms}}{\pi k_{1,\perp}} \int_0^\infty \frac{1}{A_1 B_1} \frac{\sin^2(b\eta)}{(b\eta)^2} d\eta \tag{4.10}$$

avec :

$$A_{i-1} = \frac{A_i \frac{k_{i,y} B_i}{k_{i-1,y} B_{i-1}} - \tanh(\varphi_{i-1})}{1 - A_i \frac{k_{i,y} B_i}{k_{i-1,y} B_{i-1}} \tanh(\varphi_{i-1})} \quad \text{avec } i = 2, \dots, n \quad (4.11)$$

et

$$B_i = \sqrt{k_{xy} \eta^2 + \frac{i2\omega}{D_i}} \quad (4.12)$$

$$A_n = -\tanh(B_n d_n)^m \quad \text{avec } m = 0, -1, 1 \quad (4.13)$$

$$\varphi_i = B_i d_i \quad (4.14)$$

et

$$k_{xy} = \frac{k_x}{k_y} \quad (4.15)$$

Où n est le nombre total de couches, substrat compris. L'indice i correspond à la $i^{\text{ème}}$ couche en partant du dessous de l'élément chauffant et d_i est l'épaisseur de la $i^{\text{ème}}$ couche. L'indice y correspond à la direction perpendiculaire à l'interface film/substrat (plan transversal), k_x et k_y sont respectivement la conductivité thermique dans le plan et le plan transversal de la couche.

Alors que, η est une variable d'intégration avec l'unité de nombre d'onde et φ est une variable sans dimension, elle est liée au flux de chaleur anisotrope dans une couche d'une épaisseur finie.

Dans cette relation (Eq. 4.11), l'effet de l'anisotropie de conductivité thermique est représenté par le terme k_{xy} , qui est le rapport de la conductivité thermique dans le plan sur celle de plan transversal de la couche.

Si le substrat est considéré comme un milieu semi-infini $A_n = -1$ (avec $m = 0$). Dans le cas où le substrat est d'épaisseur finie, la valeur de A_n dépend des conditions aux limites à la surface inférieure du substrat. Dans ce cas, deux hypothèses sont envisagées :

- Si le flux thermique est nul au niveau de la face arrière du substrat, c'est à dire qu'il n'y a pas d'échange de chaleur avec le milieu extérieur, nous utilisons une condition aux limites adiabatique, tel que $m = 1$ et $A_n = -\tanh(B_n d_n)$.
- S'il y a un échange de chaleur avec le milieu extérieur, le flux thermique est constant au niveau de la face arrière du substrat, nous utilisons alors une condition aux limites isotherme (variation de température nulle), tel que $m = -1$ et $A_n = -1/\tanh(B_n d_n)$.

Cette relation (Eq. 4.10) permet de remonter de proche en proche, en partant du substrat, jusqu'à l'expression des variations de température au sommet de l'empilement du système [Bor 2001, Tri 2004].

A titre d'exemple, pour un système composé d'une couche de SiO₂ déposée sur un substrat de Si, les variations de température en fonction de la fréquence angulaire 2ω ont été simulées sous Matlab[®] pour les différents modèles précités (substrat semi infini et substrat fini : isotherme et adiabatique). La ligne considérée est de largeur $2b = 4 \mu\text{m}$, la puissance par unité de longueur est $P_{rms} = 1 \text{ W/m}$ et l'épaisseur du film de SiO₂ est $d_f = 100 \text{ nm}$.

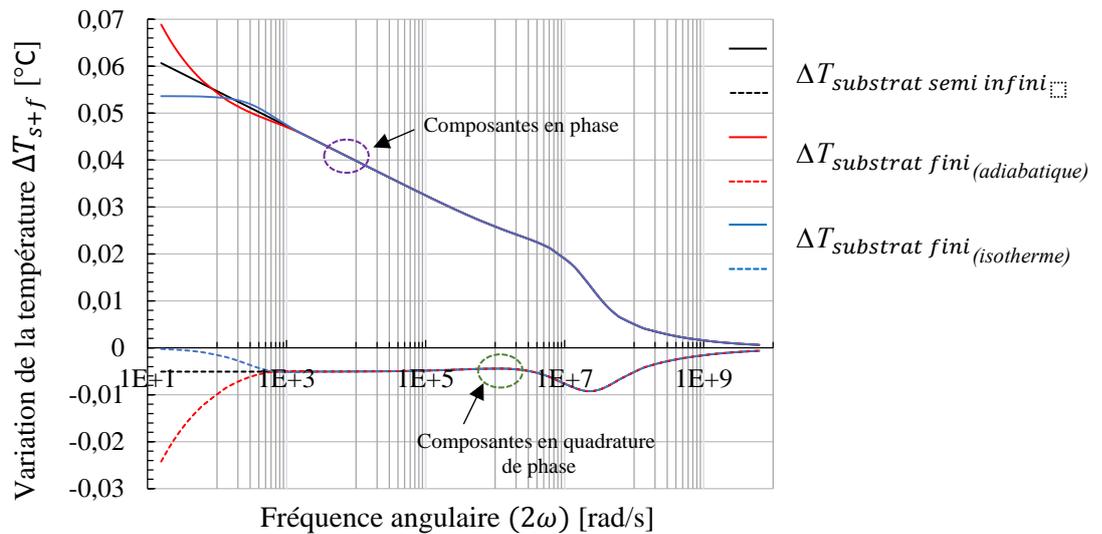


Figure 4.7 : Comparaisons des variations de température en fonction de la fréquence angulaire 2ω , entre les trois modèles analytiques proposés par Borca-Tascui et ses collaborateurs.

Hormis aux basses fréquences, où une différence sensible est relevée entre les trois modèles, nous notons que globalement les trois modèles donnent des résultats comparables. Dans cette zone fréquentielle la profondeur de pénétration thermique L_{pt} devient comparable à l'épaisseur de substrat et influence donc l'évolution de température. Cet effet a été pris en compte dans la solution analytique proposée par D. G. Cahill pour estimer les limites fréquentielles de la zone linéaire, d'où les fréquences des limites inférieure et supérieure sont respectivement 1233 Hz et 71224 Hz.

Une autre étude de comparaison des variations de température issues des modèles analytiques 2D, pour lesquels le substrat est considéré fini (adiabatique et isotherme) et semi infini, suggérés par T. Borca et al. avec celles obtenues à partir du modèle proposé par D. G. Cahill est présenté sur la figure suivante (Fig. 4.8).

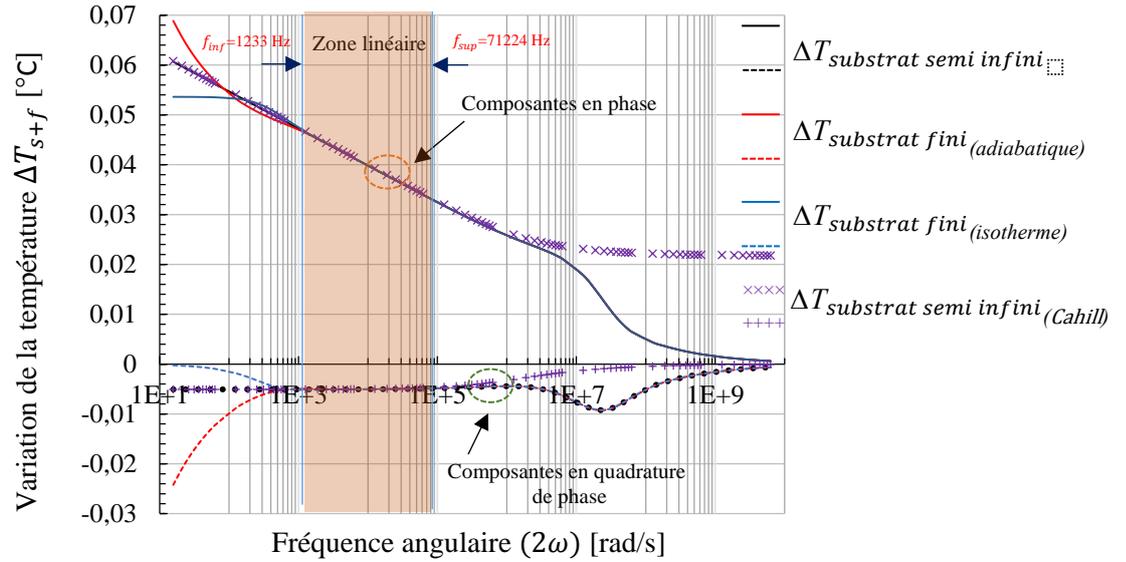


Figure 4.8. Comparaisons des variations de température en fonction de la fréquence angulaire 2ω , pour les différents modèles analytiques proposés par T. Borca et D. G. Cahill. (pour $2b = 4 \mu\text{m}$, $P_{rms} = 1 \text{ W/m}$ et $d_f = 100 \text{ nm}$ dans le cas de SiO_2/Si)

Nous constatons que les résultats théoriques issus du modèle analytique 2D proposé par T. Borca et al. pour lequel le substrat est considéré semi-infini sont identiques à ceux obtenus par application de la solution de D. G. Cahill, qui suppose également que le substrat est semi-infini. Nous présentons sur la figure suivante (Fig. 4.9) une comparaison des tracés de la variation de température issue du modèle de la solution de Cahill, d'une part dans le cas d'un film mince sur un substrat (SiO_2/Si) et d'autre part pour le substrat de silicium seul, et du modèle analytique 2D (pour un substrat fini avec la condition isotherme) en fonction de la fréquence angulaire 2ω .

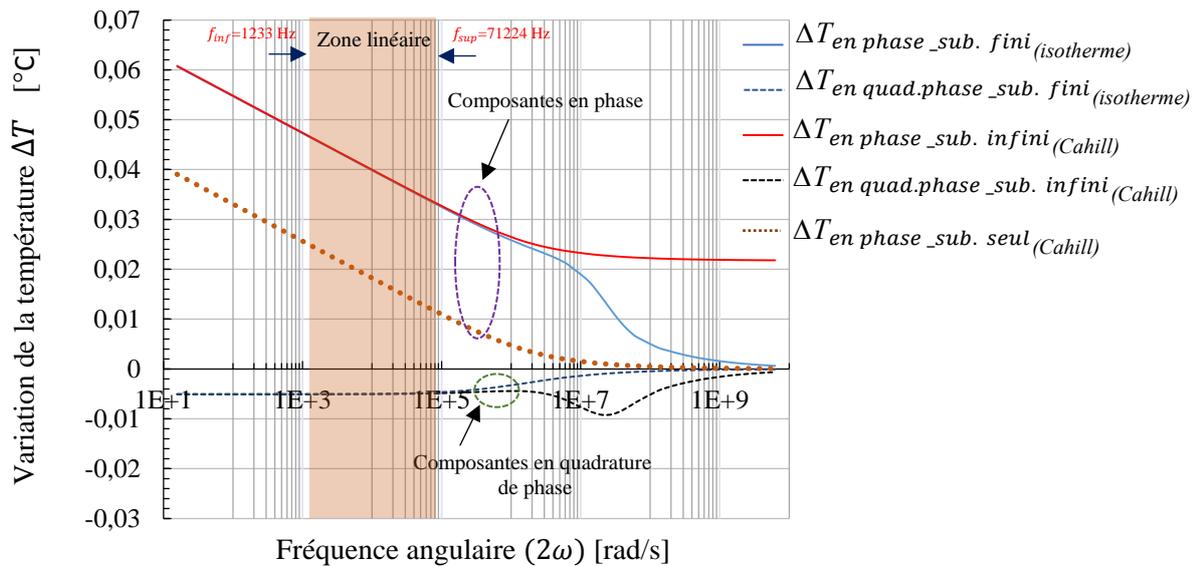


Figure 4.9. Comparaisons des variations de température en fonction de la fréquence angulaire 2ω , pour les trois modèles analytiques proposés par T. Borca et celui proposé par D. G. Cahill. (pour $2b = 4 \mu\text{m}$, $P_{rms} = 1 \text{ W/m}$ et $d_f = 100 \text{ nm}$)

L'expression analytique donnée précédemment (Eq. 4.10) ne prend pas en compte les effets de la résistance thermique limite entre l'élément chauffant et le film ainsi que la capacité thermique de l'élément chauffant. Si nous les prenons en comptes et si nous négligeons les effets de conduction thermique à l'intérieur de la source de chaleur (ligne de chauffe), la variation de température (Eq. 4.10) devient alors :

$$\Delta T_h^* = \frac{\Delta T + R_{hf} \frac{P}{2b}}{1 + (\rho c_p)_h d_h i 2\omega (R_{hf} + \Delta T \frac{2b}{P})} \quad (4.16)$$

ΔT_h^* est en quelque sorte la variation de la température corrigée, $(\rho c)_h$ est la capacité thermique volumique de l'élément de chauffe, d_h est l'épaisseur de l'élément chauffant et R_{hf} est la résistance de contact entre la ligne et le 1^{er} film (au-dessous). Cette dernière est de l'ordre de 1 à 2×10^{-8} K.m²/W [Xu 2008, Yam 2002, Lee 1997]. Le terme ΔT représente la variation de température déterminée à partir de l'Eq. 4.10, c'est-à-dire pour une structure multicouche sur un substrat sous la même puissance et sans prise en compte des effets de la résistance thermique élément chauffant/1^{er} film et de la capacité thermique de l'élément chauffant.

Dans la section suivante, nous présentons les résultats de la conductivité thermique pour deux types échantillons, obtenus par la méthode différentielle.

4.4 MESURE DE LA CONDUCTIVITE THERMIQUE D'UN FILM MINCE SUR UN SUBSTRAT

Dans cette partie, nous montrons qu'il est possible de mesurer simultanément la conductivité thermique d'un film mince et du substrat sur lequel il est déposé. Il est évidemment possible de faire, dans un premier temps, la mesure de la conductivité thermique du substrat seul (témoin) mais il est également envisageable de réaliser la mesure des deux conductivités thermiques (substrat et film) en une seul fois.

Afin d'illustrer la méthode de caractérisation, basée sur la méthode différentielle 3ω proposée par D. G. Cahill et présentée dans les sections précédentes de ce chapitre, nous avons retenu deux véhicules de test.

Le premier est composé d'une couche mince dioxyde de silicium déposée sur un substrat de silicium intrinsèque (SiO_2/Si) et le deuxième est un film mince de nitrure de silicium déposé sur la surface d'un substrat de silicium intrinsèque ($\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$).

Avant de présenter les résultats de la mesure des différentes conductivités, nous allons d'abord présenter les étapes essentielles de la technologie mis en œuvre pour la réalisation des échantillons sélectionnés (ligne de chauffe/film/substrat).

Le dépôt chimique en phase vapeur

4.4.1 Le dépôt chimique en phase vapeur (CVD) des films minces

Le dépôt chimique en phase vapeur (CVD : Chemical Vapor Deposition) sont réalisés dans des fours sous vide (quelques dizaines de mTorr à quelques Torr), à des températures comprises entre 200°C et 900°C en utilisant des gaz qui contiennent les atomes du matériau souhaité.

Les techniques les plus connues pour les dépôts CVD sont la LPCVD (Low Pressure Chemical Vapor Deposition) et la PECVD (Plasma Enhanced Chemical Vapor Deposition). La technique LPCVD permet notamment de réaliser des couches minces en polysilicium (dopé si addition de gaz dopants), en oxyde de silicium basse température (dopé si addition de gaz dopants) et de nitrure de silicium haute température. Les gaz utilisés pour ces dépôts sont : le silane (SiH_4), le dichlorosilane (SiH_2Cl_2), l'oxygène (O_2), l'ammoniac (NH_3) et le protoxyde d'azote (N_2O). Les couches obtenues par LPCVD ou PECVD dépendent des paramètres du dépôt (pression, température, débits de gaz, puissance plasma) et les différences portent notamment sur la composition stœchiométrique, la densité, la vitesse de gravure, la constante diélectrique, les contraintes mécaniques et l'indice de réfraction.

Dans le dépôt par LPCVD, les vitesses sont assez faibles car les dépôts sont réalisés à basses pressions (quelques dizaines de mTorr). Par ailleurs, la technique PECVD permet l'obtention de couches minces en oxyde de silicium, en nitrure de silicium et en oxynitrure de silicium. Les températures utilisées pour les dépôts PECVD sont comprises entre 200°C et 400°C ce qui permet de réaliser des dépôts de matériaux isolants sur des métaux. Les vitesses de dépôt sont supérieures à celles relevées pour les dépôts LPCVD du fait de la pression plus élevée nécessaire à la création du plasma.

L'avantage majeur de la technique de dépôt LPCVD par rapport à la technique PECVD est la qualité des couches obtenues. Celles-ci sont beaucoup plus denses, homogènes (non poreuses) et permettent une bonne tenue mécanique. Le procédé de gravure silicium est beaucoup moins sélectif avec les couches PECVD. Pour cette raison, dans ce travail, nous avons choisi le dépôt par LPCVD pour réaliser nos échantillons sous test.

Le dépôt par LPCVD nécessite un équipement constitué de 3 parties essentielles qui sont :

1. Un four TEMPRESS composée de trois tubes horizontaux (figure 4.10).
2. Une pompe : pour assurer le vide de l'enceinte (0.1 – 1 Torr)
3. Des parois chaudes : pour assurer l'homogénéité de la température dans l'enceinte.

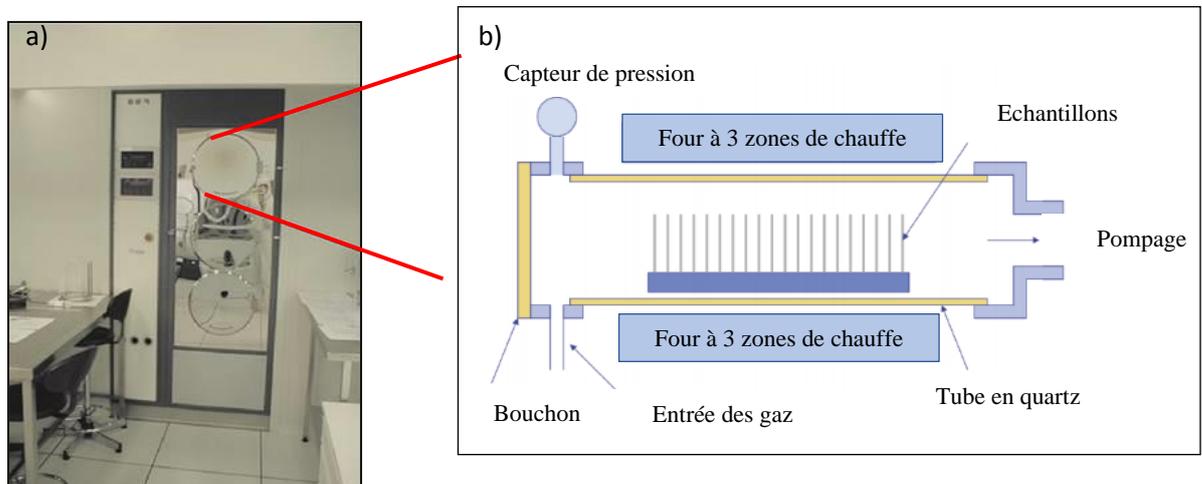


Figure 4.10 : a) Photographie d'un réacteur plasma disponible dans la salle blanche.

b) Schéma d'un réacteur plasma, à mur chaud, comportant 3 zones de chauffe dans lequel on réalise un plasma à l'aide de la source radiofréquence [Sze 1988].

Les deux échantillons, un film mince dioxyde de silicium (SiO_2) déposé sur la surface d'un substrat de silicium et un film mince de nitrure de silicium (Si_3N_4) au-dessus d'un substrat de Si, ont été réalisés dans la salle blanche de l'IEMN.

4.4.2 Etude d'un système bicouche : dioxyde de silicium/silicium (SiO_2/Si)

La silice est la forme naturelle du dioxyde de silicium SiO_2 . Il est un composé naturel composé de deux des matériaux les plus abondants sur terre : le silicium (Si) et l'oxygène (O_2), car, chaque atome de Si a quatre liaisons avec des atomes d'O et chaque atome d'O a deux liaisons avec des atomes de Si [Tu 1998] (Fig. 4.11). C'est un matériau isolant le plus couramment utilisé dans la technologie des circuits intégrés et dans les autres domaines de la technologie de fabrication de dispositifs au silicium. Il est utilisé comme matériau structural,

en microélectronique, comme isolant électrique dans la fabrication de dispositifs MEMS [Til 2015] et dans des transistors à effet de champ oxyde de métal-semi-conducteur (MOSFET), ainsi que comme ingrédient pour l'industrie pharmaceutique et l'industrie agroalimentaire.

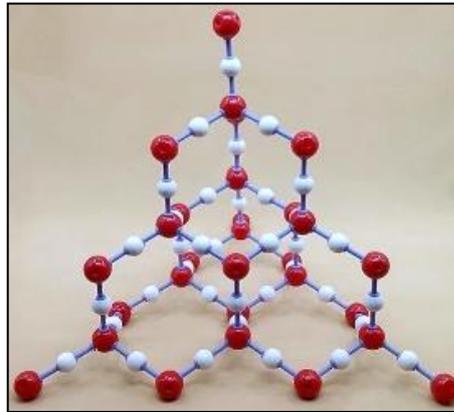


Figure 4.11 : Structure microscopique dioxyde de silicium. (Les boules rouges et blanches représentent respectivement les atomes de silicium et d'oxygène).

L'oxyde thermique est une sorte de couche dioxyde "développée", par rapport à la couche d'oxyde déposée par CVD, il est plus uniforme et présente une rigidité diélectrique plus élevée, cette couche diélectrique est un excellent isolant. Dans la plupart des dispositifs à base de silicium, la couche d'oxyde thermique joue un rôle important pour la surface du silicium, car elle agit comme barrière de dopage et comme diélectrique de surface. Généralement, la croissance d'une couche de dioxyde de silicium est réalisée sur une surface de silicium en présence d'un oxydant sous une température élevée, le processus est appelé oxydation thermique. Lorsqu'un substrat de silicium subit une atmosphère oxydante aux températures élevées, le dioxyde de silicium est développé chimiquement sur la surface. Si l'ambiance oxydante est de la vapeur, le processus est connu sous le nom d'oxydation humide et si de l'oxygène gazeux pur est utilisé, le processus est appelé oxydation sèche [Tru 2012].

4.4.2.1 Procédure de dépôt d'un film de SiO_2 sur la surface d'un substrat de Si

Au début du processus de dépôt du film dioxyde de silicium (SiO_2) sur la surface d'un wafer de Si [Sil 2020], par la technique LPCVD, il est essentiel de nettoyer le wafer de silicium (substrat), afin d'éviter toutes traces de pollutions (poussières, oxydation naturelle, contamination ionique,...). Les wafers de silicium sont fournis par la société Sil'tronix Silicon

Technologies – France. Ils procèdent un diamètre de 3 pouces, présente une épaisseur de $380 \pm 2.5 \mu\text{m}$, et ont une orientation cristalline $\langle 100 \rangle$ [Sil 2018].

L'opération de nettoyage du substrat se déroule le plus souvent selon le processus suivant.

Dans un premier temps, le wafer de Si est traité avec une solution Piranha, composé de 33,5 % de H_2SO_4 et de 66,5 % de H_2O_2 , sous une température de $150 \text{ }^\circ\text{C}$ pendant 30 minutes. Cette solution permet d'enlever les contaminants organiques à la surface des substrats. Pendant cette étape, une couche d'oxyde sera créée à la surface du wafer, car le H_2O_2 possède une forte propriété oxydante. Ensuite, le wafer est rincé dans l'eau désionisée (DI) et placé dans un bain d'acide fluorhydrique HF pendant 3 minutes, pour éliminer toute trace d'oxyde de silicium. Au cours de cette phase, la surface du wafer est couverte par des atomes d'hydrogène, ce qui lui assure une stabilité élevée dans l'air. Finalement, un rinçage dans l'eau DI puis un séchage sous flux d'azote est effectué.

Une fois le substrat de Si nettoyé, nous passons à l'étape de dépôt d'une couche dioxyde de silicium SiO_2 par la technique LPCVD. Comme il a été mentionné précédemment, cette technique nous permet de réaliser un dépôt de couches minces homogènes, plus denses et non poreuses.

Afin d'obtenir une couche dioxyde de silicium, nous avons appliqué une oxydation humide. En effet, l'oxydation humide est beaucoup plus rapide que l'oxydation sèche et permet de réaliser des épaisseurs d'oxyde de silicium allant de 200 nm jusqu'à plusieurs μm . dans ce but, nous avons utilisé deux types de gaz (l'oxygène et l'hydrogène) avec un débit, respectivement, de 1.5 et 2 standard litre par minute (slm). Ces deux gaz réagissent entre eux et forment de l'eau, avec une pureté très élevée, qui réagit avec le wafer de silicium sous une température de $1100 \text{ }^\circ\text{C}$ et sous pression atmosphérique. La vitesse d'oxydation humide est d'environ 9-10 nm/min. Dans notre cas, pour obtenir une couche de SiO_2 d'épaisseur 380 nm, cela nécessite une oxydation humide d'environ 41 minutes.

La croissance d'une couche de SiO_2 par l'oxydation humide à haute température se déroule selon la réaction chimique suivante :



La figure suivante (Fig. 4.12) présente une photographie obtenue par un microscope électronique à balayage (MEB) de l'échantillon composé d'une couche dioxyde de silicium déposée sur la surface de silicium par LPCVD.

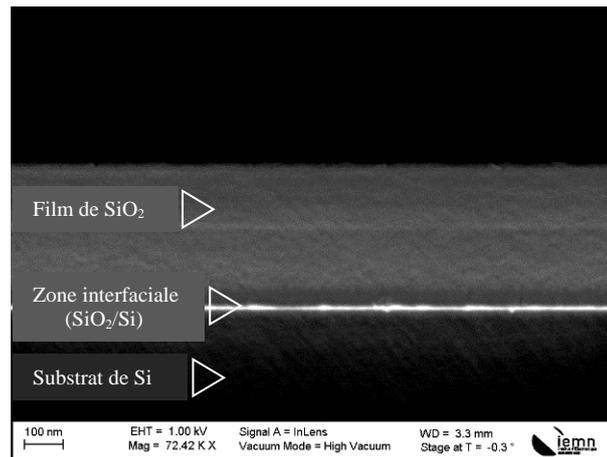


Figure 4.12 : Une image par microscope électronique à balayage (MEB) d'une structure composée d'un film dioxyde de silicium déposé sur la surface de silicium par LPCVD.

Finalement, nous avons réalisé plusieurs lignes métalliques sur cet échantillon (SiO_2/Si). Toutes les étapes technologiques nécessaires à la réalisation des lignes de chauffe sur la surface de ces échantillons ont déjà été présentées dans le chapitre précédant dans la partie ‘*Réalisation de micro-capteurs thermique par la technologie photolithographie*’.

Nous avons choisi trois lignes métalliques de longueurs différentes, de largeurs $2b$ qui varient entre $10\ \mu\text{m}$ et $30\ \mu\text{m}$ (avec une erreur de $\pm 150\ \text{nm}$) et présentent une épaisseur de métal (Au) de $410\ \text{nm}$ avec $20\pm 10\ \text{nm}$ d'une couche de chrome pour assurer une bonne accroche au film de SiO_2 . Les caractéristiques de ces lignes ainsi que d'autres paramètres nécessaires à la technique 3-oméga sont donnés dans le tableau suivant.

Ligne	$2b\ (\mu\text{m})$	$L\ (\text{mm})$	$R_o\ (\Omega)$	$V_0\ (\text{v})$	$P_{rms}\ (\text{W/m})$	$\beta_h\ (^\circ\text{C})$	$T_0\ (^\circ\text{C})$
Ligne 11	10	3	32.899	1.687	28.836	0.00282	28.00
Ligne 12	20	5	29.232	1.605	17.625	0.00287	28.40
Ligne 13	30	9	34.030	1.331	5.784	0.00290	28.60

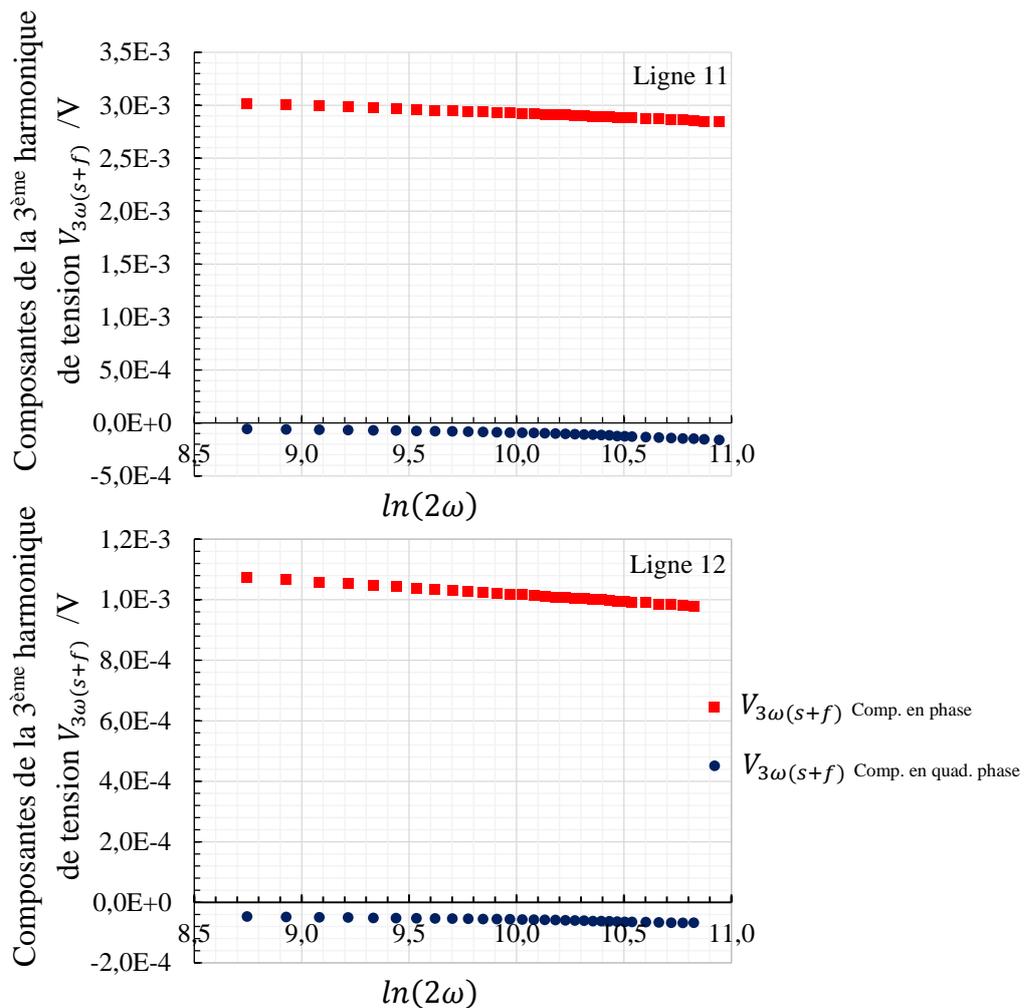
Tableau 4.2 : Caractéristiques des lignes de chauffe déposées sur le SiO_2/Si par la technique de lithographie optique.

Dans la section suivante, nous montrons qu'il est possible de mesurer, simultanément, la conductivité thermique du substrat et du film dioxyde de silicium grâce la technique 3-oméga.

4.4.2.2 Mesure de la conductivité thermique d'un film de SiO₂ déposé sur un substrat de Si

Les mesures de l'amplitude et de la phase de la 3^{ème} harmonique de la tension, par l'amplificateur à verrouillage SR-830, sont effectuées pour déterminer les conductivités thermiques du film mince dioxyde de silicium et du substrat en silicium. Une campagne de mesure dans la zone fréquentielle linéaire est effectuée. A partir de l'équation 2.52, nous avons calculé les bornes de cette zone à partir de la conductivité thermique du substrat tirée de la littérature $k_{Si} = 148 \text{ W/m.k}$, de la chaleur spécifique $C_p=710 \text{ J/kg K}$, de la masse volumique $\rho=2329 \text{ kg/m}^3$, de l'épaisseur du substrat de silicium $d_s = 380 \text{ }\mu\text{m}$ et de la largeur de la ligne de chauffe $2b$ (10, 20 et 30 μm).

Les composantes en phase et en quadrature de phase de la troisième harmonique de tensions obtenues expérimentalement pour les lignes métalliques 11, 12 et 13 (dans la zone linéaire) sont présentées sur la figure 4.13.



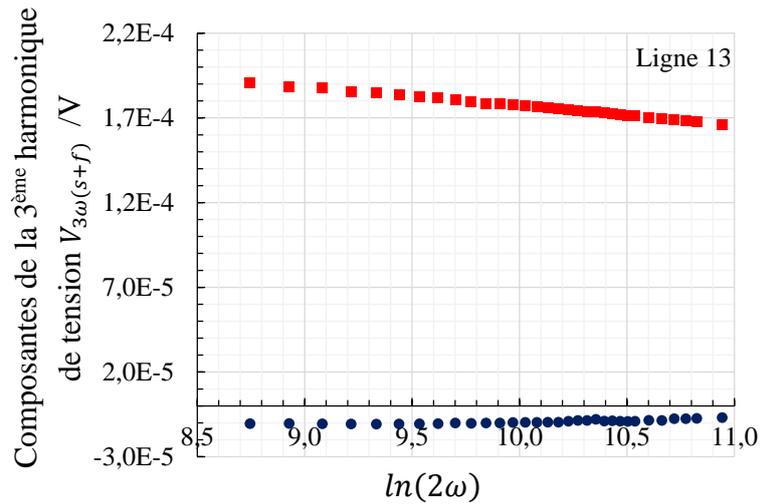


Figure 4.13 : Composantes en phase et en quadrature de phase de la troisième harmonique de tension $V_{3\omega}$ mesurée en fonction de la fréquence angulaire (2ω).

(pour les lignes 11, 12 et 13).

Le tableau 4.3 nous présente les valeurs de la conductivité thermique du substrat de silicium obtenues expérimentalement pour les lignes métalliques 11, 12 et 13.

Ligne de chauffe	k_{Si} W/m.k	$k_{Si(moy)}$ W/m.k
Ligne 11	148.695	146.639
Ligne 12	145.914	
Ligne 13	145.310	

Tableau 4.3 : Conductivité thermique du substrat de silicium k_{Si} obtenues expérimentalement par la méthode de la pente (pour lignes 11, 12 et 13).

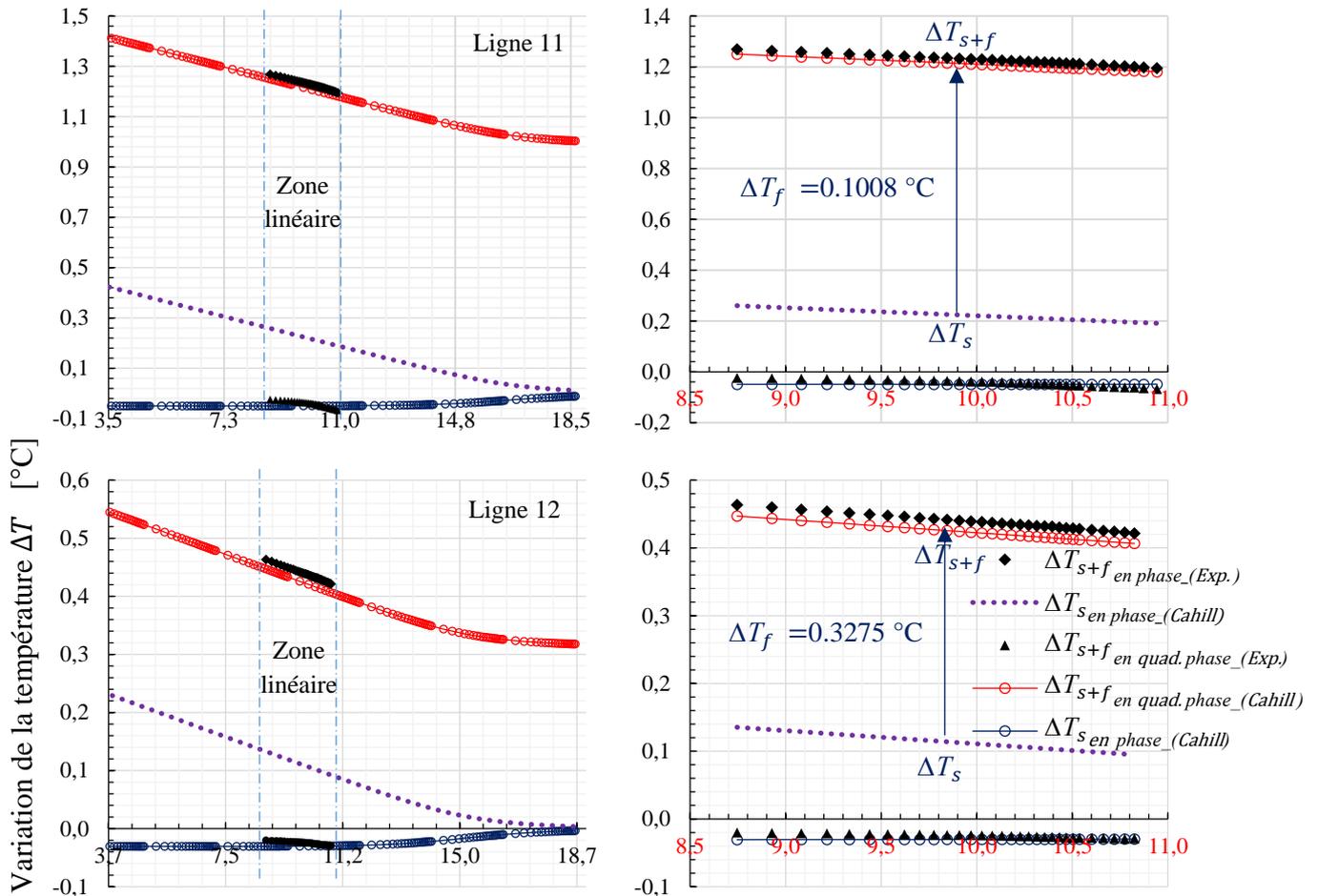
La valeur de la conductivité thermique du substrat de silicium (Si), dans le tableau ci-dessus, été obtenue par la méthode de la pente en utilisant l'équation 2.50. Nous pouvons remarquer que la conductivité thermique moyenne du substrat de silicium k_{Si} mesurée, à l'aide de la méthode 3-oméga (Eq. 2.50), est (146.64 ± 1.80) W/mK, ce qui est acceptable par rapport à la valeur donnée par le fournisseur et celle trouvée dans la littérature, (148 ± 2) W/mK, [Sil 2018, Jac 2002].

Afin de calculer la conductivité thermique des films minces dioxyde de silicium k_{SiO_2} par la méthode différentielle (Eq. 4.3), la variation de température ΔT_s du substrat de silicium (sans film mince) est calculée, pour chacune des lignes de chauffe, selon la méthode analytique de D.

G. Cahill en utilisant un programme sous Matlab® (Eq. 2.48). Sachant que la variation de la température du film de SiO₂, ΔT_f peut être calculée comme suit :

$$\Delta T_f = \Delta T_{s+f} + \frac{P_{rms}}{2\pi lk} \left(\ln(2\omega) + \ln\left(\frac{b^2}{D}\right) - 2\xi \right) \quad (4.17)$$

Sur la figure suivante (Fig. 4.14) nous présentons une comparaisons des résultats obtenus expérimentalement et des valeurs issues du modèle analytique de D. G. Cahill, programmée sous Matlab®, de la variation de la température $\Delta T_{(s+f)}$ (à gauche), et des zooms sur la composante en phase (partie réelle) de la variation de la température dans la zone linéaire (à droite) pour les éléments de chauffe 11, 12 et 13.



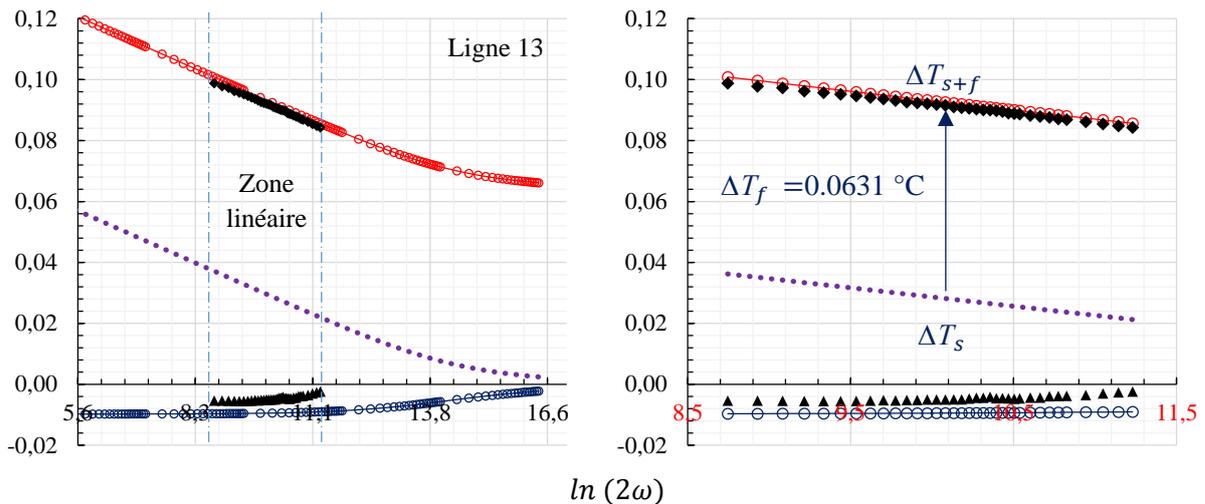


Figure 4.14 : Comparaisons des résultats obtenus expérimentalement à ceux issus du modèle analytique de D. G. Cahill de la variation de la température $\Delta T_{(s+f)}$ (à gauche), et des zooms dans la zone linéaire (à droite). (pour les lignes de chauffe 11, 12 et 13).

Sur les figures ci-dessous, les triangles et les losanges noirs représentent respectivement les composantes en phase et quadrature de phase de la variation de température totale $\Delta T_{s+f \text{ exp}}$ obtenus expérimentalement et déduits de mesures de la 3^{ème} harmonique de la tension. Alors que les courbes en cercle avec des lignes continues rouges et bleues représentent respectivement les composantes en phase et quadrature de phase de la variation de la température $\Delta T_{s+f \text{ Cahill}}$, calculées selon la solution de D. G. Cahill (Eq. 2.12). Sachant que la ligne en violet représente la variation de température du substrat de silicium seul calculée selon la solution de D. G. Cahill (Eq. 2.48). D'après ces résultats (Fig. 4.14), il est clair que les résultats obtenus expérimentalement et ceux issus de la solution analytique de D. G. Cahill sont très cohérents.

Nous pouvons remarquer que la présence d'une couche mince dioxyde de silicium SiO_2 sur le substrat de Si produit une augmentation indépendante de la fréquence ΔT_f sur la composante réelle (en phase) de la variation de température ΔT_s . Aucun changement n'est observé sur la composante en quadrature de phase (imaginaire) des mesures. Les valeurs de la variation de température du film ΔT_f sont respectivement 0.1008, 0.3275 et 0.0631 $^\circ\text{C}$ pour les lignes 11, 12 et 13.

Le tableau 4.4 résume les valeurs expérimentales de la conductivité thermique du film mince dioxyde de silicium, pour les lignes métalliques 11, 12 et 13, obtenues par la méthode différentielle (Eq. 4.22).

<i>Ligne de chauffe</i>	k_{SiO_2} W/m.k	$k_{SiO_2(moy)}$ W/m.k
Ligne 11	1.144	1.137
Ligne 12	1.130	
Ligne 13	1.136	

Tableau 4.4 : Conductivité thermique du substrat du film dioxyde de silicium k_{SiO_2} obtenue expérimentalement par la méthode différentielle (pour lignes 11, 12 et 13).

La valeur de la conductivité thermique moyenne du film de SiO₂ k_{SiO_2} mesurée, déduite des relations 2.12, 4.1 et 4.4, est égale à $(1.137 \pm 7.023 \times 10^{-3})$ W/(m.K). Nous constatons que cette valeur semble être inférieure à celle du SiO₂ massif trouvée dans la littérature. Elle est de l'ordre de 1,35 à 1.4 W/(m.K) [Tai 2003, Tou 1970]. D'autres travaux ont montré que la conductivité thermique des films minces en oxyde de silicium dépend principalement, d'une part, de la technique de dépôt [Yam 2002] et d'autre part de l'épaisseur du film [Kat 2008, Zhu 2018]. Par exemple, pour des épaisseurs de 493.5 nm et 200.4 nm, les valeurs trouvées dans la littérature sont les suivantes, de 1.24 à 1.28 W/mK [Kat 2008], de 1.27 à 1.29 W/mK [Kim 1999], de 1.1 à 1.2 W/m·K [Zhu 2018], de (1.31 ± 0.11) à (1.24 ± 0.04) W/m·K [Cal 1999] et de 1.34 à 0.94 W/mK [Yam 2002].

Une autre hypothèse est que la diminution de la conductivité thermique du film en fonction de l'épaisseur pourrait être due à une couche de résistance thermique, zone interfaciale, à l'intérieur de la structure de l'échantillon SiO₂/Si entre le film dioxyde de silicium et le substrat en silicium (Fig. 4.15).

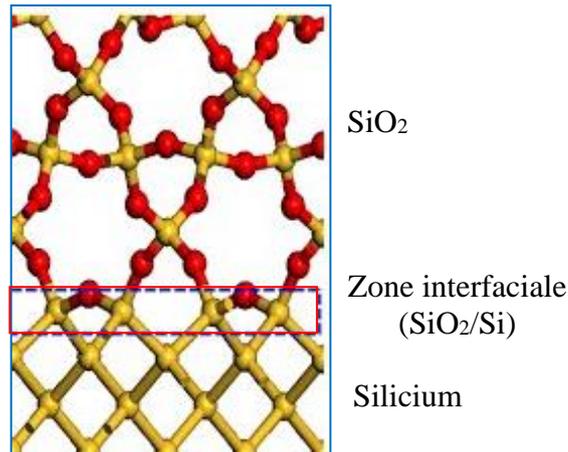


Figure 4.15 : Vue latérale d'une interface de la structure SiO₂/Si (100) [Cnl 2013, Tu 2000].

(les boules rouges et jaunes représentent respectivement les atomes d'oxygène et de silicium)

Il y a peu de modèles théoriques/structuraux susceptibles de donner une représentation claire et précise de l'interface SiO₂/Si. L'interface Si/SiO₂ est constituée d'une première zone de transition d'une à deux couches atomiques de SiO_x et d'une deuxième zone de SiO₂ perturbée par des défauts électriques (charges dans l'oxyde) sur une épaisseur d'une dizaine d'Angstrom, et une troisième zone de SiO₂ non perturbée [Vui 1984, Rai 1984, Ric 2007]. Dans le substrat de silicium chaque atome se lie avec quatre de ses voisins du fait qu'il possède 4 électrons de valence. A la zone interfaciale, l'atome de silicium n'établit des liaisons Si-Si que dans un demi-plan et il reste dans la matrice SiO₂ ce que l'on appelle des liaisons pendantes qui peuvent échanger des charges avec le substrat de silicium. Dans la zone de transition, entre le substrat de silicium et la couche d'oxyde du silicium, existe une rupture de la périodicité du réseau (un défaut), qui provoque la formation d'états électroniques différents de ceux existant en volume de Si. Ce défaut donne lieu à l'apparition de nouveaux états d'énergie situés dans la bande interdite du substrat de silicium [Mat 2018], et influe donc sur le transfert de chaleur (conductivité thermique plus faible).

En conclusion, nous constatons que la conductivité thermique du film dioxyde du silicium obtenue dans notre travail est cohérente avec les valeurs disponibles dans la littérature scientifique [Cal 1999, Yam 2002, Zhu 2018].

4.4.3 Etude d'un système bicouche : nitrure de silicium/silicium ($\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$)

Le nitrure de silicium est un matériau covalent qui possède une large bande interdite (grand gap), une température de fusion importante (1900°C) et une grande résistance mécanique. Il est également caractérisé par une faible densité, une excellente résistance aux chocs thermiques, une excellente résistance à l'usure, une excellente résistance à la corrosion (liquides et gaz), un faible coefficient de dilatation thermique, une faible mouillabilité aux métaux en fusion et aussi une bonne isolation électrique. C'est un matériau extrêmement dur, très utile pour les applications industrielles dans lesquelles l'usure physique est une considération majeure. Il est largement utilisé dans le domaine de la microélectronique, comme isolant électrique et barrière chimique dans la fabrication des circuits intégrés (transistors), afin d'isoler électriquement différentes structures ou comme masque de gravure en micro-usinage de masse. Compte tenu de ses propriétés, son utilisation comme couche de passivation pour microcircuit intégré est plus avantageuse que celle du dioxyde de silicium SiO_2 [Hug 1992]. En aérospatiale, il a été identifié comme l'un des rares matériaux céramiques monolithiques capables de résister aux chocs thermiques et aux gradients de température extrêmement élevés des moteurs - fusées (la NASA) [And 2000] . En médecine, il a également été utilisé pour les dispositifs de fusion vertébrale [Web 2012, Ara 2004].

Le nitrure de silicium obtenu par le dépôt chimique en phase vapeur à basse pression (LPCVD) contient jusqu'à 8 % d'hydrogène. Il supporte également de fortes contraintes susceptibles de fissurer les couches minces de plus de 200 nm d'épaisseur. Cependant, il présente une résistivité et une rigidité diélectrique supérieures à celles de la plupart des isolants généralement disponibles en micro fabrication [Nis 2000].

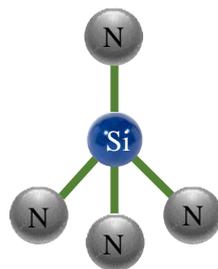


Figure 4.16 : Structure microscopique du nitrure de silicium (d'après [Boe 2000]).

La structure atomique du nitrure de silicium (Si_3N_4) est un réseau d'atomes de silicium quadruplement liés par des liaisons covalentes à des atomes d'azote, eux même triplement liés à des atomes de silicium (Figure 4.16) [Boe 2000].

4.4.3.1 Procédure de dépôt d'un film de Si_3N_4 sur la surface d'un substrat de Si

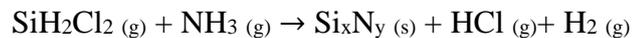
Comme décrit précédemment, avant de réaliser le dépôt de nitrure de silicium sur la surface de substrat du silicium par la technique LPCVD, il est nécessaire de nettoyer le wafer de silicium pour éliminer tous résidus (poussières, oxydation naturelle, contamination ionique,...).

Initialement, pour déposer une couche mince de nitrure de silicium (Si_3N_4) sur la surface d'un wafer de silicium, nous avons utilisé deux sources de gaz, respectivement, le dichlorosilane SiH_2Cl_2 à 20 centimètres cubes standards par minute (sccm) comme source de silicium et le gaz d'ammoniac NH_3 de 10 à 20 sccm comme source d'azote. En pratique ces gaz sont dilués dans un gaz porteur tel que l'azote ou l'hydrogène.

Le Si_3N_4 est déposé sur la surface du wafer sous des conditions atmosphériques. La température est de 800°C et la pression de 100 mTorr. Les émanations d'acide chlorhydrique HCl et d'hydrogène H_2 sous formes gazeuses sont évacuées par pompage (Fig. 4.10).

La vitesse de dépôt du film de nitrure de silicium est environ de 3 nm/min. Dans cette étude, pour obtenir une couche de Si_3N_4 d'épaisseur 470 nm cela nécessite une durée de dépôt d'environ 157 min.

La croissance d'une couche mince de Si_3N_4 sur la surface du substrat de silicium est effectuée par la réaction chimique suivante :



La figure suivante (Fig. 4.17), nous montre une photographie au microscope électronique à balayage (MEB) de l'échantillon composé d'une couche d'oxyde de silicium déposé par LPCVD à la surface de silicium.

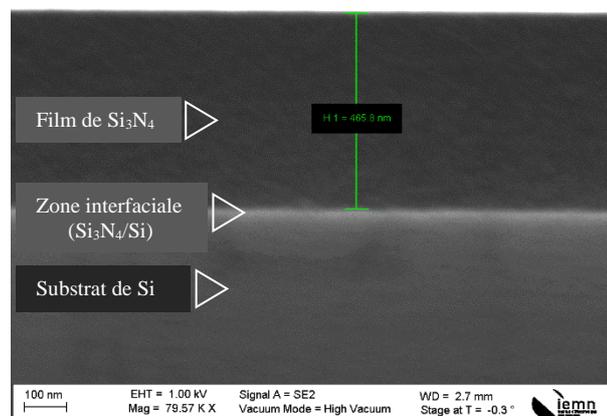


Figure 4.17 : Une image par microscope électronique à balayage (MEB) d'une structure composée d'un film de nitrure de silicium déposé sur la surface de silicium par LPCVD.

De même, plusieurs lignes métalliques ont été déposés sur l'échantillon $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$ par la technique photolithographie optique. Dans le tableau suivant (tableau 4.5), nous présentons les caractéristiques, à titre d'exemple, de trois lignes (14, 15 et 16) et les différents paramètres nécessaires à l'application de la technique 3-oméga. Les lignes de chauffe possèdent une épaisseur similaire à celle déposée sur l'échantillon précédent (SiO_2/Si), c'est-à-dire une épaisseur de métal (Au) de 410 nm et une couche d'adhésion en chrome de 10 à 20 nm.

Ligne	$2b$ (μm)	L (mm)	R_0 (Ω)	V_0 (v)	P_{rms} (W/m)	β_h ($^{\circ}\text{C}$)	T_0 ($^{\circ}\text{C}$)
Ligne 14	10	5	48.005	1.959	16.212	0.00274	27.45
Ligne 15	20	5	25.835	1.510	17.995	0.00276	27.75
Ligne 16	30	8	27.681	1.694	13.168	0.00275	27.95

Tableau 4.5 : Caractéristiques des lignes de chauffe déposées sur le $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$.

Rappelons que $2b$ et l sont les dimensions de la ligne de chauffe et que R_0 et V_0 sont respectivement la résistance et la tension initiale à la température ambiante de la salle T_0 , β_h est le coefficient de température en résistance P_{rms} est la puissance linéique utilisée pour chaque ligne métallique et T_0 représente la température ambiante de la salle.

Dans la suite de cette section, nous caractérisons simultanément la conductivité thermique du substrat de silicium et celle de la couche mince de nitrure silicium grâce à la technique 3-oméga.

4.4.3.2 Mesure de la conductivité thermique d'un film de Si_3N_4 sur un substrat de Si

Les résultats expérimentaux relevés pour les composantes en phase et en quadrature de phase de la troisième harmonique de tensions $V_{3\omega}$, pour les lignes métalliques 14, 15 et 16, sont présentés sur la figure 4.18. Rappelons que ces mesures sont effectuées dans une zone linéaire. Tel que la valeur de fréquence minimale dépend de l'épaisseur du substrat de silicium alors que la limite fréquentielle maximale dépend de la largeur de la ligne de chauffe.

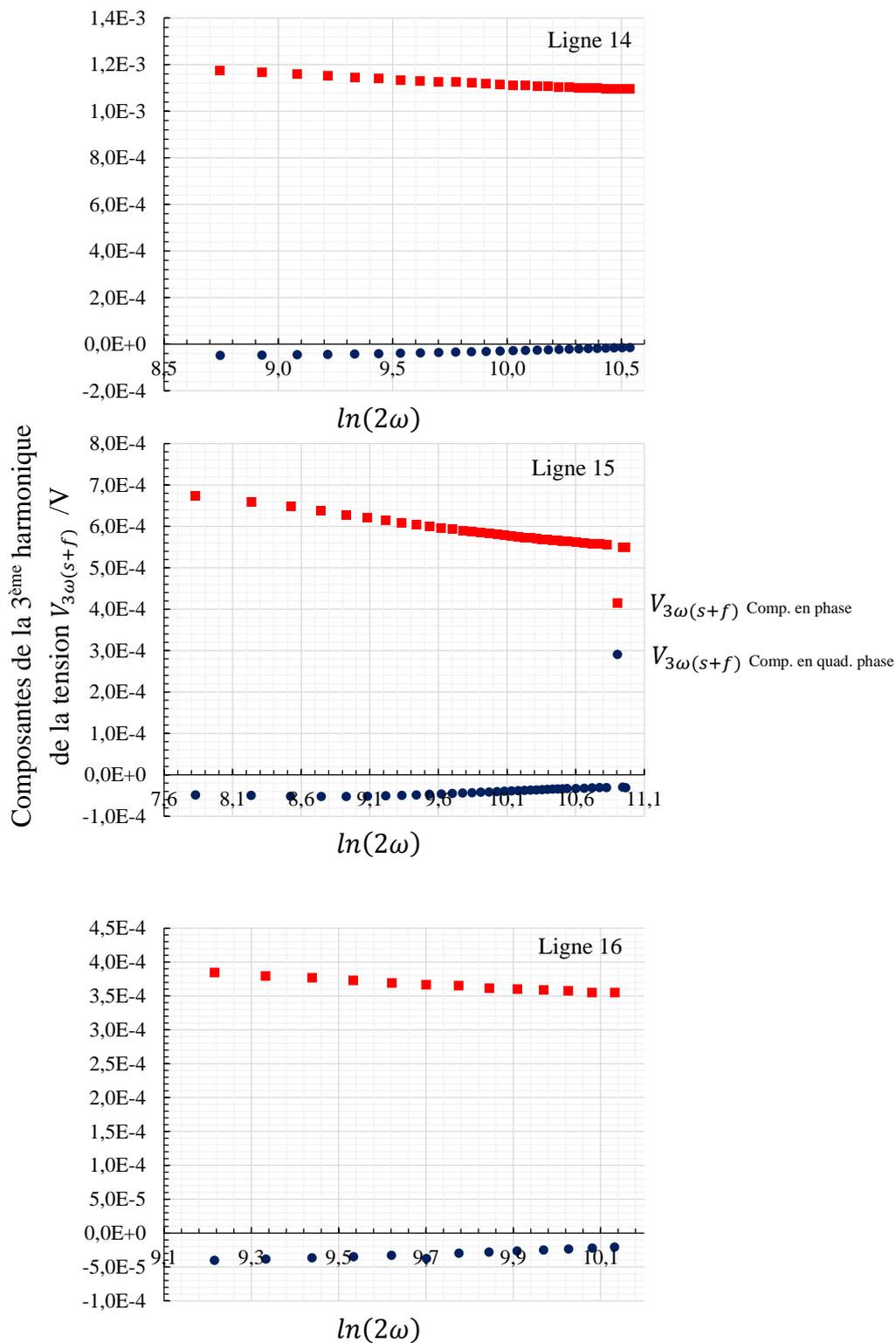


Figure 4.18 : Composantes en phase et en quadrature de phase de la troisième harmonique de la tension mesurée en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes 14, 15 et 16.

A partir de ces résultats, la valeur moyenne de la conductivité thermique du substrat de silicium k_{Si} obtenue par la méthode de la pente (Eq. 2.50) pour les lignes 14, 15 et 16 est égale à (148.08 ± 0.20) W/mK. Nous remarquons que cette valeur est en très bon accord avec la valeur donnée par le fournisseur et celle mesurée par Jacquot, (148 ± 2) W/mK [Sil 2018, Jac 2002]. La valeur moyenne de la conductivité thermique de la couche mince de nitrure de silicium ($k_{Si_3N_4}$) obtenue, comme nous l'avons déjà précisé par la méthode différentielle (Eqs. 4.1 et 4.4) de la technique 3-oméga est quant à elle, comme nous l'avons déjà précisé, égale à (2.357 ± 0.057) W/mK.

Le tableau suivant (tableau 4.6) résume les valeurs expérimentales de la conductivité thermique obtenues pour les lignes 14, 15 et 16 déposées sur la surface de l'échantillon Si_3N_4/Si .

Ligne de chauffe	k_{Si} W/m.k	$k_{Si_{moy}}$ W/m.k	$k_{Si_3N_4}$ W/m.k	$k_{Si_3N_4_{moy}}$ W/m.k
Ligne 14	148,115	148.081	2.312	2.357
Ligne 15	147,862		2.422	
Ligne 16	148,269		2.339	

Tableau 4.6 : Conductivités thermiques mesurées du substrat de silicium k_{Si} et du film de nitrure de silicium $k_{Si_3N_4}$ pour les lignes de chauffe testées.

Sur la figure ci-dessous (Fig. 4.19), nous avons confronté les résultats obtenus expérimentalement et ceux issus du modèle analytique de D. G. Cahill. Nous avons présenté les tracés des composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température ΔT_{s+f} (mesure et simulation) en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes 14, 15 et 16, ainsi que des zooms des zones de linéarité (à droite). Les courbes noires représentent les résultats de la mesure et les courbes rouges et bleues les données obtenues à partir de la solution de D. G. Cahill programmée sous Matlab®. Nous notons que la variation de la température du substrat de silicium ΔT_s , sans film, est calculée selon la solution de D. G. Cahill, partie réelle de l'Eq. 2.43, et présentée par des pointillés violets.

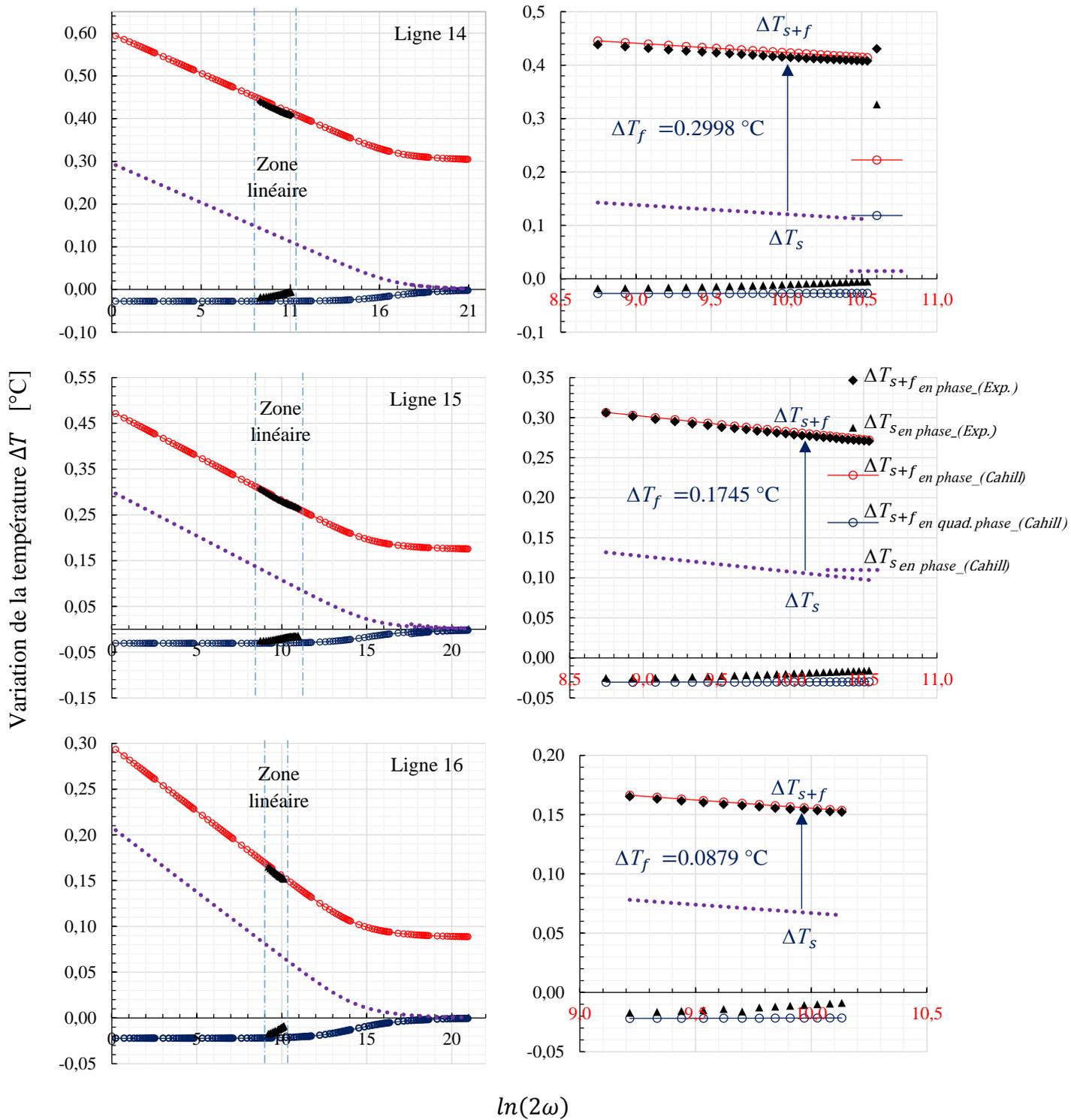


Figure 4.19 : Comparaisons des résultats obtenus expérimentalement à ceux issus du modèle de D. G. Cahill de la variation de la température $\Delta T_{(s+f)}$ (à gauche), et zooms dans la zone linéaire (à droite). (pour les lignes 14, 15 et 16)

D'après ces données nous constatons, d'une part, que les valeurs de la variation de température de la couche mince du nitrure de silicium ΔT_f obtenues (par l'équation 4.17) pour les lignes 14, 15 et 16 sont respectivement 0.2998 °C, 0.1745 °C et 0.0879 °C. D'autre part, ici encore nous remarquons que dans la zone linéaire les résultats expérimentaux et les résultats obtenus à partir de la solution analytique de D. G. Cahill sont tout à fait cohérents.

Nous remarquons que la valeur de la conductivité thermique du film de Si₃N₄ est inférieure à celle du matériau massif trouvée dans la littérature scientifique, qui se situe entre 10 et 20 W/m.K [Ham 1978, Kha 2009, Fao 2012]. Plusieurs explications peuvent justifier que la valeur de la conductivité thermique du film est plus faible que celle du matériau massif.

La première réside dans le fait que dans le cas d'un film de nitrure de silicium, le transport de chaleur est principalement gouverné par les phonons [Ham 1978]. D'après la théorie cinétique des gaz, la conductivité thermique du réseau peut être reliée aux paramètres de vitesse de propagation v et au libre parcours moyen des phonons l (vibration du réseau), selon l'expression 1.17. Il existe 3 principaux types d'interaction capables de modifier le libre parcours moyen des phonons. Ceux-ci sont les interactions de phonons avec d'autres phonons dans la structure, les chocs avec les parois (bords) de la structure et la diffusion sur des impuretés ou défauts (atomes d'impureté, lacunes, défauts d'empilement, etc.) [Zhan 1995]. Dans le cas du Si₃N₄ massif, à température ambiante, les interactions qui prédominent sont de type phonon-phonon. Par ailleurs, lorsque la dimension du matériau (Si₃N₄) devient comparable au libre parcours moyen des phonons, l'interaction des phonons avec les bords de la structure devient majoritaire [Che 2000]. Dans ce cas, les phonons subissent plus de chocs avec les parois plus qu'ils ne vont interagir avec d'autres phonons. Le mécanisme déterminant dans le transport d'énergie (chaleur) va alors correspondre à la réflexion des phonons sur les différentes surfaces (substrat de Si et la ligne de chauffe en Au). Par exemple à l'échelle nanométrique, Sultan et al. ont trouvé une conductivité thermique de l'ordre 3 à 4 W/m.K pour un film mince de 500 nm du Si₃N₄ [Sul 2009]. Zink et Hellman ont rapporté une conductivité thermique pour le Si₃N₄ variant de 0.07 à 4 W/m.K pour une épaisseur de 200 nm sur une plage de température de 3 à 300 °K [Zin 2004]. Des recherches antérieures ont montrés que si la réflexion est parfaitement spéculaire, l'énergie incidente est intégralement transmise dans la direction symétrique et que le transport de la chaleur n'est donc en aucun cas altéré. Par contre, si la réflexion est diffuse isotrope, un flux rétrograde apparaît, les propriétés de transport sont alors réduites [Lee 1997, Che 2000].

D'autres études ont montré que la solution d'oxygène dans des cristaux de Si_3N_4 génère des lacunes au niveau des sites de Si dans le réseau Si_3N_4 . Ces lacunes de Si peuvent disperser les phonons et conduire à une conductivité thermique plus faible [Zho 2015, Kit 2000, Hir 2001].

La deuxième explication réside dans le fait que les propriétés physiques des films de nitrure de silicium dépendent essentiellement du processus de dépôt [Nis 2000]. Plusieurs études ont montré cette dépendance. Par exemple, Eriksson et Von [Eri 1997, Von 2000] ont trouvé, respectivement, que la conductivité thermique d'une couche mince du nitrure de silicium fabriquée par dépôt chimique en phase vapeur plasmatisé (PECVD) est de 2.23 W/m.K et de 4.5 W/m.K. Ils ont justifié cet écart par de légères variations dans la composition du matériau qui modifient considérablement les propriétés thermiques (Fig. 4.20). Pour un film déposé en phase vapeur à basse pression (LPCVD), Ftouni et ses collaborateurs trouvent une valeur d'environ 3 W/m.K à température ambiante [Fto 2015].

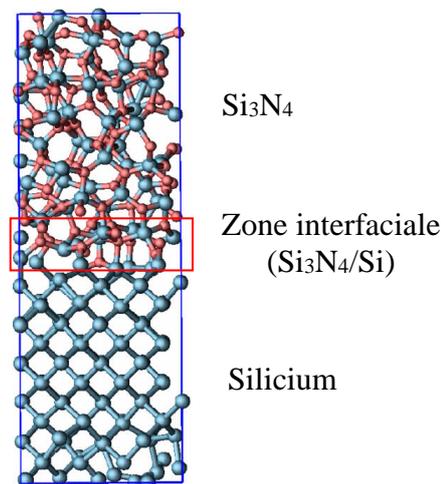


Figure 4.20 : Vue latérale d'une interface de la structure $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$ (100).
(Les boules bleues et rouges représentent respectivement les atomes de silicium et d'azote)
[Anh 2013].

Finalement, nous constatons que la valeur de la conductivité thermique du film de nitrure obtenue dans notre travail est comparable à celle trouvée dans la littérature scientifique.

4.5 SIMULATION NUMERIQUE D'UN SYSTRME BICOUCHE PAR FEM

Nous étudions dans cette section l'effet de la présence d'une couche mince isolante, de quelques centaines de nanomètre, déposée au-dessus d'un substrat.

Afin de déterminer les effets des hypothèses étudiées dans les sections précédentes, nous avons développé une autre approche de simulation numérique. Celle-ci basée sur la méthode des éléments finis (FEM), permet le traitement d'un modèle consistant en une couche mince déposée sur un substrat (SiO_2/Si et $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$). Rappelons que nous avons présenté précédemment la solution de l'équation de la chaleur pour les lignes de chauffe de 1D et 2D déposées sur un substrat. Sachant que ces solutions analytiques nécessitent plusieurs hypothèses telles que : (i) le substrat est semi-infini, (ii) la ligne de longueur infinie, (iii) l'épaisseur du film est beaucoup plus petite que la largeur de la ligne ($2b \ll d_f$) et (iv) la conductivité thermique de la couche mince est souvent inférieure à celle du substrat. Par ailleurs, nous supposons que l'élément chauffant possède une épaisseur négligeable et qu'il n'y a pas de perte ou d'échange de chaleur avec l'air (convection) pendant les mesures. Ainsi, l'effet du film mince peut être traduit par une résistance thermique unidimensionnelle (1D) dans la direction verticale, car la largeur de ligne de chauffe est grande par rapport à l'épaisseur du film.

Cette approche numérique peut être utilisée pour simuler le champ de température oscillant des échantillons sélectionnés. La structure simulée par FEM et le maillage appliqué dans le cas $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$ sont illustrés sur la figure 4.21.

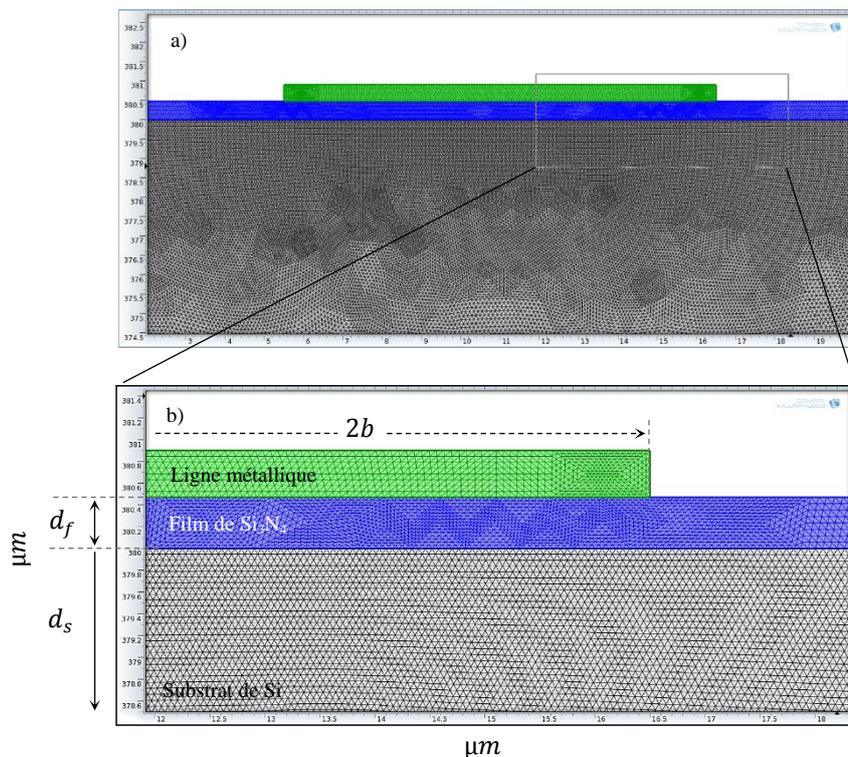


Figure 4.21 : a) Maillage 2D de la structure composée d'une ligne déposée sur l'échantillon $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$, utilisée au cours de la simulation par FEM sous Comsol pour la ligne 14 et b) Zoom de l'extrémité de la ligne de chauffe/ $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$.

Ce type de modélisation nécessite la connaissance précise des épaisseurs du substrat et de la couche mince ainsi que la définition d'un maillage suffisamment fin.

Afin de comparer les résultats de simulation par FEM à ceux issus d'une part de la solution analytique proposée par D. G. Cahill et d'autre part de l'expérimentation, nous relevons sur une large gamme fréquentielle appartenant à la zone linéaire les oscillations de température au niveau des lignes de chauffe déposées sur les surfaces des échantillons SiO₂/Si et Si₃N₄/Si. Pour rappel, les caractéristiques et les propriétés essentielles des lignes métalliques déposées sur chaque échantillon sont représentées dans les tableaux suivants (tableau 4.7 et 4.8).

Echantillon	Ligne	2b / μm	P_{rms} /W.m ⁻¹	T ₀ /°C
SiO ₂ /Si	11	10	28.836	28.00
	12	20	17.625	28.40
	13	30	5.784	28.60
Si ₃ N ₄ /Si	14	10	16.212	27.45
	15	20	17.995	27.75
	16	30	13.168	27.95

Tableau 4.7 : Caractéristiques des lignes métalliques déposées sur la surface des échantillons SiO₂/Si et Si₃N₄/Si.

Echantillon	Ligne	d_{film} /nm	C_p /Jkg ⁻¹ K ⁻¹	ρ /kg.m ⁻³	k_{film} /Wm ⁻¹ K ⁻¹
SiO ₂	11				1.144
	12	380	750	2180	1.130
	13				1.136
Si ₃ N ₄	14				2.312
	15	470	690	3180	2.422
	16				2.339

Tableau 4.8 : Caractéristiques des films de SiO₂ et de Si₃N₄.

Dans cette section, nous avons utilisé des valeurs de la conductivité thermique, de la capacité thermique spécifique, de la densité et de l'épaisseur du substrat de silicium respectivement égale à $k_s = 148$ W/mK, $C_p = 710$ JKg⁻¹K⁻¹, $\rho = 2329$ Kgm⁻³ et $d_s = 380$ μm . Concernant les

épaisseurs des lignes de chauffe déposées sur les échantillons sélectionnés, elles sont identiques et égales à 430 nm.

Pour le maillage de la structure étudiée au cours de notre simulation FEM, dans le cas de l'échantillon SiO₂/Si nous avons utilisé un nombre d'éléments triangles (mailles) compris entre 925776 et 926048, avec une qualité moyenne des éléments maillé comprise entre 0.9803 et 0.9771 (/1). Concernant le deuxième échantillon Si₃N₄/Si, le nombre d'éléments triangles (mailles) est compris entre 789456 et 789952, avec une qualité moyenne des éléments maillé comprise entre 0.9775 et 0.9789 (/1).

Généralement, la modélisation des interfaces, principalement film/substrat, est difficile du fait que la définition de l'interface est elle-même délicate. En effet, la qualité de l'interface dépend en particulier de la technique de dépôt. Ainsi, en plus de la différence de paramètres de maille entre les deux matériaux (SiO₂/Si ou Si₃N₄/Si), la réaction d'oxydation influe sur la qualité de l'interface. Deux types d'informations structurelles sont souvent obtenues sur les interfaces SiO₂/Si et Si₃N₄/Si. D'une part, des informations sur la microstructure des défauts libres à l'interface, les liaisons pendantes et d'autre part des informations sur une région de transition qui s'accompagne de la formation de défauts,

Dans ce travail, nous n'avons pas modélisé l'interface film/substrat par un modèle spécifique, mais nous avons simulé nos structures par le modèle standard, pris en charge par le logiciel Comsol Multiphysics, sans prendre en compte la notion de l'interface.

Pour chaque fréquence dans la zone linéaire et pour chaque épaisseur de film, l'amplitude et la phase de l'oscillation de la température de l'élément chauffant doivent être calculées à partir du tracé d'oscillation de la température en fonction du temps.

Les figures suivantes (Fig. 4.22 et 4.23) représentent une comparaison entre les résultats expérimentaux, ceux tirés du modèle théorique de D. G. Cahill et ceux issus de la simulation par FEM sous Comsol pour l'ensemble des lignes et pour chaque échantillon.

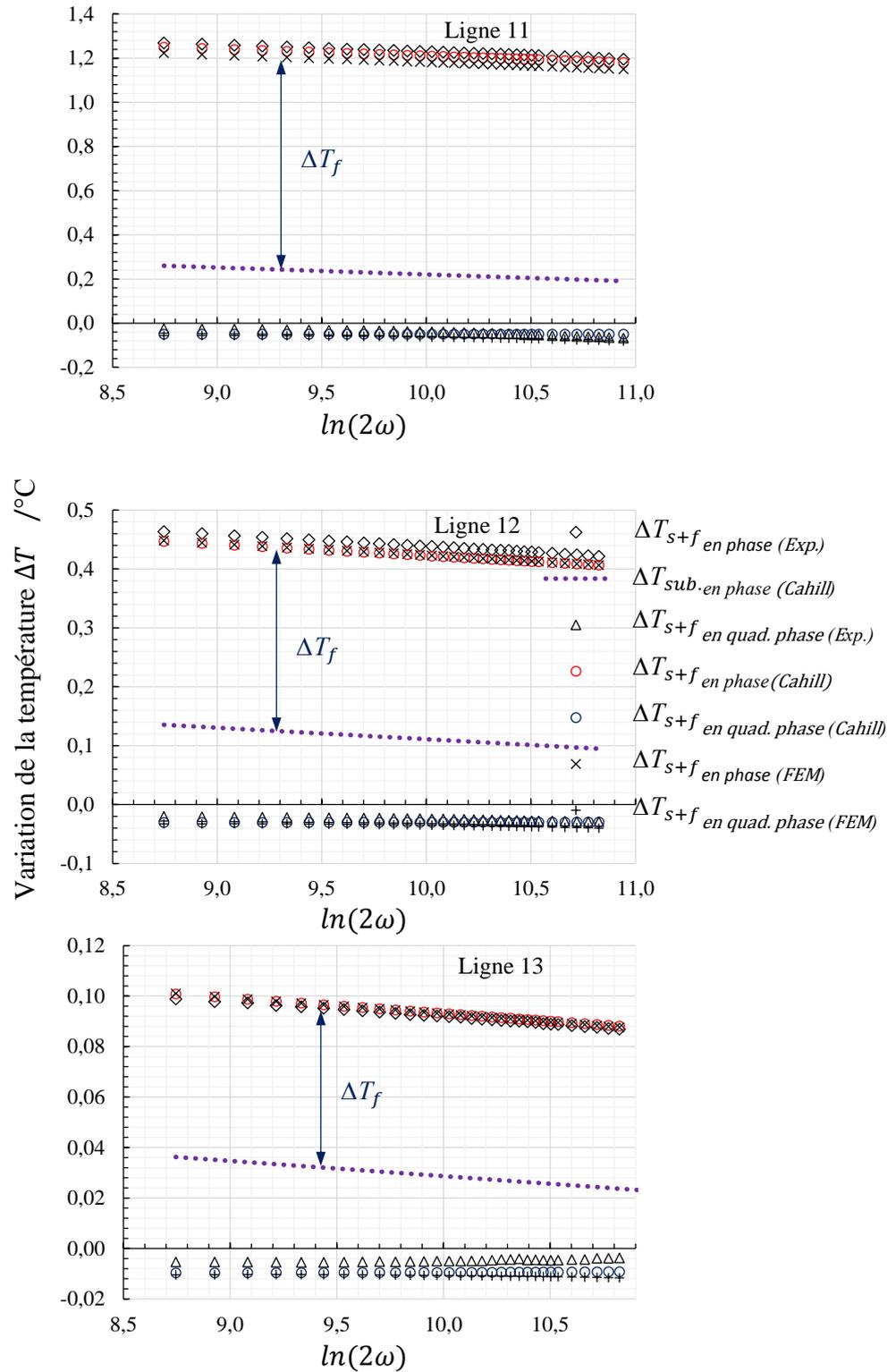


Figure 4.22 : Composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température ΔT_{s+f} en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes pour les lignes 11, 12 et 13 (SiO_2/Si).

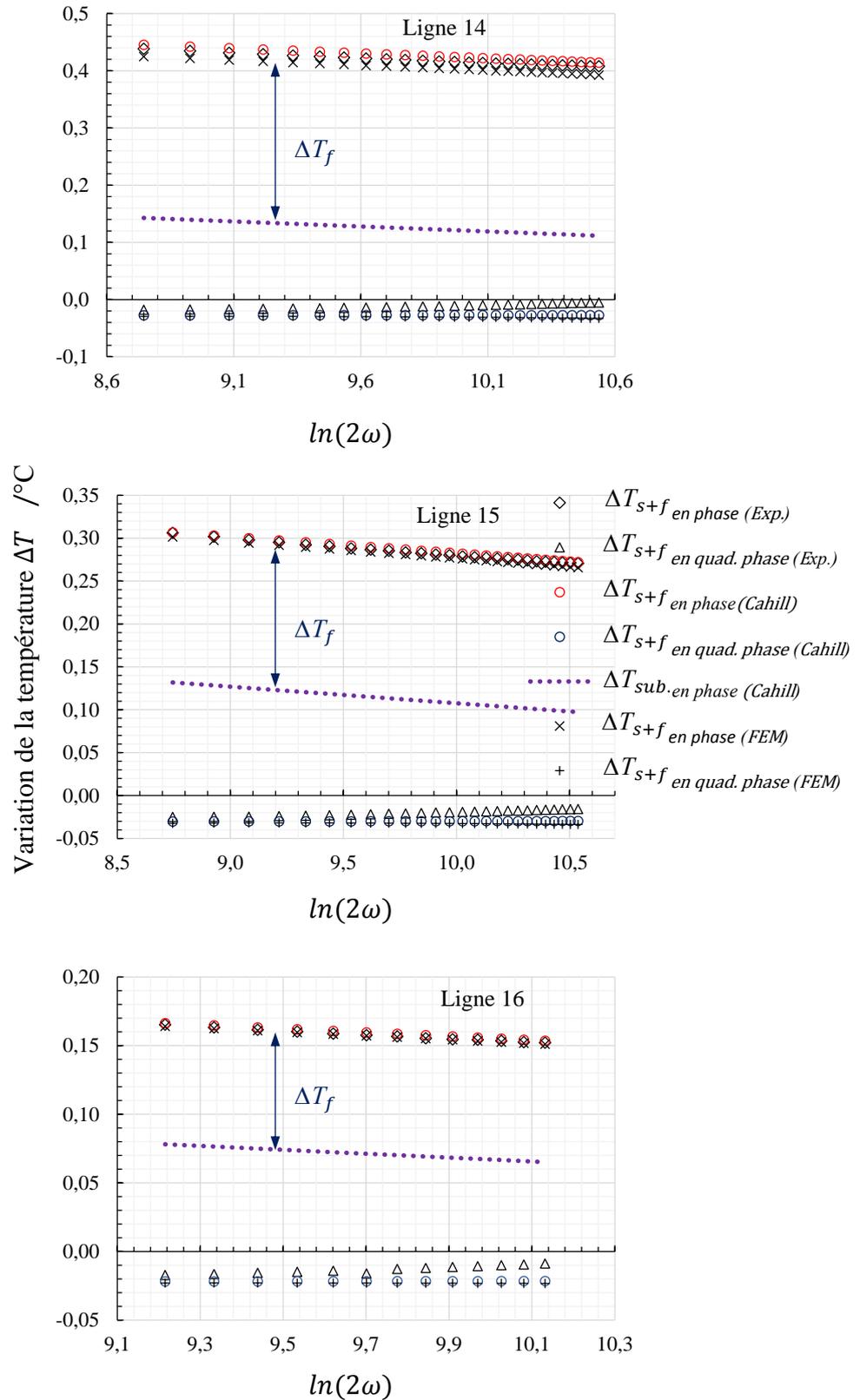


Figure 4.23 : Composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes 14, 15 et 16 ($\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$).

Les losanges et les triangles creux qui apparaissent sur les figures 4.24 et 4.25, représentent les composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de la température totale ΔT_{s+f} expérimentales. Les cercles en rouge et bleu creux représentent respectivement les composantes en phase et en quadrature de phase de la variation de température trouvées par le modèle analytique de D. G. Cahill. Les courbes en (×) et en (+) noires représentent les résultats de la variation de la température obtenus par simulation FEM sous Comsol. Sachant que la courbe en ligne discontinue (violet) représente le tracé de la variation de la température du substrat seul obtenue par le modèle de D. G. Cahill.

Ces figures (Fig. 4.22 et Fig. 4.23) montrent, d'une part, une cohérence entre les tracés des composantes en phase et en quadrature de phase des oscillations de température obtenues par les différentes méthodes pour l'ensemble des lignes (11, 12, 13, 14, 15 et 16) déposées sur les échantillons sélectionnés. D'autre part, elles montrent l'existence d'un très faible décalage entre les courbes obtenues expérimentalement et celles calculées par FEM. Celui-ci s'explique par le fait que dans notre modèle nous avons négligé la résistance thermique de contact entre les différents matériaux (ligne/film/substrat) de chaque échantillon. Dans la suite, nous allons voir comment estimer cette résistance thermique.

Par définition, la résistance thermique R_{th} (en m^2K/W) d'un milieu de surface A traversé par une source de chaleur (ligne de chauffe) de puissance P_{rms} est défini comme suit :

$$R_{th} = \frac{A}{P_{rms}} \Delta T_{AC} \quad (4.4)$$

où A est la surface de contact entre la ligne de chauffe et la surface de l'échantillon et ΔT_{AC} est la variation de la température.

L'estimation de la valeur de la résistance de contact thermique est réalisée pour chaque échantillon (ligne/film/substrat). Elle est en fait déduite par la mise en correspondance des tracés des résultats de la partie en phase de la variation de la température ΔT_{s+f} expérimentale avec ceux des simulations numériques, réalisées par FEM sous Comsol (dans la zone linéaire). Nous trouvons, respectivement, une valeur moyenne de la résistance thermique de contact de $8.866 \times 10^{-9} m^2K/W$ et de $7.929 \times 10^{-9} m^2K/W$ pour le SiO_2/Si et le Si_3N_4/Si .

Les figures suivantes (Fig. 4.24 et 4.25) représentent une capture d'écran typique du profil de température ainsi que les lignes isothermiques dans les échantillons étudiés (SiO_2/Si et Si_3N_4/Si), en 2D, obtenus par la simulation FEM dans le cas des lignes de chauffe 11 et 14 pour une fréquence thermique $f = 1200$ Hz.

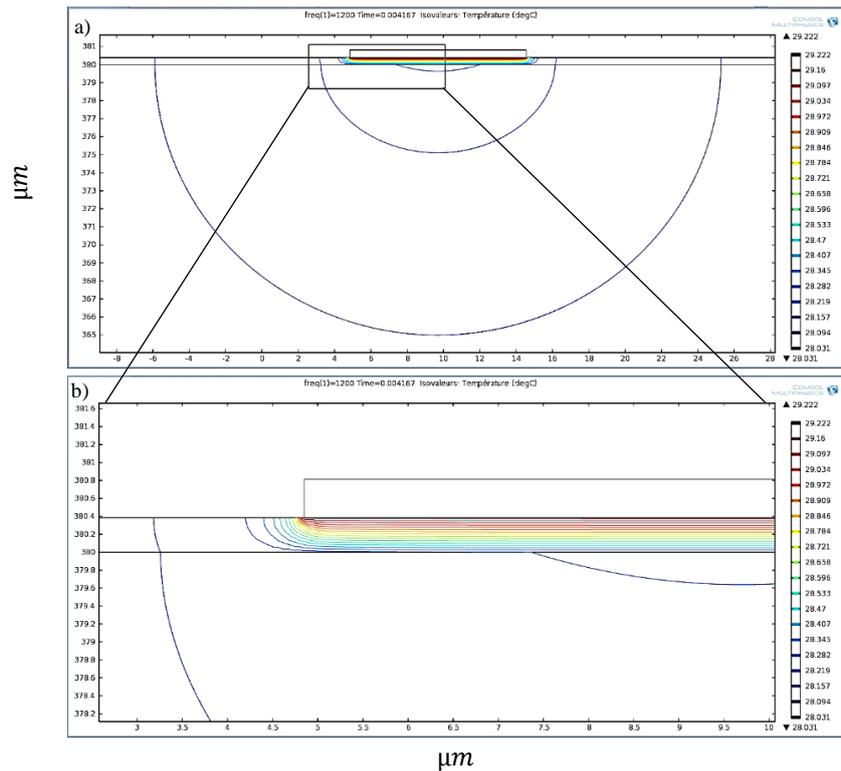


Figure 4.24 : a) Profil de température obtenu par la simulation FEM en 2D sous Comsol pour la ligne 11 déposée sur l'échantillon SiO_2/Si et b) Zoom de l'extrémité de la partie ligne de chauffe/ SiO_2/Si . (pour une fréquence $f = 1200$ Hz)

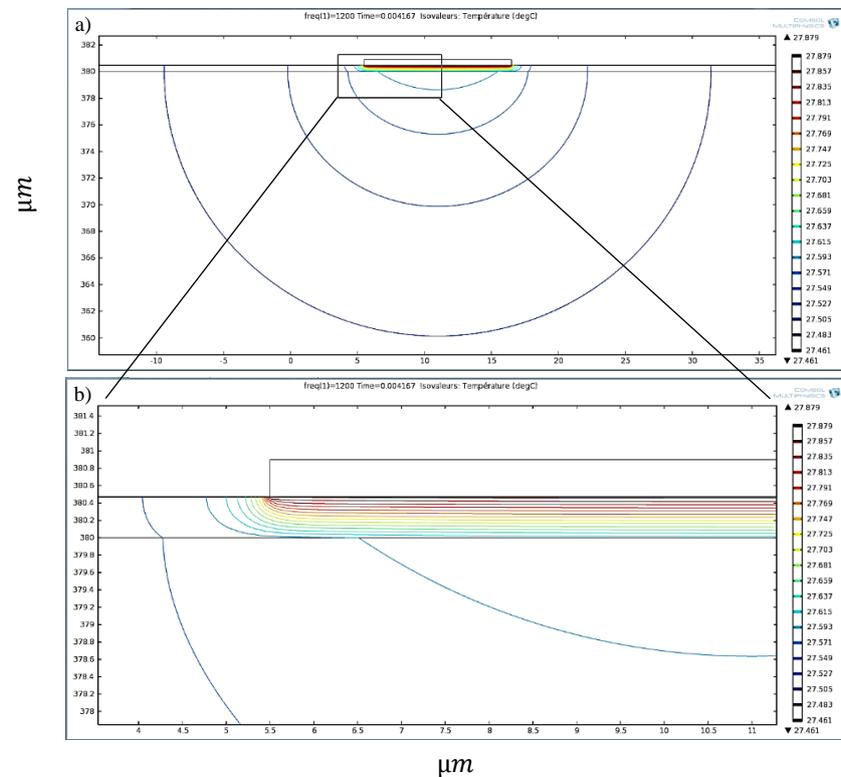


Figure 4.25 : a) Profil de température obtenu par la simulation FEM en 2D sous Comsol pour la ligne 14 déposée sur l'échantillon $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$ et b) Zoom de l'extrémité de la partie ligne de chauffe/ $\text{Si}_3\text{N}_4/\text{Si}$. (pour une fréquence $f = 1200$ Hz)

Sur ces figures nous notons le comportement de l'onde thermique qui se diffuse dans les échantillons, à partir de l'élément de chauffe, en fonction de la fréquence thermique. Il est clair que la plu part des lignes isothermiques du flux de chaleur sont situées de façon intense dans le plan perpendiculaire, du film, au substrat. Ceci confirme l'hypothèse motionnée dans la première partie de ce chapitre qui dit que : « si l'épaisseur du film d_f est très fine par rapport à la largeur $2b$ de la ligne, dans ce cas, le flux de chaleur qui traverse le film est principalement transversal, tandis que le flux de chaleur longitudinal à l'intérieur du film peut être négligeable ».

Ces résultats montrent la robustesse de notre modèle de simulation par FEM dans le cas d'un système composé d'une couche mince déposée sur un substrat.

Dans le chapitre suivant nous examinons l'influence de l'épaisseur du film sur la conductivité thermique et celle des résistances interfaciales dans un système bicouche (film/substrat).

4.6 CONCLUSION

Ce chapitre, principalement dédié à la méthode différentielle de la technique 3-oméga, démontre la possibilité de mesurer les conductivités thermiques perpendiculaires au plan des couches minces déposées un substrat. Néanmoins, certaines conditions doivent être remplies pour réaliser cette mesure. Ainsi, il est nécessaire que d'une part l'épaisseur du film déposé soit bien inférieure à la largeur de la ligne métallique (ligne de chauffe) et d'autre part que la conductivité thermique du film mince soit inférieure à celle du substrat. Sous ces conditions, un flux de chaleur 1D est produit dans la direction perpendiculaire à l'interface ligne de chauffe/film. Notons que, l'insertion d'un film entre la ligne de chauffe et le substrat a une influence sur la variation de la température par rapport à la variation de la température d'un substrat seul.

Dans un premier temps, la technique différentielle a été validée sur deux échantillons. Ceux-ci ont été obtenus à partir du dépôt par LPCVD d'un film mince dioxyde de silicium (SiO_2) sur un substrat silicium pour l'un et d'un film de nitrure de silicium (Si_3N_4) sur un substrat de silicium pour l'autre. Le choix de ces deux diélectriques (SiO_2 et Si_3N_4) est motivé par leur large utilisation pour l'isolation thermique et électrique dans nombreuses applications (micro-électronique, photovoltaïque, MEMS, ...). Les conductivités thermiques des couches minces sont déduites d'une mesure comparative des structures 'substrat + film' et 'substrat

seul'. L'application de la méthode a conclu à des conductivités thermiques moyennes pour le substrat de silicium de 146.64 W/m.K et 148.09 W/m.K respectivement. Par ailleurs, les conductivités thermiques mesurées des films minces de SiO₂ et de Si₃N₄ sont respectivement de 1.14 W/m.K et 2.36 W/m.K. Ces dernières très inférieures à celles des matériaux massifs et elles sont comparables à certaines données publiées dans la littérature scientifique.

Dans un second temps, une simulation numérique utilisant la méthode des éléments finis a également été effectuée pour approcher au mieux la structure réelle échantillons. Les résultats obtenus ont montré un bon accord entre les résultats de la simulation numérique par FEM, de la mesure et par application du modèle analytique de D. G. Cahill pour les deux échantillons sélectionnés. Finalement, nous avons pu estimer la résistance thermique de contact pour chaque échantillon (ligne/film/substrat) par le calcul de la différence entre les tracés des résultats de la partie en phase de la variation de la température ΔT_{s+f} expérimentale et ceux de la simulation FEM sous Comsol (dans la zone linéaire). Les résistances thermiques de contact obtenues sont respectivement 8.866×10^{-9} m²K/W et 7.929×10^{-9} m²K/W pour le SiO₂/Si et le Si₃N₄/Si.

A l'issue de ce chapitre nous pouvons conclure que la méthode 3-oméga est un outil efficace non seulement pour les matériaux solides massifs mais aussi pour ceux en couches minces.

4.7 BIBLIOGRAPHIE

- [Abr 1970] M. Abramowitz and I. Stegun
Handbook of Mathematical Functions,
Dover Publications Inc, ninth edition, (1970).
- [And 2000] Andrew J. Eckel,
Silicon Nitride Rocket Thrusters Test Fired Successfully [archive]
<http://www.grc.nasa.gov/> [archive] sur <https://web.archive.org/> [archive], NASA
sur la Wayback Machine, 21 avril (2000).
- [Anh 2013] T. Anh Pham, T. Li, H.V. Nguyen, S. Shankar, F. Gygi, and G. Galli,
Band offsets and dielectric properties of the amorphous Si₃N₄/Si(100) interface: A
first-principles study,
Appl. Phys. Lett. Vol. 102: pp. 241603, (2013); <https://doi.org/10.1063/1.4811481>
- [Ara 2004] A. Arafat, K. Schroën, Louis C. P. M. de Smet, Ernst J. R. Sudhölter et Han
Zuilhof, Tailor-Made Functionalization of Silicon Nitride Surfaces,
Journal of the American Chemical Society, Vol. 126 (28): pp. 8600-8601, (2004).
- [Boe 2000] C. Boehme
Hydrogen Loss Mechanism of Ammonia Rich Remote Plasma Enhanced Chemical
Vapor Deposited Silicon Nitride,
Thèse de doctorat, Université de Caroline du Nord – USA, (2000).
- [Bog 2017] M. Bogner, G. Benstetter, Y. Q. Fu
Cross- and in-plane thermal conductivity of AlN thin films measured
using differential 3-omega method,
Surface and Coatings Technology, Vol. 320: pp. 91-96, (2017).
<http://dx.doi.org/10.1016/j.surfcoat.2017.01.100>
- [Bor 2001] T. Borca-Tasciuc, A. R. Kumar, and G. Chen
Data reduction in the 3 ω method for thin-film thermal conductivity determination,
Review of scientific instrument, Vol. 72(4): pp. 2139-2147, (2001).
- [Bor 2005] D. A. Borca-Tasciuc and G. Chen
Anisotropic thermal properties of nanochanneled alumina templates
Journal of Applied Physics Vol. 97: pp. 084303, (2005).
- [Cah 1987] D. G. Cahill, R. O. Pohl
Thermal conductivity of amorphous solids above the plateau,
Physical Review B, Vol. 35 (8): pp. 4067-73, (1987).
- [Cah 1990] D.G. Cahill
Thermal conductivity measurement from 30 to 750 K : the 3 ω method,
Review of Scientific Instrument. Vol. 61(2): pp. 802-808, (1990).
- [Cal 1999] S. Callard, G. Tallarida, A. Borghesi & L. Zanotti,
Thermal conductivity of SiO₂ films by scanning thermal microscopy.
Journal of non-crystalline solids Vol. 245: pp. 203–209, (1999).
- [Che 1996] G. Chen
Heat Transfer in Micro- and Nanoscale Photonic Devices
Annu. Rev. Heat Trans. Vol. 7: pp.1-57, (1996).

- [Che 1999] G. Chen, T. Borca-Tasciuc, B. Yang, D. Song, W. L. Liu, T. Zeng and D. Achimov Heat Conduction Mechanisms and Phonon Engineering in Super-lattice Structures Therm. Sci. Eng. Vol. 7: pp. 43-51, (1999).
- [Che 2000] G. Chen, T. Zeng, T. Borca-Tasciuc, and D. Song Phonon Engineering in Nanostructures for Solid-State Energy Conversion Mater. Sci. Eng. A 292: pp. 155-161, (2000).
- [Che 2000] G. Chen, Phonon heat conduction in nanostructures', International Journal of Thermal Sciences, Vol. 39: pp. 471-480, (2000).
- [Cnl 2013] <http://cnl.kaist.ac.kr/publication/research>
- [Den 2021] H.-X. Deng, R. Cao & S.-H. Wei, First-principles study of defect control in thin-film solar cell materials, Science China Physics, Mechanics & Astronomy, Vol. 64: 237301, (2021).
- [Eri 1997] P. Eriksson, J. Y. Andersson, and G. Stemme; Thermal characterization of surface-micromachined silicon nitride membranes for thermal infrared detectors Journal of Microelectromechanical Systems, Vol. 6(1): pp. 55-61, (1997).
- [Fan 2006] X.A. Fan, J.Y. Yang, W. Zhu, H.S. Yun, R.G. Chen, S.Q. Bao and X.K. Daun Microstructure and thermoelectric properties of n-type Bi₂Te_{2.85}Se_{0.15} prepared by mechanical alloying and plasma activated sintering, Journal of alloys and compounds, Vol. 420: pp 256-259, (2006).
- [Fao 2012] D. de Faoite, D. J. Browne, F. R. Chang-Diaz, and K. T. Stanton, A review of the processing, composition, and temperature dependent mechanical and thermal properties of dielectric technical ceramic, J. Mater. Sci. Vol. 47(10): pp. 4211-4235, (2012).
- [Fra 1993] R. Frank, V. Drach, J. Fricke Determination of thermal conductivity and specific heat by a combined 3ω /decay technique, Review of Scientific Instruments, Vol. 64 (3): pp. 760-5,(1993); <https://doi.org/10.1063/1.1144156>
- [Fto 2015] H. Ftouni, C. Blanc, D. Tainoff, The thermal conductivity of silicon nitride membranes is not sensitive to stress. Phys. Rev. Vol. B 92: pp. 125439, (2015). [Doi: 10.1103/PhysRevB.92.125439](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.92.125439)
- [Gau 2012] S. Gauthier Caractérisation thermique de la matière par la méthode 3ω thèse de doctorat, Université Montpellier II –France, (2012).
- [Goo 1999] K. Goodson and Y. Ju Heat Conduction in Novel Electronic Films Annu. Rev. Mater. Sci. Vol. 29: pp. 261-293, (1999).

- [Gri 1994] A. J. Griffin, F R Brotzen, and P J Loos
The effective transverse thermal conductivity of amorphous Si₃N₄ thin films.
Journal of Applied Physics Vol. 76: pp. 4007,
(1994). <https://doi.org/10.1063/1.357347J>.
- [Gup 2020] N. Gupta, S. Dutta, A. Pandey, S.R.K. Vanjari & D. Kaur,
Effect of growth and residual stress in AlN (0002) thin films on MEMS accelerometer design,
J. of Materials Science: Materials in Electronics, Vol. 31: pp.17281–17290, (2020).
- [Ham 1978] S. Hampshire, H. K. Park, D. P. Thompson, and K. H. Jack,
 α' -sialon ceramics
Nature, Vol. 274 : pp. 880–882, (1978).
- [Hir 2001] K. Hirao, K. Watari, H. Hayashi, M. Kitayama,
High thermal conductivity silicon nitride ceramic.
MRS Bull., Vol. 26 (6): pp. 451-455, (2001).
- [Hug 1992] Hugh O. Pierson,
Handbook of chemical vapor deposition (CVD),
William Andrew, pp. 282, (1992).
- [Jac 2003] A. Jacquot
Ingénierie des Matériaux et des Micro-générateurs Thermoélectriques Planaires.
Thèse de doctorat, Institut national polytechnique de lorraine, (2003).
- [Jai 2008] Jain and K.E. Goodson,
Measurement of the Thermal Conductivity and Heat Capacity of Freestanding Shape Memory Thin Films Using the 3ω Method
Journal of Heat Transfer, Vol. 130 (10): pp.102402 (7), (2008).
<https://doi.org/10.1115/1.2945904>
- [Jan 2021] A. Jangjoy, H. Bahador & H. Heidarzadeh,
A Comparative Study of a Novel Anti-reflective Layer to Improve the Performance of a Thin-Film GaAs Solar Cell by Embedding Plasmonic Nanoparticles,
Plasmonics, Vol. 16: pp. 395–401, (2021).
- [Joo 2021] Y.-H. Joo, D. Nandi, R.Ramesh, Y. Jang, J.-S. Bae, T. Cheon, S.-H. Kim,
Atomic layer deposited Mo₂N thin films using Mo(CO)₆ and NH₃ plasma as a Cu diffusion barrier,
Journal of Alloys and Compounds, Vol. 858: pp. 158314, (2021).
<https://doi.org/10.1016/j.jallcom.2020.158314>
- [Kat 1994] M. Katiyar, D. G Cahill and J. R. Abelson
Thermal conductivity of a-si:h thin films,
Phys. Rev. B, Vol. 50: pp. 6077-6081, (1994).
- [Kat 2005] R. Kato, I. Hatta,
Thermal Conductivity Measurement of Thermally-Oxidized SiO₂ Films on a Silicon Wafer Using a Thermo-Reflectance Technique.
International Journal of Thermophysics Vol. 26: pp. 179–190, (2005).

- [Kat 2008] R. Kato · I. Hatta
Thermal Conductivity and Interfacial Thermal Resistance: Measurements of Thermally Oxidized SiO₂ Films on a Silicon Wafer Using a Thermo-Reflectance Technique,
Int J Thermophys, Vol. 29: pp. 2062–2071, (2008).
[DOI 10.1007/s10765-008-0536-4](https://doi.org/10.1007/s10765-008-0536-4)
- [Kha 2009] I. Khan, M. Zulfequar.
Effect of tellurium on electrical and structural properties of sintered silicon nitride ceramics,
Physica B: Condensed Matter, Vol. 404 (16): pp. 2395-2400, (2009).
- [Kim 1999] J. H. Kim, A. Feldman, and D. Novotny
Application of the three omega thermal conductivity measurement method to a film on a substrate of finite thickness
Journal of Applied Physics, Vol. 86 (7): pp. 3959, (1999).
<https://doi.org/10.1063/1.371314>
- [Kit 2000] M. Kitayama, K. Hirao, A. Tsuge, K. Watari, M. Toriyama, S. Kanzaki,
Thermal conductivity of β -Si₃N₄: II, Effect of lattice oxygen.
J. Am. Ceram. Soc., Vol. 83(8): pp. 1985-1992, (2000).
- [Kob 2020] A. Kobayashi, R. Konagaya, S. Tanaka, M. Takashiri,
Optimized structure of tubular thermoelectric generators using n-type Bi₂Te₃ and p-type Sb₂Te₃ thin films on flexible substrate for energy harvesting,
Sensors and Actuators A: Physical, Vol. 313: pp. 112199, (2020).
<https://doi.org/10.1016/j.sna.2020.112199>
- [Kon 2008] D. De Koninck
Thermal conductivity measurements using the 3-omega technique: Application to power harvesting Microsystems,
Master's thesis, McGill University, pp. 13, 31, 38, 40. (2008).
- [Lee 1997] S. M. Lee, D. G. Cahill, R. Venkatasubramanian
Thermal conductivity of Si-Ge superlattices,
Applied Physics Letters, Vol. 70 (22): pp. 2957-2959, (1997).
- [Lee 1997] S.M. Lee, and D.G. Cahill,
Heat transport in thin dielectric films
J. Appl. Phys. Vol. 81(6): pp. 2590, (1997). <https://doi.org/10.1063/1.363923>
- [Liu 2001] W. L. Liu, T. Borca-Tasciuc, G. Chen, J. L. Liu and K. L. Wang
Anisotropic Thermal Conductivity of Ge Quantum-Dot and Symmetrically Strained Si/Ge Superlattices,
Journal of nanoscience and nanotechnology Vol. 1(1): pp. 39-42, (2001).
[DOI: 10.1166/jnn.2001.013](https://doi.org/10.1166/jnn.2001.013)
- [Mai 2009] F. Mailly, N. Dumas, N. Pous, L. Latorre, O. Garel, E. Martincic, F. Verjus, C. Pellet, E. Dufour-Gergam, and P. Nouet,
Pirani pressure sensor for smart wafer level packaging,
Sensors and actuators A: Physical, Vol.156: pp. 201-207, (2009).
- [Mat 2018] H. Mathieu,

- Physiques des semi-conducteurs et des composants électroniques,
Livre : 1ère - 6ème édition (2001-2018).
- [Meb 2018] <https://www.techniques-ingenieur.fr/base-documentaire/mesures-analyses-th1/techniques-d-analyse-par-imagerie-42387210/microscopie-electronique-a-balayage-p866>
- [Moo 1996] I.K. MOON, Y. H. JEONG, and S. I. KWUN
The three omega technique for measuring dynamic specific heat and thermal conductivity of a liquid or solid,
Review of Scientific Instruments, Vol. 67: pp 29-35, (1996).
- [Nis 2000] Yoshio Nishi et Robert Doering,
Handbook of semiconductor manufacturing technology,
CRC Press, pp. 324–325, (2000). (ISBN 0-8247-8783-8)
- [Nis 2000] Y. Nishi et R. Doering,
Handbook of semiconductor manufacturing technology,
CRC Press, pp. 324–325. (2000).
- [Phi 1985] H.R. Philipp
Silicon nitride (Si₃N₄) (Noncrystalline).
In: Handbook of optical constants of solids, Vol. 1, Ed. E.D. PALIK. New-York, USA: Academic Press: pp. 771-774, (1985).
- [Rai 1984] C. Raisin, E. Vieujot-Testemale, R. Bonny, L. Lassabatère,
Etude des propriétés électriques et physico-chimiques des couches minces de SiO₂ en cours de croissance
Revue Phys. Appl. Vol. 19: pp. 997-1003, (1984).
<http://dx.doi.org/10.1051/rphysap:019840019012099700>
- [Rau 2012] S. Rausch, D. Rauh, C. Deibel, S. Vidi, H. P. Ebert
Thin film thermal conductivity measurement on semi conducting polymer material using the 3 ω technique,
Int. Journal thermophys, Vol. 34: pp. 820-830, (2013).
- [Ric 2007] N. Richard, A. Estève, M. D. Rouhani –
Diffusion of oxygen atom in the topmost layer of the Si(100) surface: Structures and oxidation kinetics – A. Hémercyck,
Surface Science, Vol. 601 : pp. 2339, (2007) - [doi : 10.1016/j.susc.2007.03.038](https://doi.org/10.1016/j.susc.2007.03.038)
- [Sac 2011] A. Saci
Transport thermique dans les milieu nao-structurés (GaAs)_n/(AlAs)_n,
Thèse de doctorat, Université Pierre et Marie Curie- Paris, (2011).
- [Sil 2018] Société Sil'tronix Silicon Technologies (France)
<https://www.sil-tronix-st.com/fr>
- [Ste 1983] G. R. Steward
Measurement of low-temperature specific heat,
Review of scientific instrument, Vol. 58(1): pp. 1-11, (1983).
- [Sul 2009] R. Sultana, A. D. Avery, G. Stiehl, and B. L. Zinkb
Thermal conductivity of micromachined low-stress silicon-nitride beams from 77 to 325 K,
Journal of Applied Physics Vol. 105(4), pp. 043501, (2009).
doi.org/10.1063/1.3078025

- [Sze 1988] S.M. Sze,
VLSI Technology,
Book : 2nd edition, McGraw-Hill International Editions, (1988)
- [Tai 2003] J. Taine and J-P. Petit.
Transferts thermiques : Introduction aux sciences des transferts thermique.
Book : DUNOD Edition, (2003).
- [Til 2015] M. Tilli, T. Motooka, V. Airaksinen, S. Franssila, M. Paulasto-Kröckel and V. Lindroos.
Handbook of Silicon Based MEMS Materials and Technologies (Second Edition),
Chapter 6 : Thin Films on Silicon, Micro and Nano Technologies. pp. 124-205.
(2015) <https://doi.org/10.1016/B978-0-323-29965-7.00006-3>
- [Tou 1970] Y. S. Touloukian, R. W. Powell, C. Y. Ho, & P. G. Klemens,
Thermal conductivity. Nonmetallic solids.
Thermal Conductivity (1970).
- [Tri 2004] T. Tritt,
Thermal conductivity: theory, properties, and applications
Book: Kluwer Academic / Plenum Publishers, New York, (2004).
ISBN 0-306-48327-0
- [Tru 2012] N. TrungNguyen,
Micromixers : Fundamentals, Design and Fabrication, a volume in Micro and Nano
Technologies
Book second edition, Chapter 4 : Fabrication technologies, pp. 113-161, (2012).
<https://doi.org/10.1016/C2011-0-69734-0>
- [Tu 1998] Y. Tu, J. Tersoff, G. Grinstein and D. Vanderbilt,
Structure and Energetics of the Interface between Si and Amorphous SiO₂
Phys. Rev. Lett. Vol.81 (22): pp. 4899, (1998).
<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.81.4899>
- [Tu 2000] Y. Tu and J. Tersoff,
Structure and Energetics of the Si- SiO₂ Interface
Phys. Rev. Lett. Vol. 84 (19): pp. 4393, (2000).
DOI:<https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.84.4393>
- [Von 2000] M. Von Arx, O. Paul, and H. Baltes;
Process-dependent thin-film thermal conductivities for thermal CMOS MEMS
Journal of Mems, Vol 9(1): pp. 136-145, (2000).
- [Vui 1984] D. Vuillaume
Caractérisation de défauts à l'interface silicium-oxyde de silicium dans les structures
M.O.S. par des méthodes spectroscopiques
Thèse de doctorat, Université Lille1 - Sciences et Technologies (France), (1984).
<http://ori-nuxeo.univ-lille1.fr/nuxeo/site/esupver...>
- [Wan 1996] WANG C.M., PAN X., RUHLE M., RILEY F. L. and MITOMO M.
Silicon nitride crystal structure and observations of lattice defects.
Journal of Materials Science, Vol. 31(20): pp. 5281, (1996).

- [Wan 2007] Z. L. Wang, D. W. Tang and X. H. Zheng
Simultaneous determination of thermal conductivity of thin film and substrate by extending 3ω -method to wide frequency range,
Applied Surface Science. Vol. 253: pp. 9024-9029, (2007).
- [Web 2012] T. J. Webster, A. A. Patel, M. N. Rahaman et B. Sonny Bal, « Anti-infective and osteointegration properties of silicon nitride, poly(ether ether ketone), and titanium implants », *Acta Biomaterialia*, Vol. 8(12): pp. 4447-4454, (2012).
- [Wie 2013] R. A. Wiedle
Thermal conductivity measurements of amorphous thin films on silicon via the 3ω method,
PhD. Thesis: Oregon State University - University Honors College (USA), (2013).
- [Xu 2008] Y. Xu, M. Goto, Y. Tanaka, M. Tanaka, M. Shimono and M. Yamazaki
Interfacial thermal resistance of Au/SiO₂ produced by sputtering method,
High temperatures-High Pressures, Vol. 37: pp. 31-39, (2008).
- [Yam 2002] T. Yamane, N. Nagai, S. Katayama, and M. Todoki
Measurement of thermal conductivity of silicon dioxide thin films using a 3ω method
Journal of Applied Physics, Vol. 91(12): pp. 9772, (2002).
<https://doi.org/10.1063/1.1481958>
- [Zha 1995] X. Zhang and C.P. Grigoropoulos,
Thermal conductivity and diffusivity measurements in the sub- μm and sub- μs scale on centimeter area samples using a microthermocouple.
Rev. Sci. Instrum. Vol. 66(12): pp. 1115, (1995). <https://doi.org/10.1063/1.1147576>
- [Zho 2015] Y. Zhou, H. Hyuga, D. Kusano, Y. Yoshizawa, T. Ohji and K. Hirao,
Development of high-thermal-conductivity silicon nitride ceramics,
Journal of Asian Ceramic Societies, Vol. 3(3): pp. 221-229, (2015).
<https://doi.org/10.1016/j.jascer.2015.03.003>
- [Zhu 2018] W. Zhu, Guang Zheng, Sen Cao & Hu He,
Thermal conductivity of amorphous SiO₂ thin film: A molecular dynamics study,
Scientific Reports Vol. 8: pp. 10537, (2018). [DOI:10.1038/s41598-018-28925-6](https://doi.org/10.1038/s41598-018-28925-6)
- [Zin 2004] B.L. Zink F. Hellman,
Specific heat and thermal conductivity of low-stress amorphous Si-N membranes,
Solid State Communications. Vol. 129(3): pp. 199-204, (2004).
<https://doi.org/10.1016/j.ssc.2003.08.048>

Chapitre 5 : Mesure de la conductivité thermique et l'effet interfacial d'un film de parylène-C

Chapitre 5 : Mesure de la conductivité thermique et l'effet interfacial d'un film de parylène-C.

Sommaire

5.1 INTRODUCTION	183
5.2 LES PARYLENES	184
5.2.1 Propriétés des parylènes	186
5.2.2 Parylène de type C	188
5.2.3 Conductivité thermique des polymères	189
5.3 PREPARATION DES ECHANTILLONS	190
5.3.1 Préparation des substrats	190
<i>a) Nettoyage des substrats</i>	190
<i>b) Promoteur d'adhérence</i>	191
5.3.2 Dépôt d'une couche mince de parylène C	192
<i>a) Bâties de dépôts CVD pour le parylène C</i>	192
<i>b) Etapes de dépôt du parylène C par CVD</i>	193
5.3.3 Dépôt des lignes de chauffe métalliques	197
5.4 RESULTATS ET DISCUSSION	199
5.4.1 Mesure de la conductivité thermique du film mince et du substrat	199
5.4.2 Détermination de la résistance thermique interfaciale	204
5.5 MODELE NUMERIQUE ET SIMULATION PAR FEM	209
5.6 CONCLUSION	214
5.7 BIBLIOGRAPHIE	216

5.1 INTRODUCTION

Actuellement, l'électronique flexible est en croissance rapide et trouve de nombreuses applications dans les secteurs industriel et académique de différents domaines : le médical [Fei 2006], le militaire [Dim 2002], l'électronique portable [Bri 2006, Her 2006], les écrans flexibles, les dispositifs implantables [Loo 2002, Som 2004], etc... . Cette technologie est destinée, à terme, au remplacement de l'électronique traditionnelle à base de silicium pour les applications qui nécessitent des caractéristiques telles que la légèreté, la facilité de fabrication, la production à faible coût, la flexibilité mécanique, ... [Bri 2006, Her 2006, Loo 2002, Som 2004]. Généralement, un polymère est un élément essentiel et doit être relativement étirable, flexible, conformable et léger.

Parmi les matériaux flexibles (polymères), nous trouvons les parylènes. Ceux-ci sont généralement déposés en couche mince et servent de revêtement ultime pour la protection des composants, des appareils et de manière plus générale de l'instrumentation dans de nombreux domaines tels que l'électronique [Li 2010], les MEMS [Fan 2004], le médical [Met 2013, Kup 2015] et l'aérospatial [Bah 2014]. Par exemple, nous pouvons mentionner son utilisation comme support isolant pour des applications d'électro-mouillage et plus récemment comme revêtement de nanoparticules métalliques ou de nanotubes de carbone [Sel 2013]. Les 5 variantes de parylène les plus connues sont le parylène N, le parylène C, le parylène D, le parylène Nova HT et le parylène VT-4. Chacun de ces polymères possède des propriétés uniques qui le qualifie pour des applications particulières. Le parylène C ou poly-chloro-p-xylylène C (PPX C) appartient à la famille des polymères thermoplastiques. Il est très utilisé pour la plupart des applications commerciales (compatible avec les techniques de microfabrication standard), car par rapport aux autres parylènes, il possède les performances globales les plus intéressantes. Les films minces de parylène, en particulier le parylène C, sont connus pour leurs excellentes caractéristiques en termes de conformabilité, d'imperméabilité aux gaz, de barrière à l'humidité, de résistance aux solvants, d'hydrophobicité, de tenue diélectrique, de transparence et enfin de biocompatibilité. Toutes ces caractéristiques ont rapidement rendu ce polymère attractif pour de nombreuses applications dans l'industrie [Wad 2006]. Ici, nous sommes intéressés par la mesure de la conductivité thermique du parylène en film mince. Notons, que la conductivité thermique d'un matériau en couche mince peut-être très différente de celle du matériau massif correspondant.

Ce chapitre est organisé de la manière suivante : dans un premier temps, nous présentons un état de l'art sur les parylènes avec un focus sur le parylène de type C. Dans un deuxième temps, nous décrivons les échantillons testés, des films minces de parylène C (de différentes épaisseurs) déposés sur un substrat en borosilicate et les différentes étapes de fabrication. Ensuite, les mesures de la conductivité thermique effective et de la résistance interfaciale sont proposées. Enfin, des simulations numériques basées sur la FEM (méthode des éléments finis) permettent une comparaison avec les données mesurées obtenues par la méthode 3-oméga.

5.2 LES PARYLENES

Les polymères sont largement utilisés dans l'industrie et dans notre vie quotidienne en raison de leurs fonctionnalités diversifiées, de leur faible poids, de leur flexibilité, de leurs excellentes stabilités chimiques ainsi que de leurs faibles coûts. Il existe des milliers de polymères dans la nature. Par exemple, le corps humain contient de nombreux polymères naturels tels que des protéines et des acides nucléiques. La structure des plantes est ainsi principalement composée de cellulose, le composé organique le plus répandu sur terre [Spe 2006, You 2011].

Un polymère est une molécule de masse moléculaire élevée défini comme un enchaînement d'unités structurales répétitives unies les unes aux autres par des liaisons covalentes. L'unité de répétition dans le polymère est appelée le monomère. Ce dernier est une molécule composée principalement de carbone et d'hydrogène. L'entité chimique constituée de deux monomères est nommé un dimère. La plupart des polymères peuvent être classés en trois groupes : des thermodurcissables, des élastomères et des thermoplastiques. Les polymères sont souvent décrits comme étant cristallins, amorphes ou semi cristallins (de phases amorphes et cristallines) (voir annexe F).

Parmi les matériaux polymères thermoplastiques (semi-cristallins) (Voir annexe E), nous nous intéressons ainsi à la famille des parylènes (implantable de classe VI biocompatible), d'où le nom générique Poly-Para-Xylylene. Cette famille possède des propriétés physiques, chimiques, mécaniques et électriques attrayantes par rapport à d'autres matériaux polymères. Les parylènes ont été découverts pour la première fois par le chimiste Michael Mojzesz Szwarc à l'Université de Manchester en Angleterre en 1947 [Szw 1947] et ils ont été commercialisés en 1965 [Bea 1978]. La méthode employée par Szwarc pour utiliser les xylènes comme matériau de base dans un dépôt thermique sous vide n'a produit qu'un faible pourcentage de film polymère. Quelques années plus tard, William Franklin Gorham a effectué un dépôt plus

efficace de parylène en utilisant le dimère stable comme matière première, c'est le di-para-xylylène [Gor 1966, For 2004, Par 2011]. Gorham a observé qu'à des températures supérieures à 550 °C et une pression inférieure à un Torr, le dimère subit une pyrolyse et se fend en deux para-monomères-xylylène. Ensuite, ces monomères peuvent se déposer sur la surface du substrat, sous température ambiante, et commencer leur processus de polymérisation de croissance de chaîne qui conduit à un parylène de poids moléculaire élevé de 2000 à 4000 unités par longueur de chaîne [For 2004, Bea 1978].

Comme indiqué précédemment, les champs d'application des parylènes sont vastes (Fig. 5.1). Ils sont largement utilisés dans : les équipements aérospatiaux [Bea 1989, Jef 2004], les dispositifs micromécaniques [Eil 2008, Xia 2009], les assemblages électroniques [Yok 2016, Kim 2017, NAO 2010], les MEMS [Wat 2015, Kim 2016, Var 2020], les appareillages médicaux et bioélectroniques [Kup 2015, Gri 2015, Gao 2016] et de manière plus générale dans les nanotechnologies [Sen 1999, Sen 2000, Men 2008, Ign 2010, Chi 2009, Lia 2009].

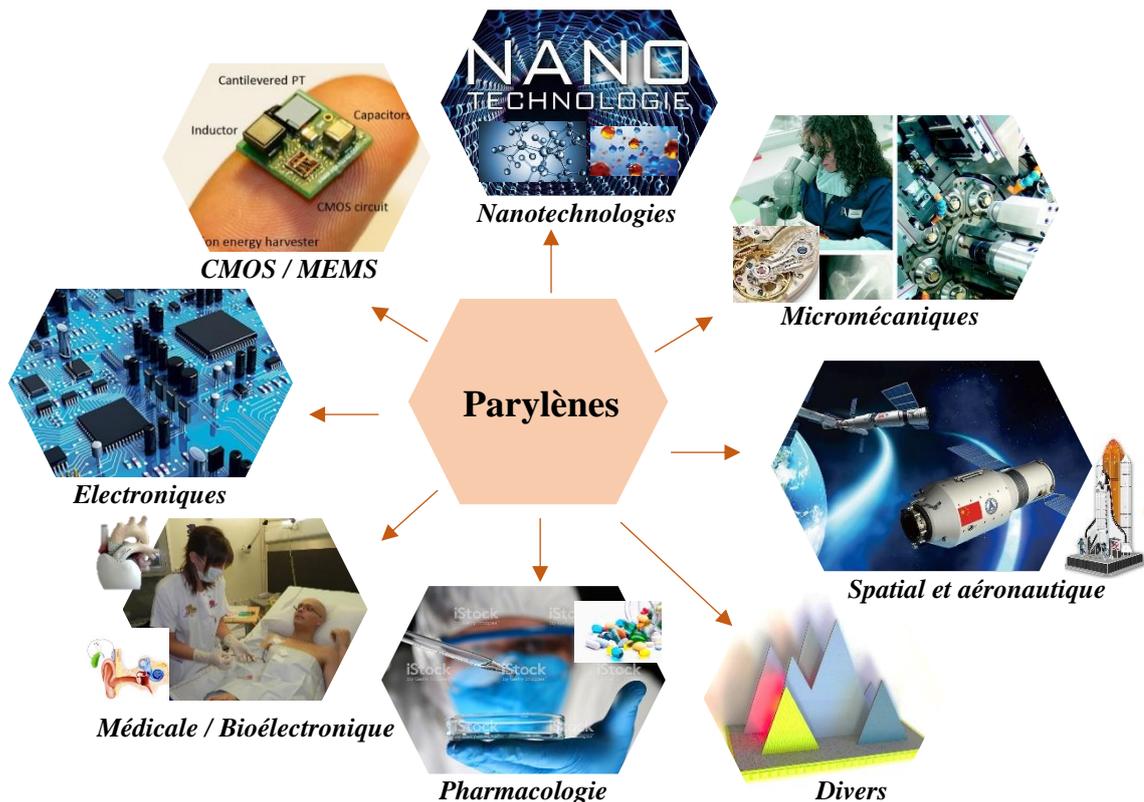


Figure 5.1 : Différents domaines dans lesquels les parylènes sont intégrés.

Comme nous pouvons le constater les applications des parylènes sont nombreuses et variées, à titre d'informations complémentaires les références [Bea 1988, For 2004] et l'annexe E peuvent être consultées.

En réalité, il existe plus de vingt variantes de parylène, cinq d'entre elles sont largement connues, le parylène N, le parylène C, le parylène D, le parylène F (nova HT ou AF-4) et le parylène VT-4. Chacun de ces polymères possède des propriétés uniques qui le rendent intéressant pour des applications particulières. Seuls les parylènes chlorés et fluorés ont trouvé des applications industrielles, car ils sont relativement faciles à réaliser.

Les précurseurs du parylène disponibles commercialement et relativement faciles à réaliser, sont les dimères des parylènes N, C, D. Les autres types de dimères substitués sont moins facilement accessibles, notamment le dimère F ou VT-4, en raison des difficultés de fabrication [Ho 2003]. La quantité disponible de dimère pour ces deux types de parylènes est très limitée dans le monde, car, son coût est excessivement élevé. Les fournisseurs du dimère de parylènes les plus connus dans le monde sont : la société Kisco au Japon [Kis 2020], une entreprise qui distribue un dimère de marque Galentis GalaxyI en Italie [Con 2020] et l'Union Carbide Corporation (UCC) aux Etats-Unis [Par 2020].

5.2.1 Propriétés des parylènes

Les différentes familles de parylènes permettent la formation d'un revêtement léger et sans contrainte (déposé à température ambiante), n'introduisant donc aucun effet négatif sur l'électronique encapsulée (packaging). Elles ont un faible coefficient de friction et sont souvent utilisées comme lubrifiant à film sec. Les parylènes forment un revêtement transparent, inerte et conforme, ne produisant aucun dégazage et ayant une très faible perméabilité à l'humidité et aux gaz [Bea 1989, Jef 2004]. Les parylènes en tant que films sont extrêmement résistants aux champignons et aux bactéries, aux radiations, aux acides et aux bases, et ils sont insolubles dans les solvants [Kah 2009]. Ils présentent une haute résistance à la traction, une rigidité diélectrique et une large plage de températures permettant la fabrication de microstructures mécaniquement puissantes.

Dans le tableau ci-dessous (tableau 5.1) nous présentons les principales propriétés mécaniques, physiques et thermiques trouvées dans la littérature scientifique pour ces familles de parylènes qui sont particulièrement utilisées dans différents domaines de recherches industrielles et académiques [Sen 2000].

	PPX N	PPX C	PPX D	HT	VT-4
Propriétés générales					
Densité (g/cm ³)	1.12	1.29	1.42	1.5	1.58
Poids moléculaire moyen (g/mole)	5×10 ⁵	3×10 ⁵	3×10 ⁵	–	–
Degré de polymérisation (n)	4000	2000	1700		
Indice de réfraction	1.66	1.64	1.67	1.49	1.56
Propriétés thermiques et thermodynamiques					
Température de transition vitreuse (Tg °C)	13	50-90	100	16	65
Température de fusion (°C)	420	290	380	510	
Température de dégradation (sous air)	175-260	125-260	150-300	400-500	-
Température de dégradation (sous vide)	390-490			530	
Température de dégradation (sous azote)	350-490	350-490	400-500	510-530	-
Conductivité thermique (W/cm.K ⁻¹)	12-12.6	8.2-8.4		-	-
Coefficient d'expansion linéaire (ppm)	6.9×10 ⁻⁵	3.5×10 ⁻⁵	3.8×10 ⁻⁵	3.6×10 ⁻⁵	3.6×10 ⁻⁵
Propriétés mécaniques					
Module d'élasticité (GPa)	2.4	3.2	2.8	-	-
Limite d'élasticité (MPa)	42	55	60	-	-
Résistance mécanique (MPa)	45	70	75	-	-
Elasticité (%)	2.5	2.9	3	-	-
Limite de rupture (%)	10-30	10-30	10-30	-	-
Coefficient de friction statique	0.25	0.29	0.35	-	-
Coefficient de friction dynamique	0.25	0.29	0.31		-
Propriétés comme couche barrière					
Absorption d'eau (%)	0.1	0.1	0.1	-	-
Transmission de vapeur H ₂ O @ 37°C	12×10 ⁻¹³	4×10 ⁻¹³	2×10 ⁻¹³	-	-
Température seuil de dépôt (°C)	70	80	80	-	70
Perméabilité au gaz (mol/Pasm)×10⁻¹⁸					
N ₂	15.2	2	9	-	-
O ₂	78.4	14.4	64	-	-
CO ₂	429	15.5	26	-	-
H ₂ S	1590	26	2.9	-	-
Cl ₂	148	0.7	1.1		
SO ₂	3790	22	9.53	-	-

Tableau 5.1 : Comparaison des propriétés physiques des parylènes les plus utilisés [Wol 2012, Ale 1996, Gor 1966].

Dans ce travail, nous nous sommes principalement focalisés sur le parylène C. L'utilisation de ce matériau en électronique nécessite la connaissance fine de ses propriétés thermophysiques, en particulier les propriétés thermiques. Dans la suite de cette section, nous énonçons ses principales propriétés.

5.2.2 Parylène de type C

Le parylène C nommé aussi Poly-monochloro-para-xylylène (ou PPX C (C_8H_7Cl)) possède dans sa structure un seul atome de chlore sur le cycle benzénique (Fig. 5.2). Grace à sa composition moléculaire benzénique, il a une bonne stabilité thermique et une bonne tenue aux éléments corrosifs. Le polyéthylène (-CH₂-), l'élément d'interconnexion entre les noyaux aromatiques, permet d'avoir une certaine flexibilité. Ce matériau a une faible perméabilité à l'humidité et aux gaz corrosifs et a un taux de dépôt plus rapide que d'autres types de parylènes. Cependant, il ne convient pas pour une application à pénétration élevée et il a une faible résistance diélectrique par rapport au parylène N par exemple. Le parylène C est très rentable et il est fortement recommandé pour les applications sur des revêtements qui nécessitent des films plus épais. Il possède en fait les performances globales les plus élevées de toutes les variantes de parylène (tableau 5.1).

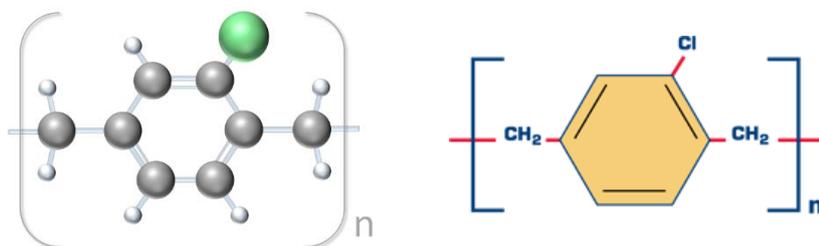


Figure 5.2 : Représentation d'une molécule et formule chimique du (n) monomère de parylène C [Jcl 2016].



Ses excellentes propriétés physiques en termes de conformabilité, son imperméabilité aux gaz, son pouvoir de barrière à l'humidité, sa résistance aux solvants, son caractère hydrophobe, sa bonne tenue diélectrique, sa transparence et enfin sa biocompatibilité l'ont très vite rendu attractif pour de nombreuses applications de l'industrie. Sa faible perméabilité à l'oxygène et aux solvants acido-basiques ainsi que sa bonne biocompatibilité [Rod 2006] permettent au parylène C de se positionner comme un bon candidat comme couche barrière dans des

applications biomédicales [Cha 2007] de type bioMEMS [Men 2008] ou encore dans l'isolation d'électrodes neurales [Kat 2009, Hsu 2009] en remplacement de résines époxydes [Kok 2009]. Il est également présent comme couche d'encapsulation ou couche barrière de nombreux composants de l'électronique comme les diodes électroluminescentes organiques (OLED : Organic Light emitted Diode) ou les transistors organiques à effet de champ (OFET : Organic Field Effect Transistor) [Nar 2008] ou encore comme support isolant pour les applications d'électromouillage (EWOD : ElectroWetting On Dielectrics) [Kah 2009]. Récemment, le PPXC a été utilisé dans les dispositifs à ondes acoustiques de surface (SAW) grâce à l'homogénéité chimique de sa surface ainsi que comme revêtement pour des nanoparticules isolantes ou métalliques ou encore pour les nanotubes de carbone. Comme nous pouvons le constater le parylène C est un polymère de choix.

5.2.3 Conductivité thermique des polymères

La conductivité thermique des polymères est l'une des propriétés qui suscite beaucoup d'intérêt. Aussi, sa détermination fait l'objet de nombreux travaux de recherche ces deux dernières décennies.

En effet, depuis plusieurs années, de nombreux travaux ont été réalisés sur le comportement de la conductivité thermique des polymères sous l'effet de plusieurs paramètres. Parmi les principaux facteurs étudiés, nous pouvons citer : l'orientation des chaînes, la cristallinité et l'introduction de charges.

- L'orientation a une influence sur la conductivité thermique en fonction de la température. Les liaisons covalentes le long de la macromolécule sont bien plus fortes que les liaisons inter-chaînes de type Van der Waals. Par exemple, pour un polymère orienté, la conductivité thermique devrait être plus forte dans le sens longitudinal que dans le sens transversal. Cette hypothèse se vérifie sur les polymères semi-cristallins, mais dans une moindre mesure sur les polymères amorphes compte tenu de leur faible taux d'orientation [Cho 1977]. A l'échelle de la macromolécule la propagation du flux thermique est anisotrope et se propage préférentiellement le long des chaînes plutôt que transversalement à celles-ci. Ainsi, si un polymère est étiré avec orientation des chaînes dans la direction de la déformation, la conductivité thermique sera plus élevée dans la direction de la déformation que transversalement.

- La cristallinité joue un rôle important dans le comportement de la conductivité thermique en fonction de la température. Pour les polymères qui ont une forte cristallinité (> 70%), la conductivité augmente avec la température. Tandis que pour les polymères à faible cristallinité, la conductivité croît de façon monotone depuis les basses températures jusqu'à la température de transition vitreuse T_g .
- L'introduction de charges va modifier la conductivité thermique. Un composite constitué de polymère et de charges présentera une conductivité thermique intermédiaire qui sera influencée par la nature de la charge, sa morphologie et la quantité de charges. Généralement, il y a trois types de charges utilisés dans l'élaboration de composites polymères, les charges inorganiques (fibre de verre), métalliques (cuivre, argent, or...) et carbonées (graphène, nanotube de carbone,...).

Dans la section suivante, nous nous intéressons à l'étude de la variation de la conductivité thermique du parylène C, déposé par la technique CVD (dans la salle blanche à l'IEMN), en fonction de son épaisseur.

5.3 PREPARATION DES ECHANTILLONS

Nous avons déposé trois épaisseurs de film de parylène C (210, 440 et 760 nm), par le procédé de dépôt CVD sur des substrats en borosilicate ($BrSiO_2$) d'épaisseur de 1 mm. Le principal avantage de ce type de substrat est son faible coût en comparaison avec d'autres et sa large utilisation dans de nombreux domaines industriels (optique, microélectronique, énergétique, ...). Une autre raison du recours à ce substrat est sa résistance mécanique. Enfin, l'ajout d'une couche biocompatible de silane (silane A174) permet une bonne résistance à la corrosion.

Le dépôt des films de parylène C ainsi que les lignes de chauffe sur la surface du substrat sont détaillés dans les paragraphes suivants.

5.3.1 Préparation des substrats

a) Nettoyage des substrats

Avant d'accueillir les couches de parylène, il est nécessaire de nettoyer les substrats de $BrSiO_2$ afin d'éliminer les contaminants (poussières, ...). A cet effet, les substrats sont plongés dans un bain d'acétone pendant 5 minutes avec ultrasons, puis dans un bain d'isopropanol pendant 3 minutes avec ultrasons. Ensuite, un séchage sous un flux d'azote gazeux est pratiqué,

et pour finir les substrats sont soumis à un recuit à 110 °C pour éliminer toutes traces d'hydrocarbures et de solvants.

b) Promoteur d'adhérence

L'inconvénient des parylènes est leur faible pouvoir d'adhérence sur des substrats. Pour remédier à cela, il est conseillé d'utiliser un promoteur d'adhérence qui sert comme une couche d'accrochage entre la partie organique (parylène C) et la partie inorganique (substrat).

Les agents de couplage au silane A174 sont des produits chimiques à base de silicium qui contiennent dans la même molécule deux types de réactivité - inorganique et organique. Sa structure chimique typique est : $(RO)_3SiCH_2CH_2CH_2-X$ [Mat 2018].

où RO est un groupe hydrolysable alkoxy: methoxy (O-CH₃) ou éthoxy -O-C₂H₅ qui réagit bien avec la surface des substrats métalliques et non métalliques. Quand à X, il représente un groupe organo-fonctionnel amine, époxy, acide carboxylique, ... qui interagit bien avec le matériau organique qu'il reçoit. Il est souvent utilisé dans les dispositifs MEMS pour améliorer la friction métal-parylène [Ash 2003].

Dans notre étude nous avons utilisé un prétraitement au silane A174 en phase liquide comme promoteur d'adhérence entre la surface du substrat de borosilicate (matériau inorganique) et la surface de film de parylène C (matériau organique) pour lier les deux matériaux (Fig. 5.3).

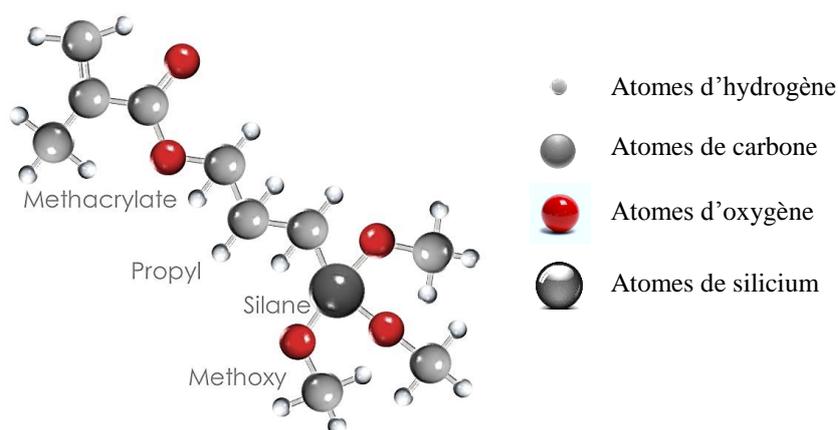


Figure 5.3 : Représentation de la structure d'une molécule de silane A174 [Jcl 2016].

Pour cela, nous immergeons les substrats dans une solution constituée de 100 μL de silane A 174, 20 mL de toluène et 100 μL d'acide acétique pendant 2 heures. Ensuite, on fait sécher les échantillons à l'air pendant 30 minutes. Puis, ils sont rincés dans des solvants sous ultrasons pendant 10 min pour éliminer l'excès de silane qui n'a pas adhéré à la surface. Enfin, ils sont soumis à un recuit de déshydratation à 110 ° C pendant 10 minutes.

Nous avons préparé les 3 substrats avec une couche d'accroche de 3 à 5 nm d'épaisseur. Dans le paragraphe suivant est présenté le protocole de dépôt de films de parylène C par le procédé CVD (dépôt chimique en phase vapeur).

5.3.2 Dépôt d'une couche mince de parylène C

Dans cette section nous avons présenté le procédé dépôt de films de parylène par la technique CVD.

a) Bâtis de dépôts CVD pour le parylène C :

Nous avons utilisé un bâti commercial COMELEC (modèle C20S) dédié au dépôt de films minces de parylène par CVD qui est installé dans la salle blanche de l'IEMN (Fig. 5.4). Les composants les plus importants de ce bâti sont :

1. Une chambre de sublimation (vaporisateur) dans laquelle le dimère est positionné dans un creuset en acier. Ensuite, le dimère de parylène est chauffé jusqu'à devenir un gaz de parylène.
2. Une chambre de pyrolyse : qui décompose le gaz de dimère de parylène en gaz monomère de parylène.
3. Une chambre de dépôt où se trouve le porte échantillon animé d'un système de rotation pour uniformiser les flux, c'est l'endroit où la polymérisation du parylène a lieu.
4. Un système d'échauffement et de refroidissement de la chambre de dépôt, c'est un appareil cryogénique par lequel un refroidisseur mécanique refroidit un doigt. Le doigt réfrigéré condense le parylène et empêche la contamination de la pompe à vide.
5. Un système de pompage et un piège à azote liquide.



Figure 5.4 : Photographique du bâti COMELEC (modèle C20S) dédié au dépôt de parylène [Com 2020].

Nous donnons dans la suite une description plus détaillée du processus de dépôt de parylène par CVD.

b) Etapes de dépôt du parylène C par CVD :

Le dépôt du parylène C par CVD se déroule en trois étapes principales :

1. La sublimation :

Au départ de ce précurseur, un solide sous forme de poudre blanche (dimère de parylène C) appelé dichloro-di-para-xylylène est utilisé (Fig. 5.5). Ce dimère se transforme directement en phase gazeuse par sublimation sous une température de 140 à 170 °C et une pression proche de 1 Torr. Sachant que ces dimères possèdent un poids moléculaire élevé (277 g.mol^{-1}), le taux d'évaporation du dimère est proportionnel à la surface de sublimation, la pression de vapeur, et inversement proportionnel à la racine carrée de la température de sublimation [Brö 2017].



Figure 5.5 : Photographie des dimères de parylène C sous leur forme commerciale, poudre blanche, conservés dans une boîte en plastique.

Plusieurs études ont montré que l'épaisseur du film de parylène varie linéairement avec la masse du dimère (Fig. 5.6). De plus la vitesse de dépôt du polymère augmente avec l'augmentation de la masse du dimère. Ceci est associé à l'augmentation de la surface libre du dimère dans la chambre de sublimation [Kah 2011, Sel 2010].

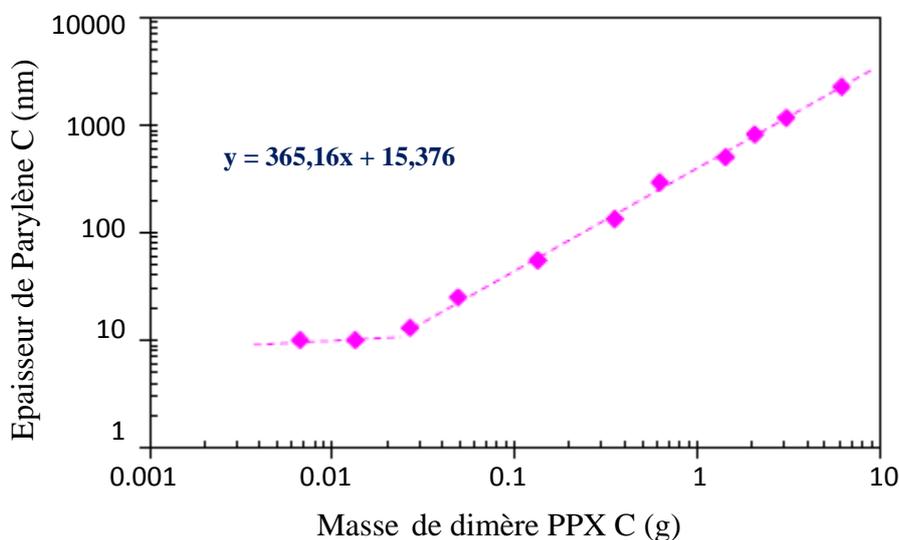


Figure 5.6 : Epaisseur du dépôt de parylène en fonction de la masse de dimère initiale du parylène C [Kah 2011].

Nous observons sur la figure ci-dessus que l'épaisseur déposée dépend linéairement de la masse initiale de dimère. Il est clair qu'au-dessous d'une valeur seuil de la masse de dimère de parylène C, environ 30 mg, il n'est plus possible de contrôler l'épaisseur de polymère déposée [Mau 2007].

D'autre part, les travaux de Kramer et al [Kra 1984] ont également permis de mettre en évidence l'effet de la température de sublimation du dimère sur le dépôt du polymère par la mesure de l'épaisseur du film au cours du temps et à différentes températures du substrat. En effet, la vitesse du dépôt augmente, au départ, linéairement avec le temps pour une température de sublimation fixe puis elle diminue. Ils ont souligné que l'épaisseur du film de parylène C diminue de 18% lorsque la température de sublimation augmente de 120 à 140 °C [Kra 1984].

Finalement, pour obtenir un dépôt plus rapide, il suffit de sublimer le dimère à une température supérieure ou égale à 140°C, tandis que pour gagner de la masse (ou de l'épaisseur), il faut déposer le parylène C à une température de sublimation proche de 120 °C.

2. La pyrolyse :

Les molécules en phase gazeuse obtenues par sublimation passent alors dans un four de pyrolyse soumis à une température de 650 °C à 690 °C et sous une pression de 0,5 Torr. Dans ces conditions, le dimère gazeux se convertit à 100 % en monomère gazeux par le clivage thermique des liaisons méthylène-méthylène.

3. La polymérisation :

Au cours de ce processus, le monomère parylène se déplace lentement dans la chambre de dépôt et est adsorbé sur la surface du substrat et polymérisé. Sous une température ambiante et une pression de quelques unités de 10^{-2} mbar, les monomères gazeux provenant de la chambre de pyrolyse se déposent par polymérisation sur la surface de substrat. La croissance du film de parylène s'effectue ensuite par la diffusion en volume de monomères qui s'adsorbent avec plusieurs oligomères ou macromolécules qui sont déjà déposés. Un film de parylène est ainsi formé par polymérisation à température ambiante [Car 1965, Kra 1984]. Une représentation schématique de la structure du film de parylène C formé sur la surface du substrat à travers une couche d'adhésion de Silane A 174 est donnée à la figure suivante (Fig. 5.7) :

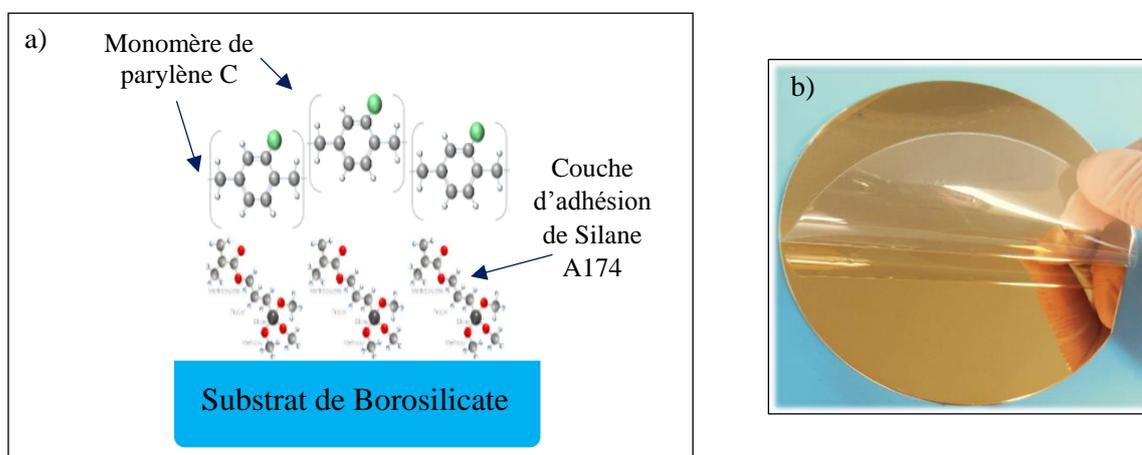


Figure 5.7 : a) Schéma de la structure de dépôt de parylène C sur un substrat de borosilicate à travers une couche d'adhésion (Silane A174). b) Photographique d'un film de parylène C (sans couche d'adhésion).

Dans la figure ci-dessous (Fig. 5.8), nous illustrons les différentes étapes d'un procédé de dépôt CVD d'un film de parylène C.

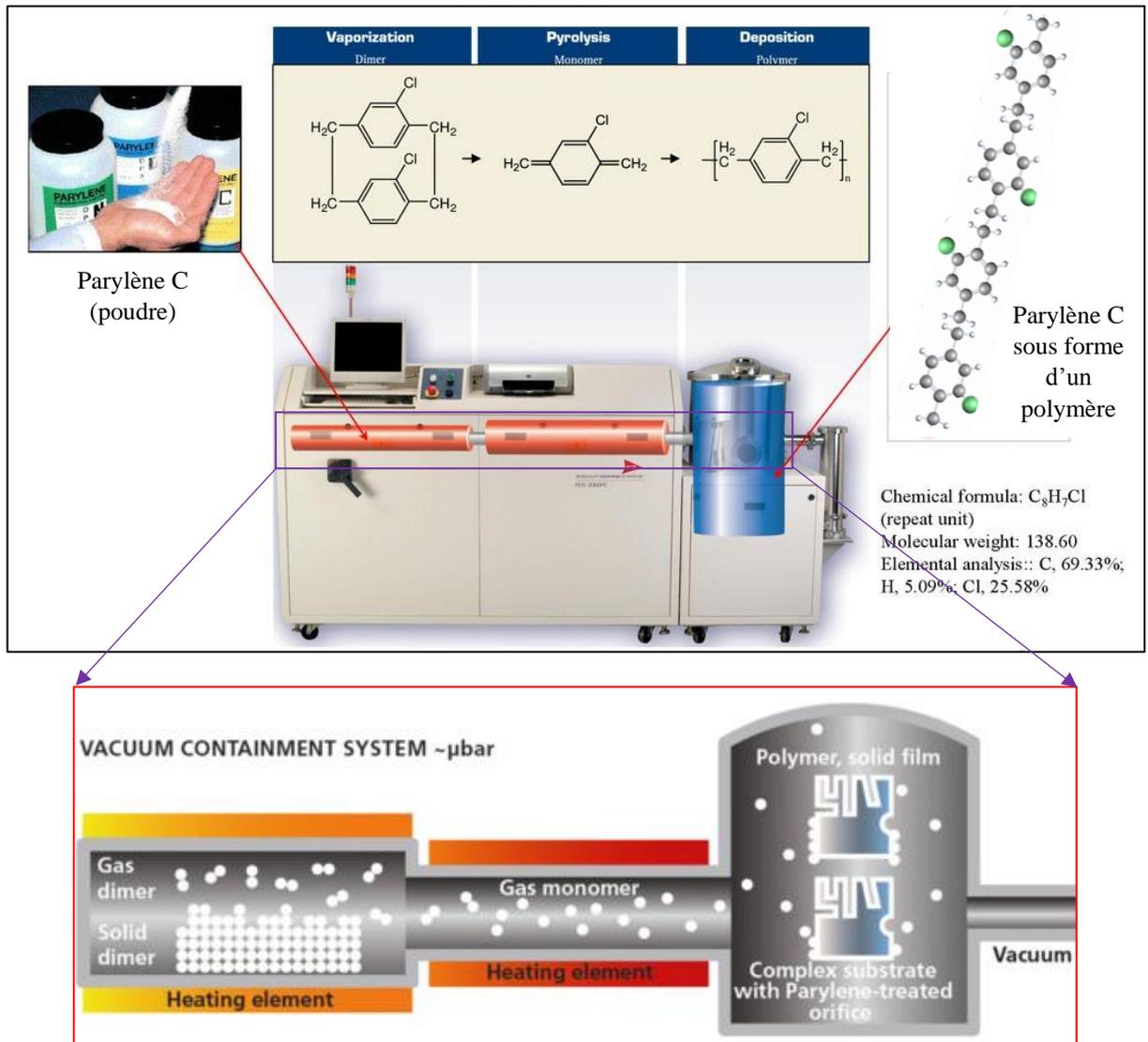


Figure 5.8 : Représentation photographique du bâti de dépôt de parylène ainsi que les différentes procédures du dépôt de parylène C [Scs 2021].

Dans le but d'observer les topographies en surface de l'échantillon (substrat et lignes métalliques déposées par la technique de lithographie optique) et de vérifier l'intégrité des lignes, nous utilisons la microscopie à force atomique (AFM ou Atomic Force Microscopy) et la microscopie électronique à balayage (MEB ou Scanning Electron Microscopy SEM).

Les figures suivantes (Fig. 5.10) représentent les topographies de surface obtenues par la microscopie à force atomique (AFM ou Atomic Force Microscopy) en mode 'tapping' qui ont été réalisées sur des films de parylène C de 208 et 760 nm d'épaisseur.

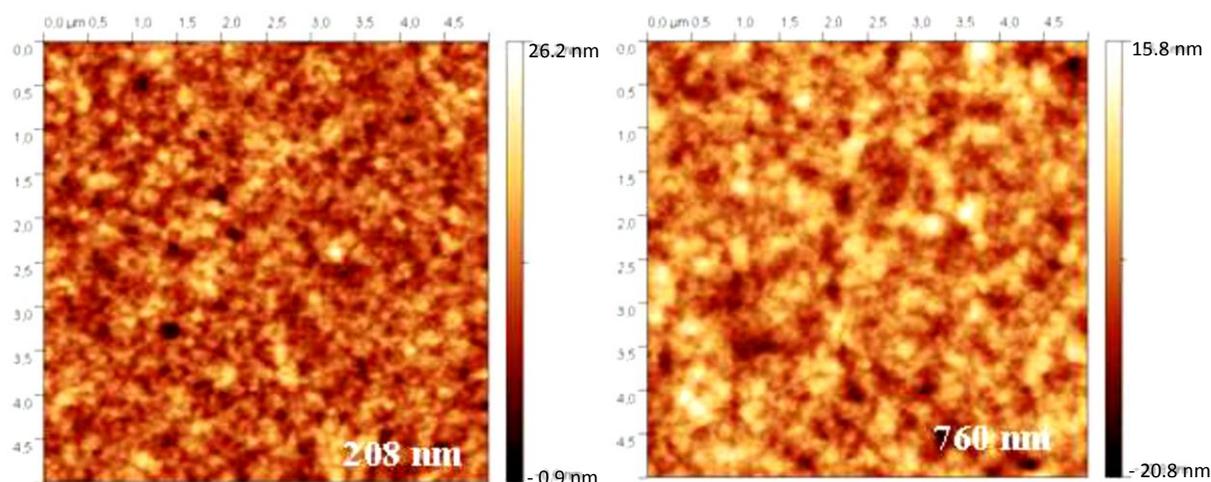


Figure 5.10 : Topographies du parylène C par AFM pour les épaisseurs 208 nm et 760 nm [Kah 2011].

Nous observons que si l'épaisseur augmente, la géométrie change et s'accompagne d'un changement de la rugosité de surface. Cette variation peut être reliée à la phase du processus de croissance du film de parylène C lors de la formation des premières couches par CVD. Des travaux ont montré que pour des épaisseurs supérieures à 40 nm, le degré de cristallinité change et le parylène C devient semi-cristallin avec une rugosité plus importante [Kah 2011].

5.3.3 Dépôt des lignes de chauffe métalliques

La dernière partie de cette procédure de la préparation des échantillons est la réalisation des lignes de chauffe par la technique de photolithographie optique, déjà présentée dans le chapitre 3. Par cette procédure nous avons pu réaliser plusieurs lignes métalliques de longueurs différentes, de largeur $2b$ qui varie entre 10 μm et 50 μm (avec une erreur de ± 150 nm) et qui possèdent une épaisseur de métal (Au) de 450 nm avec 50 ± 10 nm d'une couche de chrome pour assurer une bonne accroche au film de parylène (Figures 5.11 et 5.12). La valeur de la résistance de ces lignes métalliques se situe entre 15 Ω et 45 Ω .

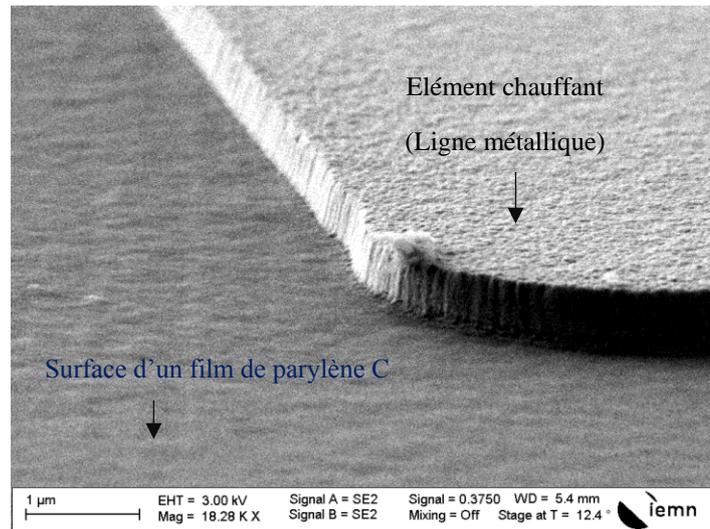


Figure 5.11 : Vue par microscope électronique à balayage (MEB) de l'élément chauffant déposé sur la surface d'un film de parylène C/substrat.

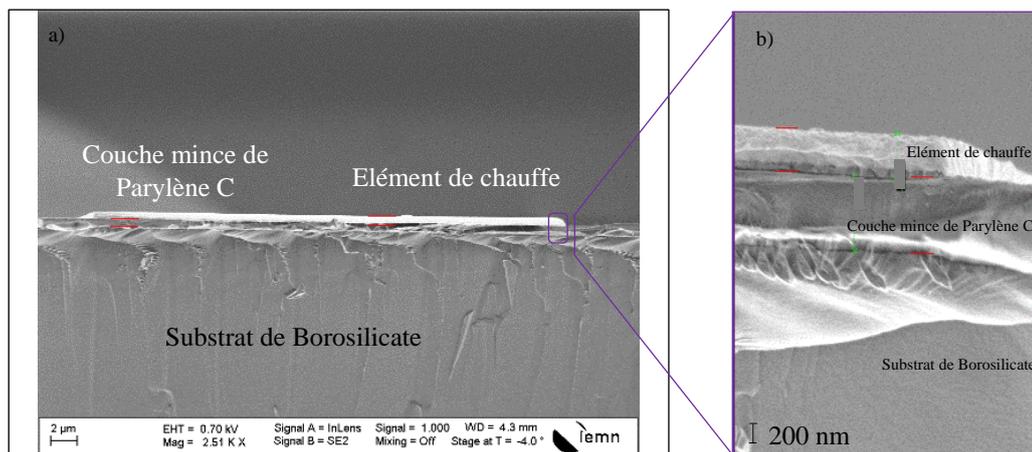


Figure 5.12 : a) Image MEB d'une structure composée d'un micro-capteur thermique déposé sur la surface de l'échantillon (film de parylène C / substrat de borosilicate) et (b) un zoom autour de l'élément chauffant.

Le tableau suivant résume les caractéristiques des lignes de chauffe ainsi que les paramètres essentiels à la mesure de la 3^{ème} harmonique de la tension par la technique 3ω , ($2b$, l , β_h , P_{rms} et T_0). Dix lignes de largeurs différentes ont été déposées sur chaque échantillon mais pour alléger la présentation nous n'avons choisi ici que 3 lignes pour chaque épaisseur d'échantillons.

	Épaisseur du film d_f /nm	$2b$ / μm	l /mm	P_{rms} / Wm^{-1}	R_0 / Ω	T_0 / $^\circ\text{C}$
210	Ligne 17	10	5	0.8071	29.431	26.40
	Ligne 18	20	5	0.6602	15.885	26.15
	Ligne 19	50	18	0.5804	22.841	26.10
440	Ligne 20	10	7.2	1.0266	42.351	25.75
	Ligne 21	20	5	0.6523	15.863	25.65
	Ligne 22	50	18	0.3872	23.067	26.20
760	Ligne 23	10	5	1.9203	33.189	27.75
	Ligne 24	30	8	1.2399	20.886	26.40
	Ligne 25	50	18	0.5369	26.911	26.45

Tableau 5.2 : Caractéristiques des lignes métalliques déposées sur la surface des échantillons.

Une fois les lignes de chauffe réalisées sur les échantillons composés d'un film de parylène C déposé sur un substrat en borosilicate, nous passons à la caractérisation de la conductivité thermique de ces échantillons en utilisant la technique 3-oméga.

5.4 RESULTATS ET DISCUSSION

5.4.1 Mesure de la conductivité thermique du film mince et du substrat

Puisque tous les échantillons utilisés dans cette étude sont préparés sous les mêmes conditions de dépôt, nous supposons que tous les échantillons ont les mêmes résistances interfaciales (c.à.d. la ligne métallique/film de parylène C et pour le film de parylène/substrat). La conductivité thermique effective mesurée par la technique 3-oméga pour chaque échantillon (en utilisant les équations 2.12, 2.50, 4.2 et 4.3) est présentée dans le tableau 5.3.

Épaisseur du film d_f /nm		$2b$ / μm	k_{eff} / $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$	k_{eff} (moy) / $\text{Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$	Écart type relatif (RST)
210	Ligne 17	10	79.550×10^{-3}	81.206×10^{-3}	5 %
	Ligne 18	20	85.446×10^{-3}		
	Ligne 19	50	84.720×10^{-3}		
440	Ligne 20	10	88.502×10^{-3}	88.372×10^{-3}	2.64 %
	Ligne 21	20	87.570×10^{-3}		
	Ligne 22	50	86.893×10^{-3}		
760	Ligne 23	10	98.840×10^{-3}	92.815×10^{-3}	4.41 %
	Ligne 24	30	89.690×10^{-3}		
	Ligne 25	50	91.221×10^{-3}		

Tableau 5.3 : Conductivité thermique des films de parylènes C déposés sur la surface d'un substrat BrSiO₂ mesurée à température ambiante.

En fait, pour estimer la valeur moyenne de la conductivité thermique effective d'un film donné du tableau 5.3 nous utilisons pour chaque épaisseur les résultats relevés pour 10 lignes métalliques de largeurs différentes et non pas uniquement les valeurs répertoriées dans le tableau (pour les 3 lignes présentées).

La valeur moyenne de la conductivité thermique du substrat en borosilicate mesurée (à température ambiante) est $k_s = (1,139 \pm 0,058) \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$. Cette dernière est déterminée à partir de la pente (Eq. 2.50) du tracé de la partie réelle de l'oscillation de température expérimentale ou de la troisième harmonique de la tension aux bornes des lignes de chauffe métalliques en fonction du logarithme népérien de la fréquence angulaire 2ω . Les conductivités thermiques des couches de parylène C d'épaisseur 210, 440 et 760 nm données dans le tableau 5.3 sont obtenues à partir de l'Eq. 4.3. Nous estimons que l'effet des erreurs sur les différents paramètres (tension initiale V_0 , largeur de chauffe $2b$, épaisseur de film d_f et TCR) entraîne une erreur de mesure qui ne dépasse pas 10 % de la valeur de la conductivité thermique mesurée lors de l'utilisation du banc expérimental basé sur la méthode 3-oméga (Eqs. 4.2, 4.3 et 2.12).

La figure 5.13 montre l'amplitude de la troisième harmonique de la tension $V_{3\omega}$ mesurée pour une ligne métallique ($l = 5 \text{ mm}$, $2b = 20 \mu\text{m}$ et $P_{rms} = 1,171 \text{ Wm}^{-1}$) sur une couche de parylène de 210 nm d'épaisseur déposée sur un substrat de borosilicate.

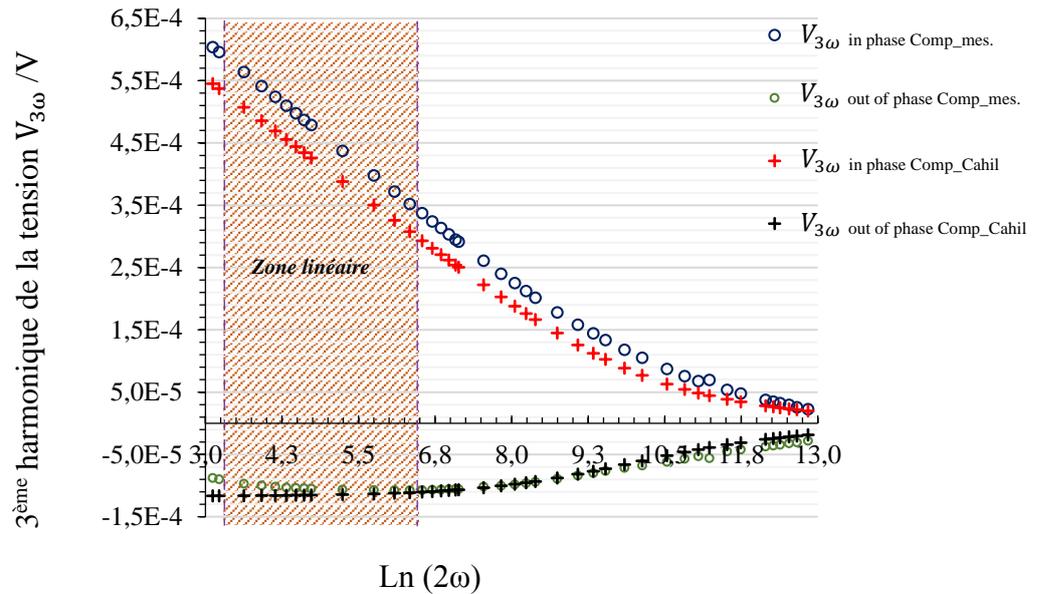


Figure 5.13 : Les composantes en phase et en quadrature de phase de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ mesurées, pour un film mince de parylène C de 210 nm, en fonction du logarithme de la fréquence angulaire 2ω (dans une plage fréquentielle comprise entre 1,8 Hz et 30 KHz).

Sur la figure 5.13, les marques rouges et noires représentent respectivement les parties réelle et imaginaire de l'amplitude de la troisième harmonique de la tension pour le substrat seul (calculées par l'éq. 2.43). Nous constatons que l'amplitude en phase de la troisième harmonique de la tension $V_{3\omega}$ en présence d'une couche mince de parylène déposée sur le substrat, représenté par les cercles bleus, augmente par rapport à celle mesurée dans le cas d'un substrat seul. Cette augmentation d'amplitude est due principalement à l'addition du film mince et elle est pratiquement indépendante de la fréquence angulaire 2ω .

Nous présentons sur la figure suivante (Fig. 5.14) les variations de la composante en phase et en quadrature de phase de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega}$ obtenues expérimentalement pour les lignes 17, 20 et 23 en fonction du logarithme népérien de la fréquence angulaire 2ω , pour des puissances différentes.

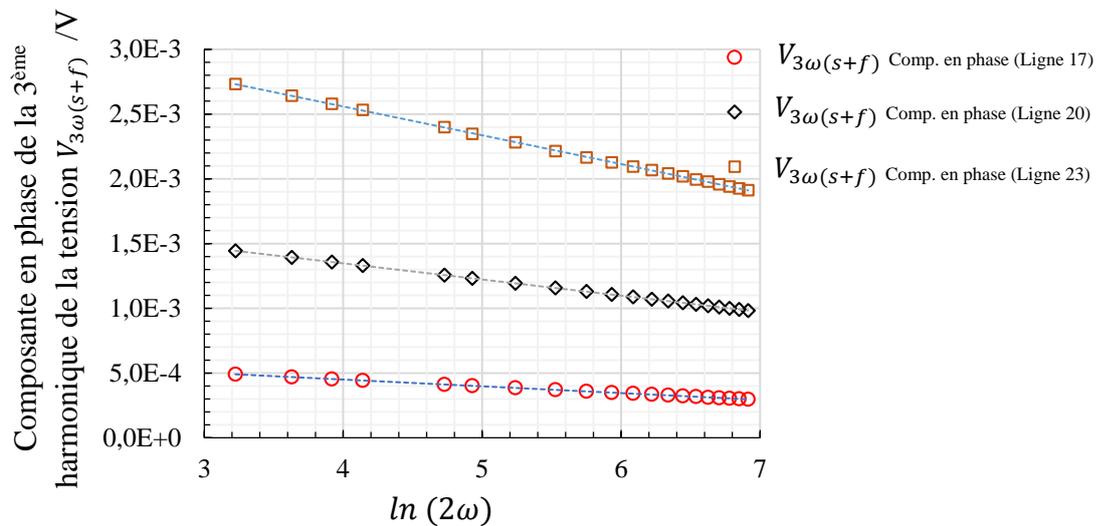


Figure 5.14 : Composante réelle de la 3^{ème} harmonique de la tension $V_{3\omega(s+f)}$ en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes de chauffe 17, 20 et 23.

(Dans la zone de fréquences du régime linéaire).

La figure ci-dessous (Fig. 5.15) montre les tracés des mesures des amplitudes en phase de la variation de la température pour les lignes de chauffe 18, 21 et 24 (Tableau 5.3) sur la plage des fréquences correspondant au régime linéaire. Les oscillations de température des lignes de chauffe sont calculées en utilisant l'éq. 2.12. Les coefficients de température en résistances (TCR) sont respectivement de 2.98×10^{-3} , 2.96×10^{-3} et $2.93 \times 10^{-3} \text{ } ^\circ\text{C}^{-1}$. Grâce à l'Eq. 2.52, nous montrons que la limite inférieure du régime linéaire est identique pour toutes ces lignes, elle est estimée à 1,18 Hz (avec la valeur de la diffusivité thermique D_s égale à $6.80 \times 10^{-7} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$). De plus, la limite de fréquence supérieure est identique pour les lignes 18 et 21, égale à 18.83 Hz, mais pour la ligne 24 cette limite fréquentielle égale à 8.37 Hz, car elle ne dépend que de la largeur de la ligne.

Nous avons confronté les résultats obtenus expérimentalement aux valeurs issues du modèle analytique de D. G. Cahill programmé sous Matlab[®]. Les courbes de gauche de la figure 5.15 présentent une comparaison des résultats de mesure et de simulation de la variation de la température $\Delta T_{(s+f)}$ (à travers l'Eq. 2.12) en fonction de $\ln(2\omega)$ pour les lignes 18, 21 et 24. Sur la partie de droite sont représentés des zooms de la composante en phase (partie réelle) dans la zone de linéarité.

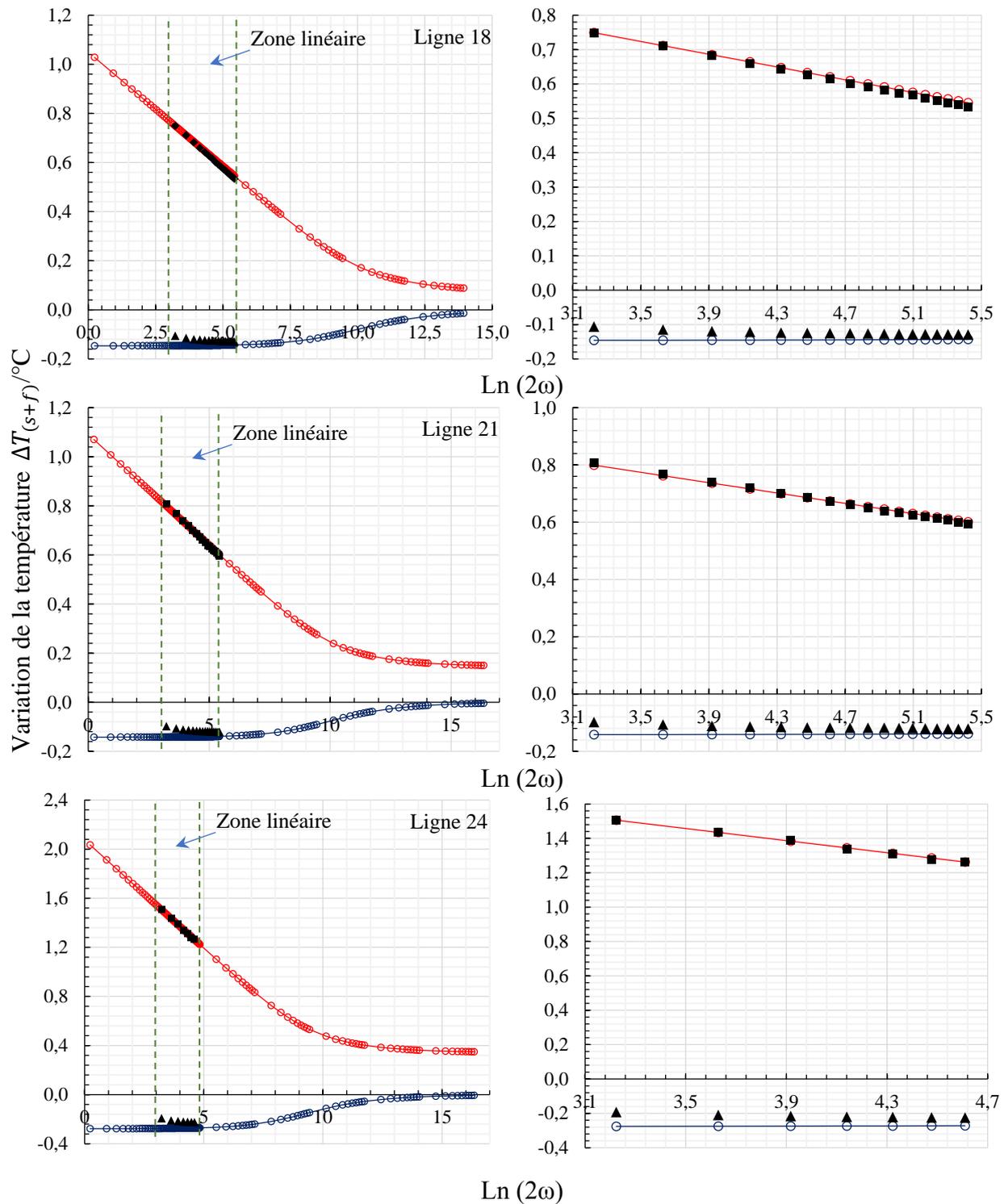


Figure 5.15 : Comparaisons des résultats obtenus expérimentalement aux valeurs issues du modèle analytique de D. G. Cahill pour la de la variation de la température $\Delta T_{(s+f)}$ (à gauche), et zooms sur la composante en phase (partie réelle) de la variation de la température dans la zone linéaire (à droite) (pour les éléments de chauffe 18, 21 et 24).

Plus précisément, sur les figures ci-dessus, les courbes formées par des carrés et des triangles noirs représentent respectivement les composantes en phase et quadrature de phase de la variation de température $\Delta T_{(s+f)}$ totale (film+substrat) obtenues expérimentalement à partir des mesures de la 3^{ème} harmonique de la tension. Alors que les courbes constituées des cercles rouges et bleus nuit (avec des lignes) représentent les composantes en phase et quadrature de phase de la variation de la température du substrat de borosilicate $\Delta T_{(s+f)}$ calculées selon la solution de D. G. Cahill (Eq. 2.48) programmé sous Matlab[®].

Dans la zone de linéarité, nous remarquons que les résultats expérimentaux et ceux obtenus à partir de la solution de D. G. Cahill sont très cohérents. Notons également qu'un bon accord est observé entre les résultats de mesure et les solutions théoriques pour la totalité des lignes déposées sur les échantillons testés.

5.4.2 Détermination de la résistance thermique interfaciale

Comme nous l'avons déjà mentionné dans la partie précédente, l'échantillon étudié est constitué d'un empilement d'une ligne de chauffe métallique, une couche mince de parylène C et un substrat borosilicate. Au cours de nos mesures, il apparaît une résistance thermique de contact entre les matériaux (substrat/film mince et film mince/ligne métallique). La figure 5.16 nous donne une modélisation qui suppose que les deux résistances de contact apparaissent comme une résistance parasite qui vient s'ajouter à la valeur de la résistance thermique du film de parylène C lors des mesures.

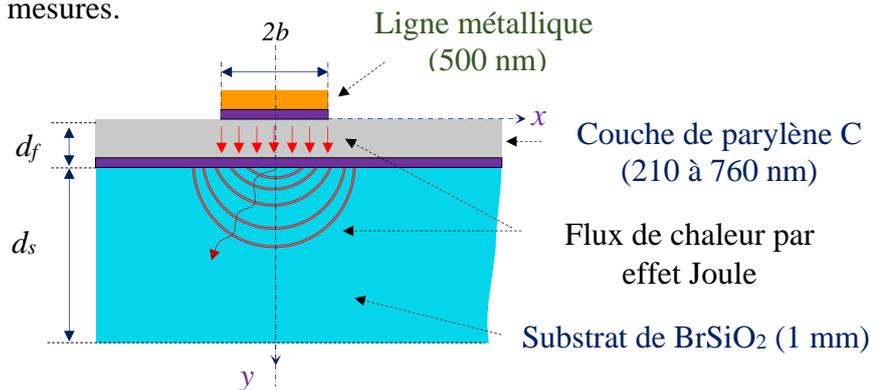


Figure 5.16 : Schéma de l'échantillon constitué d'un empilement de couches : une ligne de chauffe métallique, un film mince de parylène C et un substrat borosilicate. (échelle non respectée).

Sur cette figure (Fig. 5.16), les zones marquées en couleur violette représentent les résistances thermiques d'interface entre la ligne/film et le film/substrat.

Généralement, les mesures de la résistance thermique de contact sont très délicates. Cette résistance est utilisée pour décrire la capacité de conduction thermique d'une interface dans différents matériaux. Dans le cas de la méthode 3ω , l'existence d'une couche interfaciale entre le film et le substrat ajoute une résistance thermique au film (modèle de diffusion de chaleur unidimensionnel). La résistance thermique effective R_{eff} est la somme de la contribution de la résistance thermique du film R_f et celle des interfaces R_{int} (élément chauffant/film de parylène C et film de parylène C/substrat) qui est supposée constante sur les échantillons [Che 2017, Bog 2017, Gri 1994]. Cette résistance thermique effective est donnée par :

$$R_{eff} = \frac{d_f}{k_{eff}} = R_f + R_{int} \quad (5.1)$$

La résistance thermique provoquée par le film de parylène C peut être exprimée comme :

$$R_f = \frac{d_f}{k_i} \quad (5.2)$$

où k_i est la conductivité thermique intrinsèque du film [Rau 2013].

Il n'y a que peu de matériaux dont la résistance thermique interfaciale est connue. Cette dernière est intrinsèquement difficile à caractériser, car elle dépend fortement du contact mécanique des matériaux à l'interface et des propriétés des matériaux. Elle dépend donc de différents paramètres parmi lesquels nous pouvons citer : la microstructure, la nature de l'interface (rugosité, présence de fluide interstitiel), la pression de contact et la morphologie (taille, forme, ...). Elle correspond à une mesure de la résistance au flux de chaleur à l'interface de deux solides en contact. Elle crée en fait une perturbation de la température à l'interface. Cela est dû au fait que les phonons incidents à l'interface ont une certaine probabilité de transmettre à travers l'interface, ce qui entraîne une discontinuité de température en raison de la transmissivité des phonons finis. Entre deux matériaux massifs, la résistance interfaciale est de l'ordre de 10^{-8} à $10^{-6} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$, elle n'a qu'un faible impact sur la mesure de la résistance thermique. Cependant, lorsque les systèmes deviennent plus petits (minces), l'effet interfacial (à la fois pour élément chauffant/film et film/substrat) doit être pris en compte lors de la détermination des propriétés thermiques de la couche mince [Kim 2001, Yam 2002]. Dans la littérature scientifique, il existe une gamme de valeurs relativement large de cette résistance. Des valeurs entre $(6 \text{ et } 10) \times 10^{-7} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$ [Yu 2007], $4,6 \times 10^{-7} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$ et $1,9 \times 10^{-6} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$ [Has 1987, Mac 2003] et d'autres entre $(2 \text{ et } 10) \times 10^{-8} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$ [Kim 2010, Yam 2002, Lee 1997] ont été relevées. Il existe quelques travaux sur l'effet de la résistance thermique d'interface sur la conductivité thermique

des polymères en couches minces [Has 1987, Nan 2004, Yu 2007], mais à notre connaissance, pas sur ce type de matériaux polymères (films de parylène C).

Les valeurs de conductivité thermique effective k_{eff} obtenues expérimentalement sont tracées en fonction des épaisseurs du film de parylène. Nous pouvons voir sur la figure 5.17a que la conductivité thermique effective du film augmente avec l'épaisseur. La résistance interfaciale R_{int} peut être déterminée par le tracé la résistance thermique R_{eff} en fonction de l'épaisseur de couche d_f (Fig 5.17b).

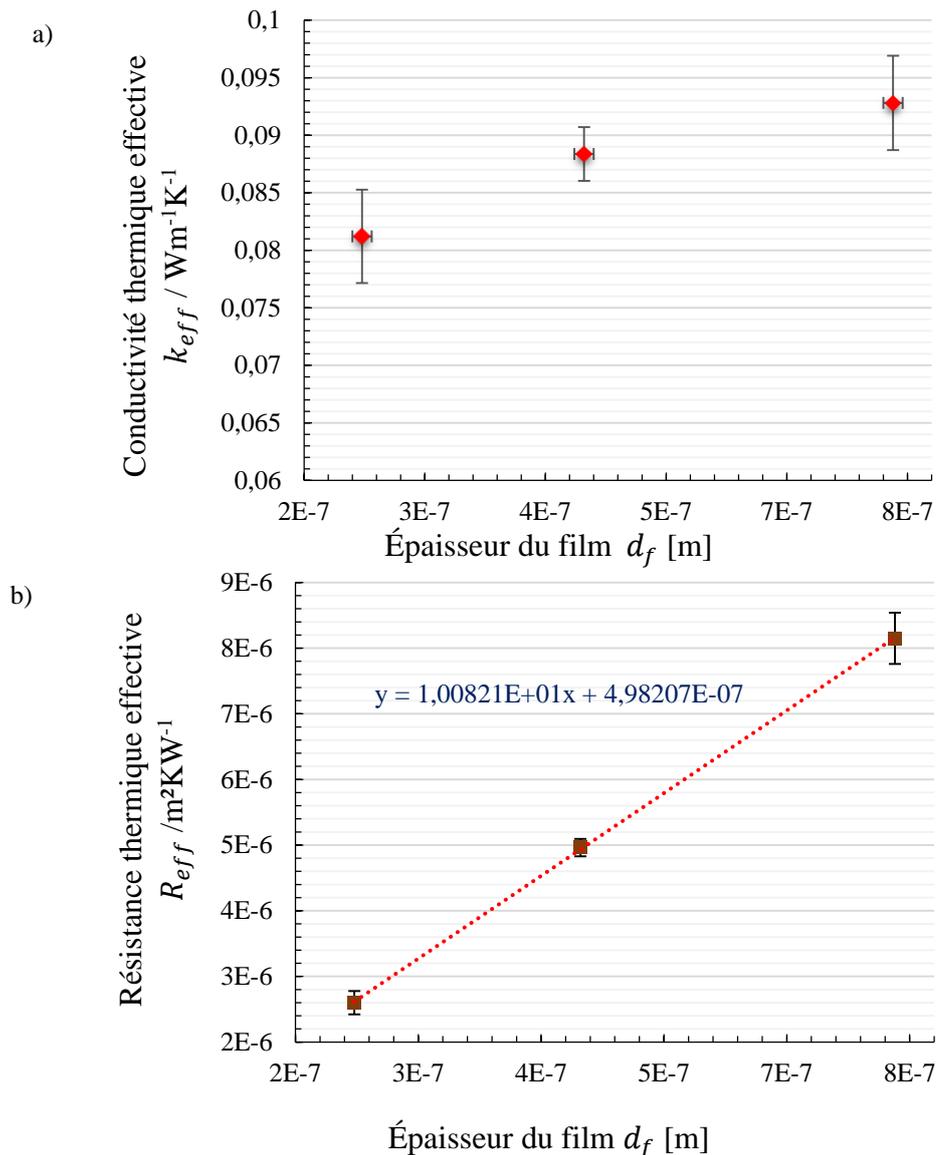


Figure 5.17 : a) La conductivité thermique effective k_{eff} déterminée expérimentalement pour des films de parylène C/substrats en borosilicate en fonction de l'épaisseur du film et b) Les résistances thermiques effectives des films de parylène C.

D'après les figures ci-dessus, nous constatons qu'il existe une dépendance linéaire de la résistance thermique vis-à-vis de l'épaisseur du film (voir Eq. 5.1). L'intersection avec l'axe des ordonnées donne la résistance thermique interfaciale pour la ligne métallique/film de parylène et le film de parylène/substrat. Par conséquent, à partir de la connaissance de la somme de ces deux résistances thermiques de contact, la conductivité thermique intrinsèque k_i du film de parylène C peut être déterminée comme :

$$k_i = \frac{d_f}{R_{eff} - R_{int}} \quad (5.3)$$

Dans un premier temps, nous avons mesuré la valeur de la conductivité thermique effective des films de parylène C de 210, 440 et 760 nm d'épaisseur en utilisant la technique 3-oméga. Les valeurs obtenues par la méthode différentielle sont : $(81,20 \pm 3,19) \times 10^{-3}$, $(88,37 \pm 2,02) \times 10^{-3}$ et $(92,81 \pm 3,01) \times 10^{-3} \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$, respectivement. Selon l'équation 5.3, nous avons alors déterminé la conductivité thermique intrinsèque des films de parylène C qui correspond à chaque épaisseur : $95,18 \times 10^{-3} \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ pour 210 nm, $98,57 \times 10^{-3} \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ pour 440 nm et $99,33 \times 10^{-3} \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ pour 760 nm. Ainsi, les résistances thermiques effectives des films de parylène C de 210, 440 et 760 nm d'épaisseur obtenues par l'équation 5.2 sont : $(25,99 \pm 1,61) \times 10^{-7}$, $(49,62 \pm 0,97) \times 10^{-7}$ et $(81,49 \pm 3,08) \times 10^{-7} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$ respectivement. En utilisant la figure 5.17.b, nous pouvons estimer, à partir de l'intersection avec l'ordonnée (sur l'axe des y), les valeurs de résistance à l'interface : $R_{int} = 4,98207 \times 10^{-7} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$.

Par conséquent, nous constatons une augmentation de la conductivité thermique effective de 15,85%, 10,91% et 6,78%, respectivement, par rapport à la conductivité thermique intrinsèque.

Nous avons remarqué que la conductivité thermique augmente, systématiquement, en fonction de l'épaisseur du film. La diminution des valeurs de la conductivité thermique des films minces par rapport à celles des films épais peut être attribuée à deux causes principales.

Dans la première hypothèse, cette décroissance serait produite de la diffusion des phonons par la frontière à l'interface entre substrat/film et film/élément chauffant. Sachant que le parylène est thermiquement isolant, le transfert thermique se fait par la propagation des vibrations des atomes qui constituent la molécule de parylène C. Ces vibrations, dues à l'agitation thermique, se transmettent progressivement, des zones à haute température aux zones à basse température. Dans ce cas, le transport de la chaleur est dominé par les phonons et le transport des phonons peut être calculé via l'équation 1.17 de la théorie cinétique (principe de Debye) de la conductivité thermique. Pour les matériaux massifs, les phonons ne sont pas diffusés par les

frontières, car ils ne les rencontrent que très peu [Fri 1999]. En diminuant la taille des structures, les phonons sont de plus en plus susceptibles de rencontrer des frontières. L'origine de cette réduction de la conductivité thermique est due à l'existence de quelques phonons (diffusion phonon-phonon) qui contribuent à la conductivité thermique et ont un libre parcours moyen supérieur à un micron [Cah 1989, Sho 2003]. Ainsi, les phonons sont plus susceptibles d'être diffusés par une frontière (diffusion phonon-frontière). En d'autres termes, les phonons qui entrent en contact avec l'interface (frontière), soit se réfléchissent sur l'interface, soit sont transmis via l'interface ou subissent une combinaison des deux. L'occurrence de ces événements peut disperser les phonons et créer une résistance au flux de chaleur. Nous pouvons donc nous attendre à observer une diminution de la conductivité thermique.

La deuxième hypothèse repose sur le fait que le film parylène C est un polymère semi-cristallin avec un degré de cristallinité voisin de 45%, il contient donc des zones cristallines de chaînes alignées et des zones amorphes avec des chaînes torsadées de façon aléatoire. Néanmoins, pour des épaisseurs inférieures à 50 nm ce matériau est considéré comme un polymère amorphe. Rappelons que dans notre cas, nous n'avons pas une information exacte sur l'orientation des chaînes pour les films de parylène C testés et que nous avons effectué nos mesures à température ambiante. Nos échantillons ayant été réalisés par un dépôt par CVD standard, la même structure des films de parylène est conservée.

Des études ont montré que divers traitements améliorent l'adhérence à l'interface et diminuent ainsi la barrière thermique. Par ailleurs, un traitement au plasma sur un polymère au contact d'un métal (aluminium, chrome ...) peut conduire à des réactions chimiques susceptibles de détériorer l'interface [Yu 2007, Has 1987, Mac 2003, Kim 2011].

En résumé, d'une part, la valeur de la résistance de contact déterminée expérimentalement est comparable par rapport à celles trouvées dans la littérature scientifique : $10^{-6} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$ [Yu 2007], $4,6 \times 10^{-7} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$ et $1,9 \times 10^{-6} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$ [Has 1987, Nan 2004].

Une fois que nous avons trouvé expérimentalement la conductivité thermique du film de parylène C ainsi que toutes les résistances thermiques interfaciales, nous pouvons construire un modèle de simulation basé sur la méthode par éléments finis (FEM) sous Comsol plus complet.

5.5 MODELE NUMERIQUE ET SIMULATION PAR FEM

L'objectif de cette partie est d'étudier, par une méthode numérique, une structure aussi proche que possible de celle utilisée lors des mesures. Le comportement de la ligne déposée sur les échantillons (film / substrat) est étudié dans le domaine temporel à l'aide du module « Transfert de chaleur dans les solides » du logiciel Comsol® Multiphysics [Jac 2002]. La structure est simulée par FEM en appliquant les mêmes paramètres que ceux utilisés dans la technique 3-oméga : les géométries exactes de l'élément de chauffage et de l'échantillon en dessous, les limites thermiques et les propriétés physiques exactes des matériaux. La géométrie exacte en 2D de la structure simulée par FEM est donnée sur la figure 5.16.

Rappelons que les propriétés physiques des matériaux et la température sur les faces latérales et au bas de la structure utilisée pour les simulations sont tirées de la littérature et des tableaux 5.2 et 5.3. Nous considérons les dimensions des échantillons (substrat et film), les caractéristiques des éléments de chauffe déposés sur les surfaces des échantillons, les valeurs de la conductivité thermique (valeurs intrinsèques) et de la résistance thermique de contact obtenues expérimentalement. Les valeurs de la capacité thermique spécifique et de la densité de parylène C, tirées de la littérature, sont $C_p = 712 \text{ JKg}^{-1}\text{K}^{-1}$ et $\rho = 1289 \text{ Kgm}^{-3}$ respectivement. Les valeurs de la conductivité thermique, de la capacité thermique spécifique et de la densité du borosilicate et de l'élément chauffant sont disponibles dans la base de données du logiciel Comsol [Com 2012]. Pour compléter le modèle conformément à ce qui été présenté précédemment, deux couches d'interfaces de faible conductivité thermique sont considérées. La première est entre la ligne métallique et le film de parylène et la seconde entre le film de parylène et le substrat.

Afin de comparer les résultats de la simulation par FEM aux valeurs mesurées, trois lignes métalliques déposées sur un substrat en borosilicate (ligne 18, 21 et 24) ont été testées. Les valeurs des puissances, de la température, des dimensions des lignes, de la conductivité thermique, des épaisseurs du film et du substrat sont celles données dans les sections précédentes. Bien évidemment, plus le maillage est fin, plus la solution qui peut être obtenue par cette méthode est précise (Fig. 5.18).

Il est à noter que dans certains travaux, l'interface est modélisée en introduisant un film mince avec les propriétés de l'air [Per 2000], tandis que dans d'autres des coefficients d'interface [Bil 2006], qui sont calculés uniquement à partir du rapport de la conductivité thermique interfaciale

sur l'épaisseur de la couche et qui ne dépendent pas de la capacité thermique volumétrique spécifique de la couche (car elle est considérée comme trop mince), sont utilisés.

Comme il a été indiqué dans les chapitres précédents, les simulations sont effectuées sur la plage de fréquences du régime linéaire. Lorsque la variation d'oscillation de température est stable par rapport à la fréquence angulaire 2ω , nous pouvons déterminer l'amplitude A_T des oscillations de température ΔT_{AC} à la fréquence 2ω ainsi que son déphasage φ par rapport à la source de chaleur (Eq. 3.4). Enfin, les oscillations de température obtenues par FEM ont été tracées en fonction du logarithme de la fréquence d'excitation thermique 2ω . Puis une étude de comparaisons des résultats expérimentaux avec ceux issus de l'application de la solution analytique de Cahill est réalisée.

La figure suivante (Fig. 5.18), représente le maillage de la structure simulée sous Comsol et les résistances thermiques interfaciales élément de chauffe/film de parylène C et film de parylène C/substrat (en violet).

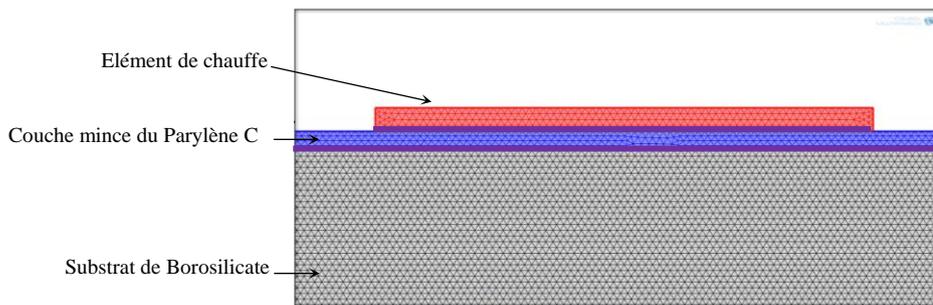


Figure 5. 18 : Maillage de la structure simulée par FEM. Les zones marquées en couleur violette représentent les résistances thermiques de contact ligne/film et film/substrat.

Après plusieurs simulations, il a été constaté que la résistance thermique interfaciale se répartissait de manière très déséquilibrée entre les résistances thermiques interfaciales élément de chauffe/film de parylène C et film de parylène C/substrat. En effet, la résistance thermique interfaciale correspondant à ligne/film de parylène est de l'ordre de 3 % (soit $1,49 \times 10^{-8} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$) tandis que celle correspondant à film de parylène C/substrat est de l'ordre de 97 % (soit $4,83 \times 10^{-7} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$). La contribution majeure de la résistance interfaciale existant entre le film de parylène C et la surface du substrat est très probablement due à la couche d'adhérence de Silane.

Dans la figure 5.19 nous montrons une comparaison entre les résultats expérimentaux et ceux issus de la simulation FEM pour l'amplitude de l'oscillation de température et la résistance thermique pour les lignes 18, 21 et 24.

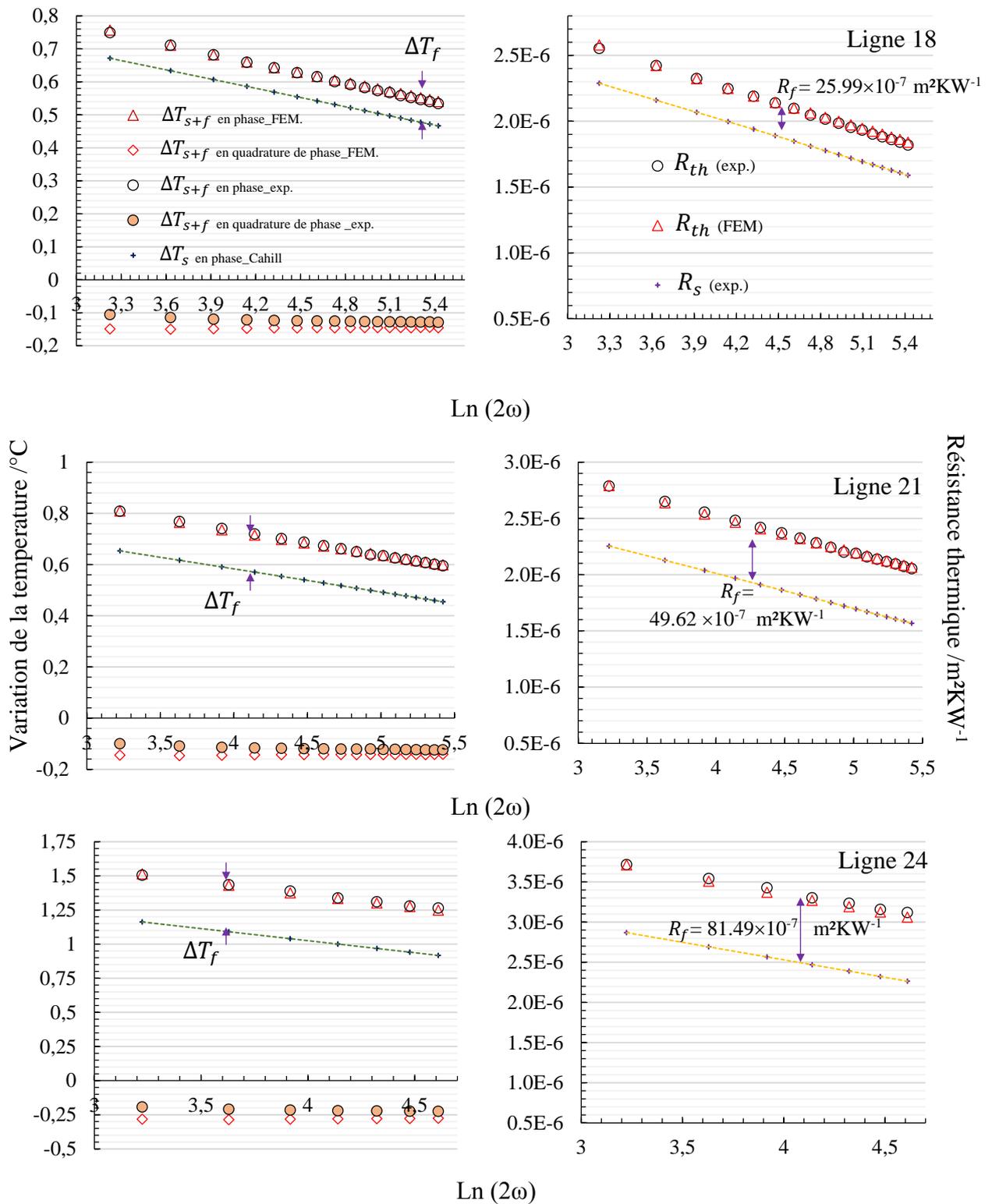


Figure 5. 19 : Composantes en phase et déphasées des oscillations de température (à gauche), obtenues par différentes méthodes (FEM et mesure), pour les lignes 18, 21 et 24 en fonction de $\ln(2\omega)$, à droite évolution des résistances thermiques.

(Sur la plage de fréquences du régime linéaire).

La figure 5.19 (à gauche) présente les composantes de l'oscillation de la température ΔT_{s+f} obtenues pour les lignes 18, 21, et 24. Les cercles creux et pleins représentent, respectivement, les composantes en phase et en quadrature de phase de l'oscillation de la température ΔT_{s+f} expérimentales. Les triangles et les losanges creux représentent, respectivement, les composantes en phase et en quadrature de phase de l'oscillation de la température ΔT_{s+f} simulées par FEM sous Comsol. Alors que la ligne discontinue en vert avec des croix bleues représente les oscillations de température du substrat de borosilicate seul ΔT_s , calculées selon la solution de Cahill (Eq.2.48).

Sur la droite de la figure 5.19, nous avons présenté également une comparaison entre la résistance thermique des films de parylène C obtenue expérimentalement et celle trouvée par notre modèle de simulation par FEM, pour le même ensemble de lignes (18, 21 et 24). Les cercles et les triangles creux présentent, respectivement, les résistances thermiques totales (film+substrat) mesurée et simulée sous Comsol.

Ces figures montrent une cohérence entre les résultats expérimentaux et ceux simulés sous Comsol. Rappelons que la différence entre les deux réponses relevées pour la composante en phase de la variation de la température (de même pente), due à la présence du film de parylène C, conduit à la variation de température ΔT_f .

Les résultats reportés dans le tableau 5.4 permettent une comparaison entre les résistances thermiques effectives des films de parylène C obtenues par la simulation FEM et celles des mesures.

Épaisseur du film d_f /nm	Ligne	Résistance thermique par FEM / m^2KW^{-1}	Résistance thermique expérimentale / m^2KW^{-1}	Ecart type standard (SD)
210	18	25.558×10^{-7}	$(25.990 \pm 1.613) \times 10^{-7}$	3.075×10^{-8}
440	21	50.309×10^{-7}	$(49.620 \pm 0.977) \times 10^{-7}$	4.871×10^{-8}
760	24	81.052×10^{-7}	$(81.490 \pm 3.0.85) \times 10^{-7}$	3.095×10^{-8}

Tableau 5.4 : Résistances effectives de film de parylène C, pour les lignes 18, 21 et 24, obtenues expérimentalement et par simulation FEM.

D'après les résultats du tableau ci-dessus, nous constatons que la différence entre les valeurs de la résistance thermique des films de parylène C obtenues par notre modèle de simulation par la FEM et celles mesurées ne dépasse pas 0,85 %. Pour mieux apprécier les résultats, les données sont reportées sur la figure suivante (Fig. 5.20).

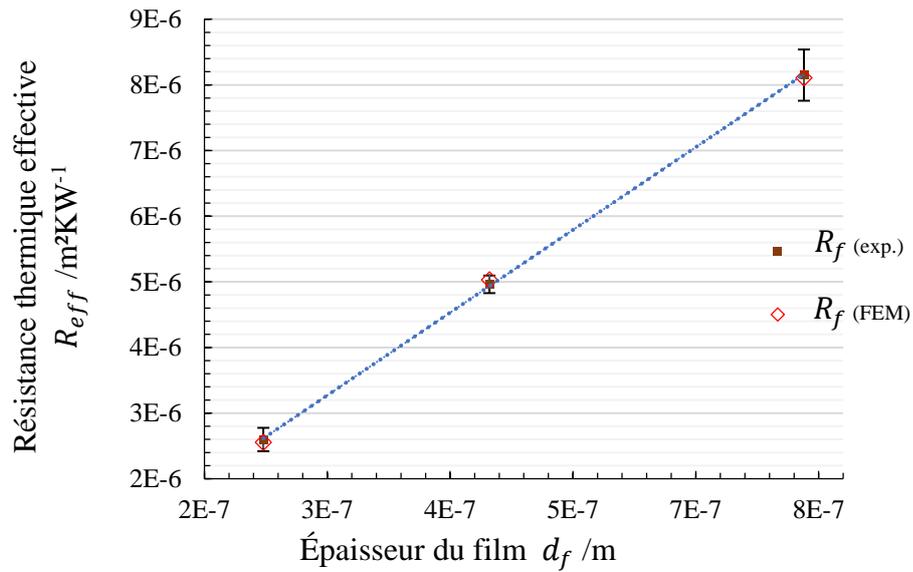


Figure 5.20 : Représentation de la résistance thermique effective des couches de parylène en fonction de l'épaisseur du film obtenue par différentes méthodes (FEM et mesure).

Sur la figure ci-dessus (Fig. 5.20), les données de la résistance thermique du film de parylène calculées par FEM sont formées par des losanges en rouge et la ligne discontinue est l'ajustement linéaire des données.

Par cette approche de modélisation FEM, nous avons pu prendre en compte les résistances thermiques interfaciales et ainsi simuler une structure plus proche de la réalité. Le bon accord obtenu entre la mesure et les données FEM démontre que nous avons donc à notre disposition un outil puissant, complémentaire des solutions analytiques, pour la description fine des propriétés thermiques des matériaux en couches minces.

5.6 CONCLUSION

Dans la première partie de ce chapitre nous avons présenté un état de l'art sur les parylènes et en particulier le parylène C. Nous avons mentionné, en particulier, les champs d'application et d'utilisation des parylènes. Ensuite, nous avons proposé une description relativement détaillée du processus de dépôt d'un film de parylène C (d'épaisseur 210, 440 et 760 nm) par CVD sur des substrats en borosilicate. Puis, nous avons discuté du dépôt des lignes de chauffe (Au/Cr) par la photolithographie optique.

Dans la seconde partie, nous avons caractérisé la conductivité thermique du substrat en borosilicate (pour les 3 échantillons), celle-ci vaut $k_s = (1,139 \pm 0,058) \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$. Cette valeur a été déterminée à partir de la pente du tracé de la partie réelle de la variation de température expérimentale (ou de la troisième harmonique de la tension aux bornes des lignes de chauffe métalliques) en fonction du logarithme népérien de la fréquence angulaire 2ω . Ensuite, nous avons également déterminé (par la méthode différentielle) la valeur de la conductivité thermique effective et intrinsèque des films de parylène C d'épaisseur de 210, 440 et 760 nm obtenue par la technique 3-oméga. Nous avons constaté que la conductivité thermique obtenue augmente en fonction de l'épaisseur du film. Cette croissance est produite, d'une part, par le phénomène de diffusion des phonons par la frontière à l'interface substrat/film et film/élément chauffant. En fait, en diminuant la taille des structures, les phonons sont de plus en plus susceptibles de rencontrer des frontières et peuvent soit se réfléchir sur l'interface, soit être transmis via l'interface ou ils subissent une combinaison des deux. Ces événements peuvent disperser les phonons et créer une résistance au flux de chaleur. D'autre part, le fait que le film parylène C est un polymère semi-cristallin avec un degré de cristallinité égal à 45%, il contient donc des zones cristallines de chaînes alignées et des zones amorphes avec des chaînes torsadées de façon aléatoire. Ce matériau est considéré comme un polymère amorphe pour des épaisseurs inférieures à 50 nm. Dans notre cas, nous avons conservé la même structure des films de parylène pour toute l'étude (réalisés par un dépôt par CVD standard, sans modification de l'orientation des chaînes et les mesures sont effectuées à température ambiante).

Dans la troisième partie, nous avons pu caractériser la résistance thermique des films ainsi que la résistance thermique interfaciale (de contact). Cette dernière étant constituée de la somme de deux résistances de contact thermique (ligne de chauffage/ film de parylène C et le film de parylène C/substrat). Nous avons trouvé une résistance interfaciale totale (R_{int}) égale à

$4,98 \times 10^{-7} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$, ce qui est proche des valeurs généralement disponibles dans la littérature scientifique.

Finalement, nous avons proposé un modèle de conduction thermique pour la méthode 3ω basé sur la méthode des éléments finis (FEM) utilisant le logiciel Comsol® Multiphysics. La structure est simulée par FEM en appliquant les mêmes paramètres que ceux utilisés dans la technique des 3-oméga : les géométries exactes de l'élément de chauffage et de l'échantillon en dessous, les limites thermiques et les propriétés physiques exactes des matériaux. Pour décrire parfaitement notre modèle avec les éléments finis, il a été nécessaire d'ajouter à la structure simulée une résistance de contact entre d'une part l'élément chauffant et le film de parylène C et d'autre part le film de parylène C et le substrat de BrSiO₂. Pour cela, nous avons considéré la résistance de contact thermique sous la forme d'une couche très mince thermo résistive. Ensuite, une étude de comparaisons des résultats expérimentaux avec ceux issus de l'application de la solution analytique de Cahill a été réalisée. Enfin, cette modélisation sous Comsol nous a permis d'estimer une répartition des résistances thermiques interfaciales. Celle-ci est la suivante : 3 % pour la ligne de chauffe/film de parylène C et 97 % pour le film de parylène C/substrat. La contribution majeure de la résistance interfaciale entre le film de parylène C et la surface du substrat est très probablement due à la couche d'adhérence de silane.

Cette étude met à notre disposition une description fine des propriétés du parylène C en couche mince qui représente un matériau à fort potentiel pour de nombreuses applications. De plus, celle-ci souligne et évalue les effets interfaciaux qui influencent la conductivité thermique.

5.7 BIBLIOGRAPHIE

- [Abr 1970] M. Abramowitz and I. Stegun,
Handbook of Mathematical Functions,
Dover Publications Inc, 9th edition, (1970).
- [Akh 2018] K. Akhtar, S. A. Khan, S. B. Khan, A. M. Asiri,
Scanning Electron Microscopy: Principle and Applications in Nanomaterials
Characterization,
In: Sharma S. (eds) Handbook of Materials Characterization. Springer, Cham. pp. 113-
145, (2018). https://doi.org/10.1007/978-3-319-92955-2_4
- [Ale 1996] L. Alexandrova, R. Vera-Graziano,
Polymeric Materials Encyclopedia
Edition J. C. Salanlone, CRC press, New York, (1996).
- [Ash 2003] W. R. Ashurst, C. Carraro, R. Maboudian,
Vapor Phase Anti-Stiction Coatings for MEMS,
IEEE Transactions on Device and Materials Reliability, Vol. 3, pp. 173-178, (2003).
- [Bah 2014] P. Bahrami, N. Yamamoto, Y. Chen, H. Manohara,
Capacitance-based damage detection sensing for aerospace structural composites.
Sensors and Smart Structures Technologies for Civil.
Chapter in Book/Report/Conference proceeding › Conference contribution, Aerospace
Engineering Materials Research Institute (MRI). Vol. 9061. (2014).
- [Bea 1978] W. F. Beach,
A Model for Vapor Deposition Polymerization of p-Xylylene.
Macromolecules Vol. 11(1): pp. 72-76, (1978).
- [Bea 1988] W. F. Beach,
xylylene polymer ”, encyclopedia of chemical technology,
Newyork. 4th edition 863 – 901, (1988).
- [Bha 1986] S. K. Bhattacharya,
Metal-Filled Polymers - Properties and Applications.
New York : Marcel Dekker, (1986).<https://doi.org/10.1002/pol.1987.140250605>
- [Bil 2006] J. Bilek,
Sensors for the Thermal Conductivity at High Temperatures,
Phd. Thesis, University of Southampton-Southampton, (2006).
- [Bor 2017] M. Bogner, G. Benstetter, Y.Q. Fu,
Cross- and in-plane thermal conductivity of AlN thin films measured using differential
3-omega method.
Surf Coat Technol. Vol. 320: pp. 91–6, (2017).
- [Bri 2006] A. L. Briseno, S.C. B. Mannsfeld, M.-M. Ling, S. Liu, Y. Yang, F. Wudl and Z. Bao,
Patterning organic single-crystal transistor arrays,
Nature, vol. 444, pp. 913-917, (2006).
- [Brö 2017] S. F. Bröskamp, D. Redka, A. Möhlmann, G. Franz, and D. Jocham.
Chemical vapor deposition of poly-p-xylylene in narrow tubes.
AIP Advances, Vol. 7, 075005 (2017); <https://doi.org/10.1063/1.4994678>
- [Cah 1987] D. G. Cahill, R. O. Pohl,
Thermal conductivity of amorphous solids above the plateau,
Physical Review B, Vol. 35 (8), pp. 4067-73, (1987).

- [Car 1965] F.E. Cariou, D.J. Valley and W.E. Loeb,
Poly-Para-Xylylene in Thin Film Applications.
IEEE- Proceedings of the electronic compound Conference. NewYork.; Vol. 54, (1965)
- [Cau 2008] J.C. Cau, A. Cerf, C. Thibault, Geneviève M., Séverac and C. Vieu, ,
Chemical engineering of silicon oxide surfaces using micro-contact printing for
localizing adsorption events of nanoparticles, dendrimers and bacteria
Microelectronic Engineering, Vol. 85: pp. 1143–1146, (2008)
- [Che 2017] X. Chen, M. An, R. Guo, H. Feng, N. Tang, J. Zang, N. Yang,
The measurements of thermal conductivity of polyethylene thin film.
In: 1st ACTS proceedings of the Asian conference on thermal sciences. Jeju Island-
Korea. (2017).
- [Cho 1977] C. L. Choy,
Thermal Conductivity of Polymers,
Polymer, Vol. 18, No. 10, pp. 984-1004. (1977) [doi:10.1016/0032-3861\(77\)90002-7](https://doi.org/10.1016/0032-3861(77)90002-7)
- [Com 2020] <http://www.comelec.ch/>
- [Con 2020] http://www.conformalcoating.com/parylene_resources.html
- [Dai 2002] H. Dai,
Carbon nanotubes: opportunities and challenges,
Surface Science, vol. 500, pp. 218–241, (2002).
- [Dim 2002] C. D. Dimitrakopoulos and P. R. L. Malenfant,
Organic Thin Film Transistors for Large Area Electronics,
Advanced Materials, vol. 14, pp. 99-117, (2002).
- [Ell 2008] M. Ellis, L. Po-Ying, T. Yu-Chong,
A biocompatible Parylene thermal flow sensing array,
Sensors and Actuators A Vol. 144, pp. 18–28 (2008). [doi:10.1016/j.sna.2007.12.010](https://doi.org/10.1016/j.sna.2007.12.010)
- [Fan 2004] Z. Fan, J.M. Engel, J. Chen, C. Liu,
Parylene surface-micromachined membranes for sensor applications.
Journal of Microelectromechanical Systems. Vol. 13(3): 484–490, (2004).
- [Fei 2006] D. Feili, M. Schuettler, T. Doerge, S. Kammer,
Flexible organic field effect transistors for biomedical microimplants using polyimide
and parylene C as substrate and insulator layers,
J. Micromech. Microeng, Vol. 16(8), pp. 1555-1561, (2006). [doi:10.1088/0960-1317/16/8/016](https://doi.org/10.1088/0960-1317/16/8/016)
- [For 2004] B. J. Fortin and T. M. Lu,
Chemical Vapor Deposition Polymerization: The Growth and Properties of Parylene
Thin Films.
Boston: Kluwer Academic Publishers, (2004).
- [Fra 1993] R. Frank, V. Drach, J. Fricke,
Determination of thermal conductivity and specific heat by a combined 3ω /decay
technique,
Review of Scientific Instruments. Vol. 64, N° 3, pp. 760-5, (1993).
- [Fri 1999] J.F. Friedrich, W.E.S. Unger, A. Lippitz, I. Koprinarov, G. Kühn, St Weidner, L. Vogel
Chemical reactions at polymer surfaces interacting with gas plasma or with metal atoms
- their relevance to adhesion.
Surface & Coatings Technology. Elsevier. (116-119): pp. 772–782. (1999)

- [Goa 2016] W. Gao, S. Emaminejad, H. Y. Y. Nyein, S. Challa,
Fully integrated wearable sensor arrays for multiplexed in situ perspiration analysis.
Nature Vol. 529, (2016).
- [Gor 1966] W. J. Gorham,
A New, General Synthetic Method for the Preparation of Linear Poly-p-xylylenes
Polym. Sci. A-1, Vol. 4, pp. 3027- 3039, (1966).
- [Gow 2009] S. Gowrisanker, S. Gowrisanker, M.A. Quevedo-Lopez, H.N. Alshareef, B.E. Gnade,
Time dependent breakdown characteristics of parylene dielectric in metal–insulator–
metal capacitors,
Organic Electronics, Vol. 10, pp.1024–1027, (2009).
<https://doi.org/10.1016/j.orgel.2009.05.003>
- [Gri 1994] A.J. Griffin, F.R. Brotzen and P.J. Loos,
The effective transverse thermal conductivity of amorphous Si₃N₄ thin films.
J Appl Phys. Vol. 76 : pp. 4007, (1994).
- [Gri 2015] O. Grinberg, M. Natan, A. Lipovsky, A. Varvak, H. Keppner, A. Gedanken, E. Banin,
Antibiotic nanoparticles embedded into the Parylene-C layer as a new method to prevent
medical device-associated infections,
J. Mater. Chem. B, Vol.3: pp. 59–64, (2015).
- [Hab 2003] K. M. Haberstroh, A. Thapa
Nano-structured polymers enhance bladder smooth muscle cell function.
Biomaterials Vol. 24(17): pp. 2915-2926, (2003).
- [Has 1987] D.P.H. Hasselman, L. Johnson
Effective conductivity of composites with interfacial thermal resistance.
J. Composite Materials. Vol.21: pp. 508–515, (1987)
- [Her 2006] P. Heremans,
Semiconductor electronics: Organic crystals at large,
Nature, vol. 444, pp. 828-831, (2006).
- [Ho 2003] P. S. Ho, J. Leu et W. W. Lee,
Low Dielectric Materials for IC Applications,
eBook: Collection : advanced microelectronics, pp. 95 – 119. (2003).
- [Hu 2009] L. Hu, L. Hu, D.S. Hecht and G. Grüner,
A method of fabricating highly transparent and conductive interpenetrated carbon
nanotube–parylene networks,
Nanotechnology, Vol. 20(46), pp.465304, (2009).
- [Jac 2002] A. Jacquot, B. Lenoir, A. Dauscher, M. Stolzer, J. Meusel,
Numerical simulation of the 3 ω method for measuring the thermal conductivity.
J. of Applied Physics. Vol. 91: pp. 4733–4738. (2002)
- [Jcl 2016] Justified and Customized Layers sàrl (JLC), (2016)
<http://thinkthinfilm.ch>
- [Kah 2009] A. Kahouli, A. Sylvestre, L. Ortega, F. Jomni, B. Yangui, J.-C.Robert, et J. Legrand,
Structural and dielectric study of parylene C thin films
Appl. Phys. Lett. Vol. 94, 152901, (2009); <https://doi.org/10.1063/1.3114404>
- [Kah 2011] A. Kahouli
Étude des propriétés physico-chimiques et (di)-électriques du parylène C en couche
mince.

- Thèse de doctorat - Universités de Grenoble et de Carthage (2011). <https://tel.archives-ouvertes.fr/tel-00627040>
- [Kar 2006] S. Kar, A. Vijayaraghavan,
Quantitative analysis of hysteresis in carbon nanotube field-effect devices,
Appl. Phys. Lett., Vol. 89, pp. 132118, (2006). <https://doi.org/10.1063/1.2358290>
- [Kat 1994] M. Katiyar, D. G Cahill and J. R. Abelson
Thermal conductivity of a-si:h thin films,
Phys. Rev. B, Vol. 50: pp. 6077-6081, (1994).
- [Kim 2010] J.W. Kim, H.S. Yang, Y.H. Jun and K.C. Kim.
Interfacial effect on thermal conductivity of diamond-like carbon films.
J. of Mechanical Sci. and Technology. Vol. 24(7): pp. 511–1514. (2010).
- [Kim 2011] J.W. Kim, G.E. Jeong, and H.S. Yang,
Thermal conductivity of Gd₂Zr₂O₇ thin films using thermal-impedance method.
Phys. Status Solidi A Vol. 208 (5): pp.1105–1110. (2011)
- [Kim 2016] B.J Kim, W. Jin, A. Baldwin,
Parylene MEMS patency sensor for assessment of hydrocephalus shunt obstruction.
Biomed Microdevices Vol.18: pp. 87. (2016) : [doi:10.1007/s10544-016-0112-9](https://doi.org/10.1007/s10544-016-0112-9)
- [Kim 2017] Y. Kima, Jin Won Kimb, Jungkwun Kimc, Moses Noha,
A novel fabrication method of Parylene-based microelectrodesutilizing inkjet printing.
Sensors and Actuators B Vol. 238; pp. 862–870, (2017).
- [Kis 2021] www.kiscoparylene.com
- [Kon 2008] D. De Koninck
Thermal conductivity measurements using the 3-omega technique: Application to power
harvesting Microsystems,
Master's thesis, McGill University, pp. 13, 31, 38, 40, (2008).
- [Kra 1984] P. Kramer, A.K. Sharma, E.E. Hennecke, H. Yasuda,
Polymerization of para-xylylene derivatives (parylene polymerization). I. Deposition
kinetics for parylene N and parylene C.
J. of Polymer Science. Vol. 22: 475. (1984);
- [Kup 2015] S. Kuppusami, R. H Oskouei,
Parylene Coatings in Medical Devices and Implants
Universal Journal of Biomedical Engineering Vol. 3(2): pp. 9-14, (2015).
- [Lam 2008] R. Lam, M. Chen, E. Pierstorff, H. Huang, E. Osawa, D. Ho,
Nano diamond -Embedded Microfilm Devices for Localized Chemotherapeutic Elution,
ACS Nano Vol. 2, pp. 2095–2102, (2008). [DOI: 10.1021/nm800465x](https://doi.org/10.1021/nm800465x)
- [Lee 1997] S.-M. Lee and D. G. Cahill,
Heat transport in thin dielectric films
Journal of Applied Physics, Vol. 81, 2590 (1997); <https://doi.org/10.1063/1.363923>
- [Li 2010] W. Li , C.R. Damien, E. Meng, D. James Weiland, M.S. Humayun, Y. Tai,
Wafer-Level Parylene Packaging With Integrated RF Electronics for Wireless Retinal
Prostheses.
Journal of Microelectromechanical Systems. Vol. 19(4): pp. 735–742, (2010)
- [Lin 2006] H. Lin and S. Tiwari,
Localized charge trapping due to adsorption in nanotube field-effect transistor and its
field-mediated transport,
Appl. Phys. Lett., Vol. 89, pp. 073507, (2006).

- [Loo 2002] Y. L. Loo, T. Someya, K.W. Baldwin, Z. Bao, P. Ho, A. Dodabalapur, Soft, conformable electrical contacts for organic semiconductors: High-resolution plastic circuits by lamination, PNAS, vol. 99, pp. 10252–10256, (2002). <https://doi.org/10.1073/pnas.162128299>
- [Luh 2006] R. Luharuka, H. Noh, S. K. Kim, H. Mao, L. Wong and P.J. Hesketh, Improved manufacturability and characterization of a corrugated parylene diaphragm pressure transducer, J. Micromech. Microeng., Vol. 16 (8), pp. 1468-1474, (2006).
- [Mac 2003] F. Macedo, J.A. Ferreira
Thermal contact resistance evaluation in polymer-based carbon fiber composites. Review of scientific instruments. American Institute of Physics, Vol. 14(1): pp. 828-830, (2003).
- [Mas 2009] F. Masato, I. Taichi, N. Toshihiko, T. I. Hidekuni, Makoto, S. Kazuaki, Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 48: 04C184, (2009).
- [Mat 2001] S. Matar and L.F. Hatch,
Chemistry of Petrochemical Processes,
Houston, TX: Gulf Professional Publishing, (2001).
- [Mat 2018] J.P. Matinlinna, C.Y.K. Lung, T. Hn,
Silane adhesion mechanism in dental applications and surface treatments. Journal Dental Materials Science. Vol. 34: pp. 13–28, (2018)
- [Mau 2007] F. Maury, F.-D. Duminica, and F. Senocq,
Optimization of the Vaporization of Liquid and Solid CVD Precursors: Experimental and Modeling Approaches
Chem. Vap. Deposition, Vol. 13: pp. 638-643, (2007).
- [Men 2008] E. Meng, P-Y. Li, and Y-C. Tai,
A biocompatible Parylene thermal flow sensing array
Sensors et Actuators A,1 Vol. 44 : pp. 18–28, (2008).
- [Met 2013] R.P.V. Metzen, T. Stieglitz,
The effects of annealing on mechanical, chemical and physical properties and structural stability of Parylene C.
Biomedical Microdevices. Vol. 15; pp. 727–735, (2013).
- [Mon 2011] C. Monika, K. Engvall, J. Pan, A. Kotarba,
Silane–parylene coating for improving corrosion resistance of stainless steel 316L implant material,
Corrosion Science, Vol. 53 : pp. 296–301, (2011).
- [Moo 1996] I.K. Moon, Y. H. Jeong, and S. I. Kwun
The three omega technique for measuring dynamic specific heat and thermal conductivity of a liquid or solid,
Review of Scientific Instruments, Vol. 67, pp 29-35, (1996).
- [Nak 1996] Y. Nakamura, Y. Suzuki, and Y. Watanabe,
Effect of oxygen plasma etching on adhesion between polyimide films and metal,
Thin Solid Films, vol. 290- 291, pp. 367- 369, (1996).
- [Nan 2004] C.W. Nan, G. Liu, Y. Lin, M. Li,
Interface effect on thermal conductivity of carbon nanotube composites,
Applied Physics Letters Vol. 85 pp. 3549-355 1. (2004)
- [Nar 2008] K.N.U. Narayanan, S. Dabos-Seignon, A.K. Pandey, J.-M. Nunzi,

- Influence of the polymer dielectric characteristics on the performance of pentacene organic field-effect transistors
Solid-State Electronics, Vol. 52: pp. 179–181, (2008).
- [Noh 2004] H.-S. Noh, K.-S. Moon, A. Cannon, P.-J. Hesketh and C.P. Wong,
Wafer bonding using microwave heating of parylene intermediate layers,
J. Micromech. Microeng., Vol. 14(4), pp. 625-631, (2004).
- [Par 2011] "PARYLENE KNOWLEDGE." The Parylene Leader - Specialty Coating Systems.
Web. 07 Nov. 2011. <http://www.scscoatings.com/parylene_knowledge/index.aspx>.
- [Par 2020] www.parylene.com
- [Per 2000] M.V. Peralta-Martinez,
Thermal Conductivity of Molten Metals,
Phd. Thesis, Imperial College- London, (2000).
- [Pho 2020] Photoresist AZ nLof 2020 Photoresists MicroChemicals GmbH, [En ligne]:
https://www.microchemicals.com/products/photoresists/az_nlof_2020.html.
- [Rau 2013] S. Rausch, D. Rauh, C. Deibel, S. Vidi, H.P. Ebert,
Thin-film thermal conductivity measurement on semi-conducting polymer material
using the 3ω technique.
Int J Thermophys. Vol. 34: pp. 820–30, (2013).
- [Run 1997] J.P. Runt, J.J. Fitzgerald,
Dielectric Spectroscopy of Polymeric Materials: Fundamentals and Applications
American Chemical Society, Washington, DC, (1997).
- [Sab 2009] S.S. Sabri, P.L. Lévesque, C.M. Aguirre, J. Guillemette, R. Martel, et T. Szkopek,
Graphene field effect transistors with parylene gate dielectric,
App. Phys. Letters, Vol. 95(24), pp. 242104. (2009). <https://doi.org/10.1063/1.3273396>
- [Scs 2021] Specialty coating systems
Parylene deposition process
<https://scscoatings.com/parylene-coatings/parylene-deposition/>
- [Sel 2010] S. Selvarasah,
Ultrathin and highly flexible parylene-c packaged carbon nanotube field effect
transistors
PhD Thesis, Northeastern University Boston, Massachusetts (2010)
- [Sel 2010] S. Selvarasah, X. Li, A. Busnaina and M.R. Dokmeci,
Parylene-C passivated carbon nanotube flexible transistors.
Applied Physics Letters. Vol. 97: pp. 153120, (2010).
- [Sen 1999] J.J. Senkevich et S.B. Desu,
Morphology of poly(chloro-p-xylylene) CVD thin films.
Polymer, Vol. 40 ; pp. 5751–5759 (1999)
- [Sen 2000] J.J. Senkevich, S.B. Desu, V. Simkovic,
Temperature studies of optical birefringence and X-ray diffraction with poly(p-
xylylene), poly(chloro-p-xylylene) and poly(tetrafluoro-p-xylylene) CVD thin films
Polymer Vol. 41 : pp. 2379–2390, (2000).
- [Sha 2003] W.Z. Shao, V.V. L. Ivanov, Zhen, Y.S. Cui, Y. Wang,
A study of graphitization of diamond in copper-diamond composite materials.
Materials letters. Elsevier.; Vol. 58: pp. 146–149. (2003)
- [Sim 2009] Simon, T.,

- Experience curves in the world polymer industry quantifying reductions in production cost, M.S.
PhD Thesis, Utrecht University, Utrecht, Netherlands, (2009).
- [Som 2004] T. Someya, T. Sekitani, S. Iba, Y. Kato, H. Kawaguchi, and T. Sakurai,
A large-area, flexible pressure sensor matrix with organic field-effect transistors for artificial skin applications,
PNAS, vol. 101, pp. 9966-9970, (2004). <https://doi.org/10.1073/pnas.0401918101>
- [Spe 2006] L. H. Sperling,
Introduction to Physical Polymer Science,
Bethlehem, PA: Wiley, (2006).
- [Sta 1996] N. Stark,
Literature review: biological safety of parylene C,
Plastics Biomater, Vol. 3: pp. 30–35, (1996).
- [Ste 1983] G. R. Steward
Measurement of low-temperature specific heat,
Review of scientific instrument, Vol. 58(1), pp. 1-11, (1983).
- [Szw 1947] M. Szwarc,
Some remarks on the CH₂=CH₂ molecule,
Faraday Society Discussions, Vol. 2: pp. 46, (1947).
- [Tom 2006] O. Tomoaki, N. Ichiro, S. Yukio, Y. Takeshi, et T. Tetsuo,
Low-Operating-Voltage Organic Field-Effect Transistors with Poly-p-Xylylene/High-k Polymer Bilayer Gate Dielectric
Japanese Journal of Applied Physics, Vol. 45(8L): pp. 770–772, (2006).
- [Var web] www.varioptic.com/
- [Wad 2006] S. Wadhawani,
Parylene coatings and application.
Journal Paint and coatings industry.; pp. 32–44, (2006).
- [Wat 2015] A. M. Watson, Kevin Dease, Soraya Terrab,1 Christopher Roath, Juliet T. Gopinath, and Victor M. Bright
Focus-tunable low-power electrowetting lenses with thin Parylene films,
Applied Optics Vol. 54, pp. 6224 – 6229, (2015)
- [Wie 2013] R. A. Wiedle,
Thermal conductivity measurements of amorphous thin films on silicon via the 3 ω method,
PhD Thesis: Oregon State University - University Honors College (USA), (2013).
- [Wol 2012] L. Wolgemuth,
Parylene seminar,
Business Park Hotel Genève - Thoery, (2012).
- [Xia 2009] H. Xianju, Y. Weihong, W. Wei, Z. Chan, G. Chengchen, W. Xuqian, X.-Y. Zhikun, L. Zhihong and D. Fangtian,
Flexible Microelectrode Array on Parylene for Subretinal Stimulation and its Biocompatibility Test
Advanced Materials Research, Vol. 60-61 pp. 425-429, (2009).
- [Yak 2016] T. Yokota, P. Zalar, M. Kaltenbrunner, H. Jinno, N. Matsuhisa,
Ultra-flexible organic photonic skin
Sci. Adv. Vol. 2: e1501856 15, (2016).

- [Yam 2002] T. Yamane, N. Nagai, S. Katayama and M. Todoki,
Measurement of thermal conductivity of silicon dioxide thin films using a 3ω method.
Journal of Applied Physics. Vol. 91(12). (2002).
- [You 2011] R. J. Young and P. A. Lovell,
Introduction to Polymers,
Boca Raton, FL: CRC Press, (2011).
- [Yu 2007] P. Yu, L.C. Zhang, W.Y. Zhang, J. Das, K.B. Kim, J. Eckert,
Interfacial reaction during the fabrication of Ni60Nb40 metallic glass particles-
reinforced Al based MMCs.
Materials Science & Engineering A.; Vol. 444: pp. 206–213. (2007)
- [Zen 2003] J. Zeng,
Meso- and nano-scaled polymer fibers and tubes fabrication, functionalization, and
characterization.
PhD thesis, Philipps University Marburg. (2003)
- [Zha 2006] J. Zhang, A. Boyd, A. Tselev, M. Paranjape, and P. Barbara,
Mechanism of NO₂ detection in carbon nanotube field effect transistor chemical sensors,
Appl. Phys. Lett., Vol. 88, pp. 123112, (2006). <https://doi.org/10.1063/1.2187510>
- [Zha 2007] L.W. Zhao, D.W. Tang and X. H. Zheng,
Simultaneous determination of thermal conductivity of thin film and substrate by
extending 3ω -method to wide frequency range,
Applied Surface Science. Vol. 253, pp 9024-9029, (2007).
- [Zwe 1999] C. Zweben,
High performance thermal management materials.
3, s.l. : Electronics Cooling, sept., Vol. 5. (1999)

CONCLUSION GENERALE

CONCLUSION GENERALE

Actuellement, les matériaux solides (flexibles et rigides) déposés en couches minces trouvent de nombreuses applications dans les secteurs industriel et académique de différents domaines : médical, militaire, électronique et microélectronique, etc... . Aussi, la connaissance des propriétés thermiques, en particulier la conductivité thermique, de ce type de matériaux est essentielle pour optimiser les performances de nombreux dispositifs. En effet, la conductivité thermique des films minces, et des structures multicouches en film mince, est différente de celle des matériaux massifs. De nombreuses techniques de mesure de la conductivité thermique des films minces ont connu des développements significatifs. Parmi elles, nous trouvons la technique différentielle 3-oméga (3ω) qui a été largement utilisée en raison de sa simplicité de mise en œuvre, sa précision et les faibles pertes de chaleur par rayonnement thermique occasionnées au cours des mesures. Compte tenu de ces avantages, nous l'avons retenue pour notre étude.

Dans le premier chapitre de ce manuscrit, nous avons d'abord présenté brièvement un état de l'art des théories essentielles sur le transfert de chaleur et les propriétés thermophysiques des matériaux. Puis, des méthodes permettant de déterminer ces propriétés, en particulier la conductivité thermique, ont été présentées. Globalement, ces méthodes peuvent être divisées en deux catégories, les méthodes en régime permanent et les méthodes transitoires. Par exemple, parmi les méthodes en régime permanent qui nécessitent donc une durée de mesure importante et une grande taille d'échantillon, nous trouvons la méthode de la plaque chauffante gardée ou encore la méthode de flux de chaleur radiale. Pour ce qui concerne les méthodes transitoires, qui se caractérisent en particulier par un temps de mesure réduit, nous avons présenté la méthode du fil chaud, la méthode du plan chaud et la méthode 3-oméga. Nous avons vu que chacune d'entre elles possède des avantages et des inconvénients et que le choix de l'une ou l'autre dépend des besoins spécifiques des travaux menés.

Dans le deuxième chapitre nous avons présenté les éléments théoriques nécessaires à la détermination de la conductivité thermique d'un échantillon par la méthode 3-oméga. Dans un premier temps, le principe de cette méthode introduite par D. G. Cahill en 1990 a été décrit. Dans cette technique une ligne métallique déposée sur la surface de l'échantillon à caractériser sert simultanément, à perturber thermiquement le système et à capter les variations de température. Ensuite nous avons établi l'expression de la variation de la température quand l'élément de chauffe est considéré comme une ligne unidimensionnelle à l'intérieur d'un milieu

de forme semi-cylindrique (milieu semi-infini). Nous avons vu que la formule de Cahill est composée de deux parties : une partie réelle (in-phase) de la variation de température qui décroît linéairement par rapport à $\ln(2\omega)$ et une partie imaginaire (out-of-phase), qui est une constante négative. La conductivité thermique est alors directement extraite de la pente du tracé de la composante en phase de la tension de la 3^{ème} harmonique en fonction de $\ln(2\omega)$. Trois régimes thermiques ont été distingués en fonction de la profondeur de la pénétration de l'onde thermique : planaire, transitoire et linéaire. Le régime linéaire, dont les limites fréquentielles sont déterminées pour une profondeur de pénétration thermique bien supérieure à la demi-largeur de l'élément chauffant et très inférieure à l'épaisseur du substrat, est celui qui répond le mieux à notre besoin pour déterminer la conductivité thermique du matériau sous test. Les différents résultats ont montré que le modèle thermique introduit par D. G. Cahill offre un moyen efficace de mesure de la conductivité thermique des matériaux.

Au troisième chapitre, dans un premier temps, nous avons décrit le banc de mesure mis en place pour la mesure de la conductivité thermique à partir de la méthode 3-oméga. Dans un second temps, nous avons décrit les procédures de réalisation des micro-capteurs (lignes de chauffe en or) destinés à la mesure de la conductivité thermique du matériau à caractériser. Ensuite, dans une troisième partie, nous avons présenté les différents résultats de validation du banc de mesure. Les matériaux retenus pour ces tests sont le borosilicate (BrSiO_2), le Kapton MT et l'arséniure de gallium (GaAs). Les campagnes de mesure ont permis de confronter les résultats obtenus aux données issues d'une part de l'application du modèle de D. G. Cahill et d'autre part de la littérature. Finalement, une approche de simulation numérique de la méthode 3 ω basée sur la méthode des éléments finis (FEM) sous le logiciel Comsol[®] Multiphysics qui permet d'être au plus près de la structure de test est proposée. De la même façon, une étude comparative entre les résultats issus de la simulation numérique, ceux estimés par le modèle analytique de D. G. Cahill et ceux mesurés au moyen du dispositif développé au laboratoire est réalisée. Cette étude de comparaison a permis, en particulier, de mettre en évidence l'existence d'une résistance thermique de contact entre la ligne et le substrat. Enfin, les différentes études présentées dans ce chapitre ont conclu au bon fonctionnement du banc de mesure avec une détermination possible de la conductivité thermique de matériaux en film mince avec une précision de l'ordre de 10%.

Au chapitre quatre de ce mémoire, nous nous intéressons à la détermination de la conductivité thermique dans le plan transversal du matériau à caractériser. Celle-ci est réalisée

à partir d'une mesure différentielle au moyen de la technique 3-oméga. Cette méthode différentielle nécessite d'une part que l'épaisseur du film déposé soit bien inférieure à la largeur de la ligne de chauffe et d'autre part que la conductivité thermique du film mince soit inférieure à celle du substrat. Deux échantillons, des films déposés par LPCVD sur un substrat, ont servi aux tests. Le premier échantillon est un film mince de dioxyde de silicium (SiO_2) déposé sur un substrat de silicium tandis que le second est film de nitrure de silicium (Si_3N_4) déposé lui aussi sur un substrat de silicium. Le choix de ces deux matériaux diélectriques en couches minces (SiO_2 et Si_3N_4) est motivé par leur large utilisation pour l'isolation thermique et électrique dans de nombreuses applications (micro-électronique, photovoltaïque, MEMS,...). Les conductivités thermiques moyennes pour le substrat de Si obtenues expérimentalement pour chaque échantillon sont respectivement de 146.64 W/m.K et 148.09 W/m.K. Pour ce qui concerne les conductivités thermiques mesurées des films minces de SiO_2 et de Si_3N_4 celles-ci ont été estimées respectivement de 1.14 W/m.K et de 2.36 W/m.K. Ces valeurs, très proches de celles disponibles dans la littérature, sont comme attendues très différentes (inférieures) de celles des mêmes matériaux en structures massive. Comme précédemment, une étude de comparaison entre les résultats de simulation par FEM et la mesure a permis de déterminer la résistance thermique interfacial pour chaque échantillon (ligne/film/substrat).

Dans le cinquième et le dernier chapitre, nous commençons par un état de l'art sur les parylènes (polymères) et en particulier le parylène C. Puis, nous décrivons le processus de dépôt, par CVD, d'un film de parylène C sur un substrat de borosilicate. Trois épaisseurs de films (210, 440 et 760 nm) sont considérées. L'application de la méthode différentielle permet de conclure à des valeurs de conductivités thermiques égales à $k_s = (1,139 \pm 0,058) \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ pour le substrat de borosilicate et à $(81,20 \pm 3,19) \times 10^{-3} \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ pour le film de parylène C d'épaisseur 210 nm, $(88,37 \pm 2,02) \times 10^{-3} \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ pour le parylène C d'épaisseur 440 nm et à $(92,81 \pm 3,01) \times 10^{-3} \text{ Wm}^{-1}\text{K}^{-1}$ pour le film de parylène C d'épaisseur 760 nm. Nous notons donc une augmentation de la conductivité thermique en fonction de l'épaisseur du film. Celle-ci est attribuée au phénomène de diffusion des phonons par la frontière à l'interface substrat/film et film/élément chauffant. Nous nous sommes également pu déterminer la résistance thermique interfaciale, égale à $4,98 \times 10^{-7} \text{ m}^2\text{KW}^{-1}$, qui correspond en fait à la somme de deux résistances de contact thermique (ligne de chauffage/film de parylène C et film de parylène C/substrat). Dans la section finale de ce chapitre, un modèle de conduction thermique pour la méthode 3ω basé sur les éléments finis (FEM) est donc proposé pour une prise en compte plus précise de la réalité des structures. Dans ce but, une résistance de contact (sous la forme d'une couche très

mince thermo résistive) entre d'une part l'élément chauffant et le film de parylène C et d'autre part le film de parylène C et le substrat de BrSiO₂ est ajoutée au modèle de simulation par FEM. Ensuite, une étude de comparaisons des résultats expérimentaux avec ceux issus de l'application de la solution analytique de Cahill a été réalisée. Finalement, nous estimons que la résistance thermique interfaciale se répartie de la manière suivante, 3 % pour la ligne de chauffe/film de parylène C et 97 % pour le film de parylène C/substrat. La contribution majeure de la résistance interfaciale entre le film de parylène C et la surface du substrat est très probablement due à la couche d'adhérence de Silane.

La suite de ces travaux devrait concerner la caractérisation de structures plus complexes qui intègre un empilement de plusieurs couches minces (2 à minima). Ces types de structures se rencontrent fréquemment dans le domaine de la micro et nanoélectronique et en particulier dans les technologies CMOS et les MEMS. Dans un premier temps, il sera donc nécessaire de fabriquer un système constitué d'un empilement de plusieurs films minces sur la surface d'un substrat (la source de chaleur est située au sommet de l'empilement). Dans un second temps, il faudra développer un modèle analytique capable de donner la variation de la température au niveau de l'élément de chauffe et qui prend en compte l'éventuelle anisotropie du transfert thermique dans le système.

Annexes

Annexe A

Dépôt des lignes de chauffe sur un substrat flexible (Kapton)

Au début, un nettoyage des échantillons est primordial pour obtenir des résultats reproductibles. Il permet d'éliminer les contaminants issus des nombreuses étapes de production intérieures telles que les poussières ou les impuretés organiques. Les substrats (silicium et polymère) sont donc nettoyés dans des bains successifs de solvants. Ils sont d'abord immergés dans un bain d'acétone pendant 5 minutes avec ultrasons, puis dans un bain d'isopropanol pendant 5 minutes avec ultrasons. Après séchage sous flux d'air comprimé de l'azote (N₂), les substrats sont soumis à un recuit à 110 °C pour éliminer toutes traces de solvants. Plusieurs étapes sont prises en considération pour ce dépôt :

1. Tout d'abord, il faut nettoyer le substrat par l'Acétone + ultrason (5 min.) ensuite Isopropanol + ultrason (5 min.) puis le séchage par l'azote (N₂).
2. Le collage temporaire sur un substrat rigide : La lithographie directe sur un substrat souple impose beaucoup de contraintes liées à la flexibilité du substrat polymère. En effet, l'utilisation de solutions chimiques ainsi que les traitements thermiques utilisés lors de la lithographie optique, entraînent la déformation des substrats polymères. Pour résoudre ce problème, nous avons opté pour le collage temporaire du substrat flexible sur un substrat rigide (silicium). Comme le silicium bien nettoyé et résiné de PMMA ($V=2000\text{rpm}/a=1000\text{rpms}^{-1}/t=10\text{s}$) par spin-coating. Ensuite, on dépose le Kapton sur cette couche de silicium comprimé mécaniquement. L'échantillon est prêt pour faire des étapes de lithographie. On commence cette procédure en chauffant l'échantillon à 150 °C pour faire d'hydratation de surface
3. Déposer une résine bicouches : LOR-10A (2000, 1000, 12s) ensuite un recuit à 120°C pendant 6 min. Puis une résine S1805 avec un recuit à 120°C pendant 90s. A la fin on obtient une épaisseur de 1µm.
4. Déposer le masque en contact avec le substrat.
5. Les paramètres d'exposition sont : Lampe (UV 365 nm) avec une intensité $I = 9 \text{ mW/cm}^2$ pour une durée d'exposition de 1,5 s.
6. Recuit pendant 2 min
7. Développement (MIF 319)
8. Métallisation par évaporation (10 nm Ni comme couche d'accrochement/ 400 nm Au).
9. Lift off en utilisant le solvant SVC-14 à 70 °C pendant 1h.
10. Décollage Silicium-Kapton.

Annexe B

Réglage de l'amplificateur à verrouillage modèle Lock-in SR830

Réglage de l'amplificateur à verrouillage modèle Lock-in SR830 afin de prendre les mesures simultanément la phase et l'amplitude du signal. Avant que la mesure ne soit effectuée, le système de mesure doit être conçu de manière appropriée. La procédure suivante suppose que le verrouillage est utilisé comme source de courant pour la mesure :

1. L'échantillon est correctement connecté au circuit de mesure.
2. Dans le menu \ REF PHASE "de l'ampli à verrouillage, \ Sine Output" est réglé sur la tension d'entrée pour la mesure.
3. Dans le menu \ INPUT FILTERS ", \ Coupling" est réglé sur \ DC. "
4. La résistance de la résistance correspondante est réglée sur la valeur maximale en dessous de la résistance de l'échantillon. Le gain de l'amplificateur B est ensuite ajusté pour annuler complètement la tension de 1ω .
5. Dans le menu \ REF PHASE ", \ Harmonic" est réglé sur \ 1. "
6. Dans le menu \ INPUT FILTERS ", \ Source" est défini sur \ A ".
7. Dans le menu \ GAIN TC ", \ Sensitivity" est réglé sur sa valeur minimale (tension maximale de pleine échelle).
8. Dans le menu \ GAIN TC ", la constante de temps" est réglée sur une valeur appropriée. Pour les mesures supérieures à 100 Hz, 3 s suffisent. Pour les mesures de fréquences inférieures, des constantes de temps plus importantes doivent être utilisées pour obtenir une stabilisation appropriée.
9. La phase de la référence interne est \ remise à zéro. "Ceci est accompli en appuyant sur le bouton \ AUTO PHASE" sur le verrouillage jusqu'à ce que la tension déphasée (Y) soit nulle. Cela signifie que la phase de la tension d'attaque est définie comme une phase nulle.
10. Parce que nous voulons vraiment verrouiller le signal 3w dans le temps plutôt qu'en phase (un déphasage pour un signal 1w n'est pas le même décalage dans le temps que pour un signal 3w), nous devons ajuster la phase de référence à partir de son valeur autophase. Dans le menu \ REF PHASE ", \ Ref. Phase" est réglée sur trois fois sa valeur affichée. En règle générale, cette valeur est petite sauf si une source de courant externe est utilisée.

11. Harmonic "est réglé sur \ 3." Le verrouillage est maintenant correctement verrouillé sur le signal 3ω .
12. Source "est réglé sur \ A - B" si l'ampliateur C est l'entrée différentielle du verrouillage. Sinon, ceci est laissé sur \ A. "
13. Sensitivity "est réglé sur sa valeur maximale de sorte que la tension de pleine échelle soit encore supérieure à la tension maximale qui sera mesurée.
14. Dans le menu \ GAIN TC ", Reserve" est réglé sur une valeur appropriée. En règle générale, le paramètre \ MAX "fonctionne bien.
15. Dans le menu \ GAIN TC ", \ Filter" est réglé sur \ 24 dB / oct. ". Le filtre synchrone ne semble pas affecter la mesure.
16. Le système est maintenant prêt à prendre des mesures.

Annexe C

Calcul de la masse la quantité d'or nécessaire pour un dépôt des micro-capteurs thermiques

Comme il était mentionné précédemment, dans notre travail les résistances de lignes varient de 10 à 50 Ω . Il faut savoir la quantité d'or nécessaire pour un dépôt. Cette masse dépend de la valeur de la résistance désirée et de la distance au creuset. Dans notre cas on peut approximer la masse à introduire dans l'évaporateur par la relation

$$e_l = \frac{m}{2\pi\rho r^2 \left[1 - \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)\right]} \quad (1)$$

Cependant, on peut écrire la résistivité de cette ligne en fonction de l'épaisseur e_l

$$\mu = \frac{2bRe_l}{l} \quad (2)$$

De ces deux équations on peut extraire la masse de l'or, tel que

$$m = \frac{\mu\rho l\pi r^2 \left[1 - \cos\left(\frac{\theta}{2}\right)\right]}{Rb} \quad (4)$$

avec :

e_l : épaisseur de la ligne

m : masse de l'or

μ : résistivité (W.m)

ρ : masse volumique (Kg/m³) $\rho = 196300$ Kg/m³

l : longueur de la ligne (m)

r : distance cible creuset (m) $r = 0.22$ m

θ : angle de nacelle (°) $\theta = 120^\circ$

R : résistance de la ligne (Ω)

$2b$: largeur du transducteur (m)

Annexe D

LA CONDUCTIVITE THERMIQUE DE COUCHES MINCES

La caractérisation de la conductivité thermique des couches minces reste une tâche difficile. Par exemple, les méthodes de mesures directes de la conductivité thermique nécessitent typiquement la détermination du flux thermique et de la variation de température entre deux points différents de l'échantillon. Souvent, la conductivité thermique des films minces est anisotrope, comme dans le cas des films minces polycristallins [Col 1999] ou des super-réseaux constitués de couches minces périodiquement alternées. En effet, on distingue deux directions pour la conductivité thermique, la direction parallèle au plan (in-Plane \parallel) et la direction perpendiculaire au plan (cross plane \perp), et la détermination de la conductivité thermique dans ces différentes directions rencontre plusieurs défis. La figure 1 représente une configuration typique d'échantillon de couche mince et les défis expérimentaux associés à la caractérisation de transport thermique d'un système de couche mince sur substrat.

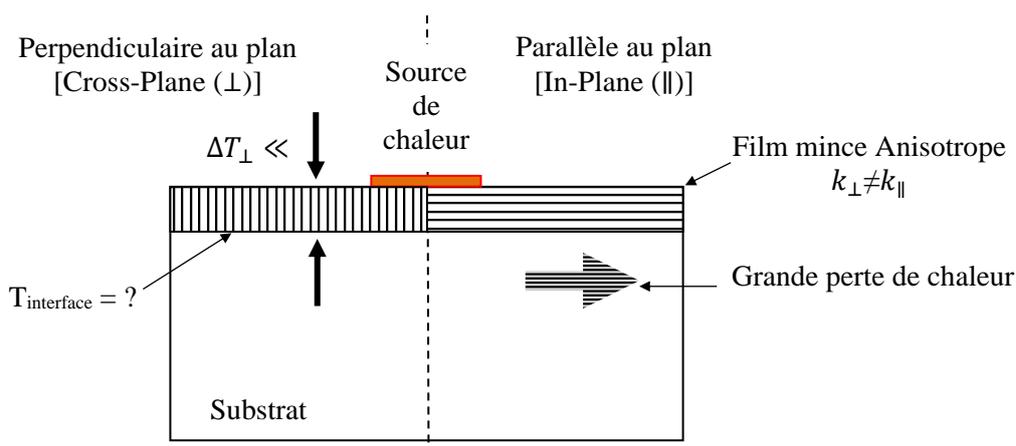


Figure 1 : Schéma de la configuration typique dans le cas d'un échantillon qui utilise un ruban de chauffe pour la mesure de la conductivité thermique des films minces [Tri 2004]

Pour obtenir la conductivité thermique en plan transversal, l'expérience nécessite généralement de découvrir la variation de température sur toute l'épaisseur de la couche mince. Les difficultés consistent, dans un premier temps, à créer une température suffisante à travers le film sans créer une perturbation de température importante dans le substrat, et, dans un second temps, à mesurer expérimentalement la variation de température qui traverse le film. D'autre part, la mesure de la conductivité thermique dans le plan peut être plus facile, car des capteurs de température peuvent être placés à différents endroits sur la surface du film. Cependant, une perte de chaleur à travers le substrat rend la détermination du flux thermique dans le plan du

film difficile. Pour résoudre ces difficultés, différentes méthodes ont été développées pour mesurer la conductivité thermique d'un film mince dans différentes directions.

La figure suivante (Fig. 2) donne une présentation de ces méthodes. Dans la direction du plan transversal (cross plane \perp), certaines méthodes utilisent un grand flux de chaleur à travers le film tout en minimisant le flux de chaleur dans le substrat. D'autres, consistent à mesurer la température, plutôt que la variation de température, de surface. Celles-ci peuvent être réalisées, par exemple, en utilisant des éléments chauffants de quelques microns déposés directement sur le film. De plus, en utilisant une petite largeur de l'élément chauffant, car, le flux thermique traversant le film est important, tandis que la diffusion de chaleur à l'intérieur du substrat se réduit considérablement la chute de température. Une autre technique consiste à utiliser une source de chaleur, ligne de chauffe, transitoire qui limite la région affectée par la chaleur à de petits volumes à l'intérieur du film, ou de son environnement.

En ce qui concerne la direction dans le plan (in-Plane \parallel), souvent en utilisant une méthode qui consiste à retirer le substrat, de sorte que le flux thermique à travers le film puisse être déterminé de manière unique, ou à déposer le films sur des substrats minces à faible conductivité thermique, ce qui minimise les fuites de chaleur. D'autres méthodes ont également été développées qui utilisent la diffusion latérale de la chaleur autour de petites sources de chaleur.

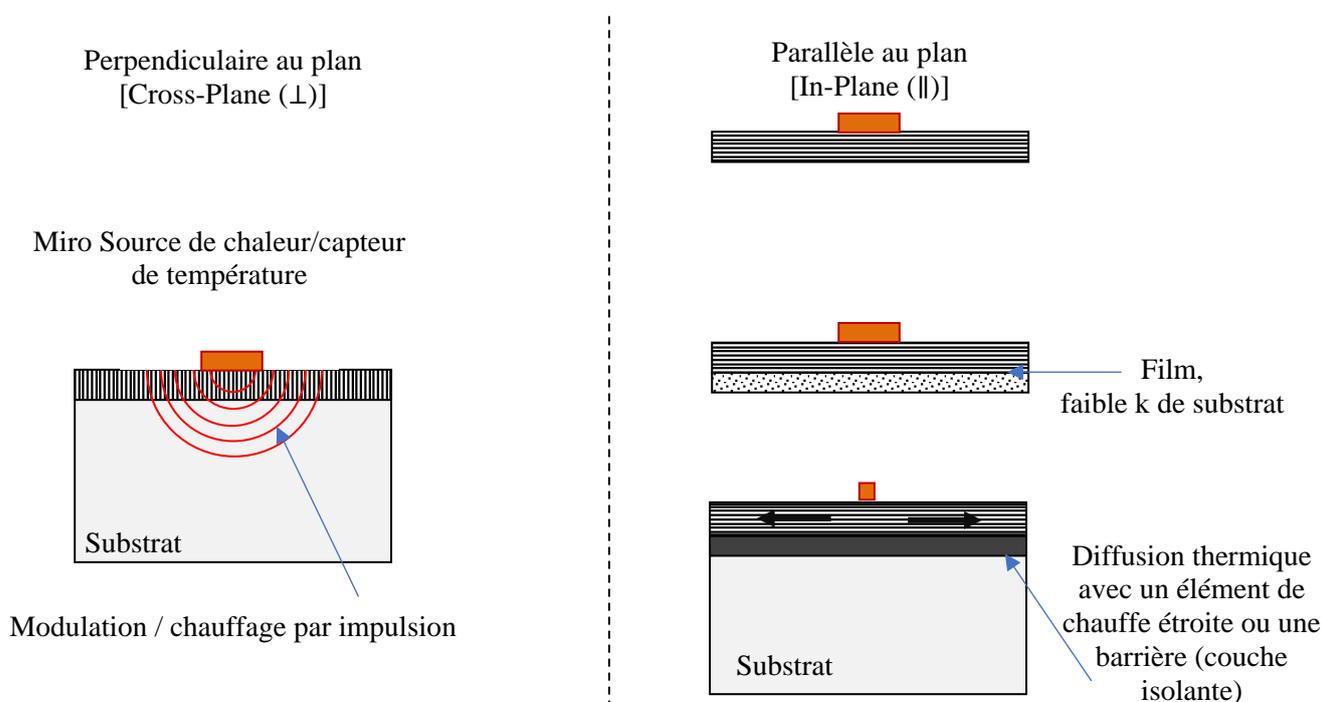


Figure 2 : Méthodes développées pour mesurer la conductivité thermique en couche mince dans différentes directions.

Dans la direction du plan transversal, les stratégies générales créent un flux de chaleur important à travers le film tout en minimisant le flux de chaleur dans le substrat et en mesurant la température de surface plutôt que la chute de température. Pour la direction dans le plan, des stratégies souvent utilisées consistent à retirer le substrat de telle sorte que le flux thermique à travers le film puisse être déterminé de manière unique ou à déposer les films sur des substrats minces à faible conductivité thermique, ce qui minimise les fuites de chaleur. D'autres méthodes tirent parti de la diffusion latérale de la chaleur qui entoure les petites sources de chaleur.

Les techniques de mesure des propriétés thermo physiques en couches minces sont classifiées en fonction de différentes sources de chaleur et de mesure de température : électrique, optique et hybride (électrique/ optique). Les méthodes électriques sont : 3-oméga (\perp, \parallel), membrane (\parallel), Spreader (\parallel). Les méthodes optique, nous pouvons citer : (domaine temporel) photo réflectance (\perp, \parallel), (domaine fréquentiel) déflexion (\perp, \parallel), photo-acoustique (\perp). Parmi les méthodes hybride : AC calorimétrie (\perp, \parallel), photo-thermoélectrique (\perp, \parallel), électro réflectance (\perp), etc... Pour des informations complémentaires plus détaillées sur les méthodes de caractérisation des propriétés thermo physiques peuvent être trouvées dans plusieurs autres articles scientifiques : [Cah 1989, Hat 1990, Tie 1994, Goo 1994]

Annexe E

1. LES POLYMÈRES

Un polymère est une molécule de masse moléculaire élevée défini comme un enchaînement d'unités structurales répétitives unies les unes aux autres par des liaisons covalentes, car, l'unité de répétition dans le polymère est appelée le monomère. Ce dernier est une molécule composée principalement de carbone et d'hydrogène. L'entité chimique constituée de deux monomères est un dimère.

Il existe des milliers de polymères dans la nature. Par exemple, le corps humain contient de nombreux polymères naturels tels que des protéines et des acides nucléiques. La structure des plantes est principalement composée de cellulose, le composé organique le plus répandu sur terre [Spe 2006, You 2011].

Les polymères sont largement utilisés dans l'industrie et dans notre vie quotidienne en raison de leurs fonctionnalités diversifiées, de leurs faibles poids, de leur flexibilité, de leurs excellentes stabilités chimiques ainsi de leurs faibles coûts. Ils sont largement employés dans les domaines de l'électronique et de l'électrotechnique (composants, électrodes, drains thermiques, circuits imprimés), dans l'industrie du packaging et dans des secteurs de pointe comme l'aéronautique et l'aérospatiale (les avions, les antennes, les navettes spatiales) [Zwe 1999, Bha 1986] et de l'automobile (échangeur de chaleur, piles à combustible, ...).

Industriellement, les polymères sont principalement dérivés du pétrole brut, du gaz naturel ou d'autres produits pétrochimiques [Mat 2001, Sim 2009]. Les monomères sont synthétisés par distillation du pétrole brut pour séparer ses principaux constituants. Les constituants sont généralement fissurés à haute température (de 500 à 1000 °C) et à basse pression avec de la vapeur pour former des monomères tels que l'éthylène, qui est le plus courant. La plupart des polymères peuvent être classés en trois groupes : des thermodurcissables, des thermoplastiques et des élastomères. La distinction entre eux résulte de la différence de structures moléculaires, leurs comportement sous l'effet de température,.....

a) Les polymères thermodurcissables

Les polymères thermodurcissables (exemple : Polyuréthane, phénoplaste, aminoplaste, poly époxyde) sont constitués de chaînes linéaires de monomères (ou un groupe) réticulées entre eux par un réseau tridimensionnel (dans l'espace) de liaisons chimiques fortes de type covalent en présence de chaleurs ou d'un catalyseur. Autrement dit, suite à l'action combinée

ou non de la température, de la pression, de catalyseurs et des réactifs, la transformation chimique conduit à l'obtention d'un réseau tridimensionnel figé : ainsi le matériau sera plus rigide, cassant, insoluble et infusible (ne peut ensuite plus être rompu). Ils se distinguent par l'irréversibilité de leur transformation. Ces propriétés rendent ces polymères difficilement recyclables, pour cette raison leur utilisation est limitée.

b) Les polymères thermoplastiques

Les thermoplastiques représentent 80 % de la production mondiale de matières plastiques. Ils sont déformables dès qu'ils sont chauffés et ils deviennent généralement souples (ou moulables) au-dessus d'une certaine température, puis retournent à l'état solide lors du refroidissement. La plupart des thermoplastiques ont un poids moléculaire élevé, et les chaînes moléculaires (longues chaînes) interagissent par le biais de forces intermoléculaires à longue portée (c.à.d. liaisons faibles de type Van der Waals). La transformation d'un thermoplastique sous l'action de la chaleur est réversible. Donc, cette propriété permet aux thermoplastiques d'être remoulés car leurs liaisons intermoléculaires se reforment spontanément lors du refroidissement.

Les thermoplastiques, comme par exemple : le polyéthylène, le PVC, le polypropylène, les parylènes, le polystyrène, le polyamide, le polycarbonate...., sont les polymères les plus utilisés dans l'industrie car ils se transforment sans réaction chimique. Évidemment, si ce polymère "solide" ou plus exactement vitreux est chauffé, les faibles forces intermoléculaires sont vaincues et le polymère s'écoule comme une pâte plus ou moins molle (phase liquide).

c) Les polymères élastomères

Les élastomères s'étirent sous l'effet d'une action mécanique et reviennent à leur forme initiale lorsque l'action mécanique cesse (exemple : le caoutchouc, le polyester...). Leur principale propriété est leur faible rigidité, ce qui leur permet de supporter de très importantes déformations avant rupture. Sans action mécanique, les chaînes moléculaires sont reliées entre elles par des liaisons covalentes incassables a priori. Par conséquent, sous action mécanique, les chaînes s'étirent mais sont toujours reliées entre elles grâce aux liaisons covalentes. Ces types de polymères peuvent être considérés comme des thermodurcissables faiblement pontés, c'est-à-dire comportant 10 à 100 fois moins de liaisons.

Les polymères, de façon générale, sont répartis en deux catégories : les amorphes et les semi-cristallins

1.1 Différents types de polymères

Les polymères sont souvent décrits comme étant cristallins, amorphes ou semi cristallins (de phases amorphes et cristallines). En effet, aucun polymère n'est 100% cristallin. Cependant certains peuvent avoir un fort taux de cristallinité allant jusqu'à 80% (ex. poly-para-xylylène, le polyacétylène, ..) [Sen 2000]).

Les matériaux amorphes n'ont pas un ordre établi dans la structure moléculaire qui les compose, ils peuvent être comparés à un bol de spaghettis cuits. Les plastiques amorphes incluent les polymères tactiques alors que leur structure moléculaire ne résulte généralement pas d'une cristallisation. Cette catégorie de plastiques amorphes inclut entre autres le polystyrène, le PVC et l'acrylique.

Le degré de cristallinité est une caractéristique inhérente à chaque polymère, mais il peut être affecté ou contrôlé par certains procédés comme la polymérisation ou le moulage.

Les matériaux cristallins présentent une structure hautement organisée et leurs composantes moléculaires sont solidement entassées. Les zones de cristallinité sont appelées sphérulites et elles peuvent varier dans la forme et la dimension à travers les zones amorphes. La longueur des chaînes polymères contribue à leurs habiletés à cristalliser.

Cette famille de polymères est caractérisée par la présence d'arrangements réguliers de chaînes macromoléculaires hautement organisées, appelées phases cristallines, et par l'absence d'ordre à longue distance (phases amorphe). La phase cristalline est généralement constituée par plusieurs types de formes géométriques (lamelles, sphérulites, fibres,..). Cette phase peut varier dans sa forme et sa dimension à travers les zones amorphes qui vont influencer les propriétés du polymère [Run 1997].

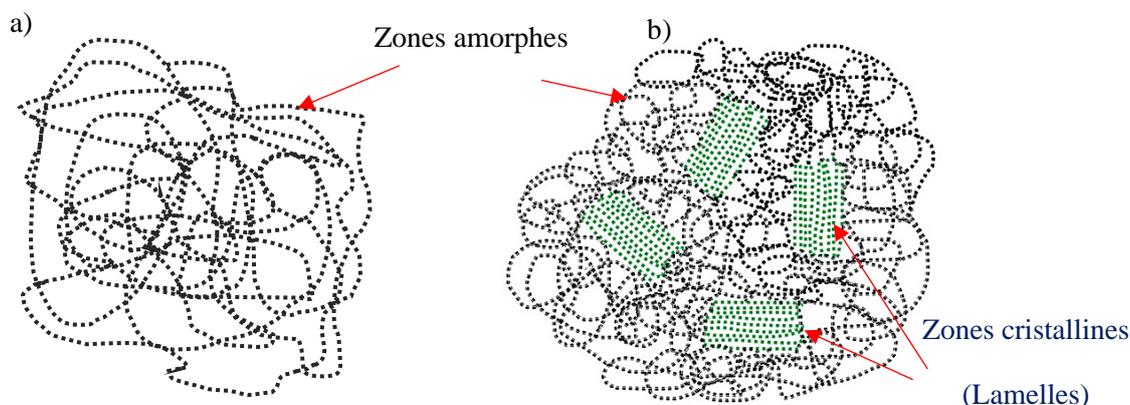


Figure 1. Structure moléculaire des polymères (a) amorphes et (b) semi-cristallins.

1.1.1 Polymères amorphes

Les polymères de morphologie amorphe ont leurs atomes maintenus ensemble dans une structure aléatoire, non ordonnée ou prévisible, c'est pourquoi les chimistes disent que les solides amorphes n'ont pas d'ordre à longue distance. Pour mieux comprendre cela, comme nous l'avons dit précédemment il faut se représenter une chaîne polymère un peu comme des spaghettis cuits. Les spaghettis non cuits forment des belles chaînes droites, mais si vous les faites cuire dans de l'eau bouillante, les chaînes se ramollissent et deviennent capables de pliages complexes.

Cette intrication de chaînes (chaînes disposées au hasard dans tout le matériau) rend les positions atomiques quasi-aléatoires (Fig. 1.a). Cela décrit le comportement des polymères amorphes et démontrerait les propriétés de tout autre solide amorphe ou de type verre. En termes de propriétés, les polymères amorphes ont généralement une meilleure résistance aux chocs, mais sont plus enclins à la fissuration sous contrainte et ont une faible résistance à la fatigue. Les polymères amorphes comprennent la plupart des thermodurcissables et des plastiques transparents (thermoplastiques), le polycarbonate, l'acrylique et le polysulfone

Les solides amorphes ne fondent pas soudainement lorsqu'ils sont chauffés. Au lieu de cela, ils atteignent une plage de températures au cours de laquelle le matériau devient moins vitreux et plus semblable à du caoutchouc. En conséquence, les polymères amorphes n'ont pas de point de fusion - ils ont une température de transition vitreuse, notée T_g . La température de transition vitreuse d'un polymère spécifique peut être répertoriée comme une température unique.

Pour expliquer la température de transition vitreuse en termes de mouvements moléculaires, nous dirions qu'à des températures inférieures à T_g , les chaînes polymères amorphes ne peuvent pas tourner ou se déplacer dans l'espace (les spaghettis cuits sont gelés et ne peuvent pas bouger). Cela produit l'état vitreux, qui est dur, rigide et cassant. Lorsque la température dépasse T_g , les chaînes enchevêtrées peuvent bouger (de petites portions de spaghettis peuvent se déplacer). Cela produit un état caoutchouteux, un polymère amorphe mou et flexible.

1.1.2 Polymères semi-cristallins

Un polymère semi-cristallin typique contient des régions cristallines de chaînes alignées et des régions amorphes avec des chaînes torsadées et enchevêtrées de façon aléatoire (Fig. 1.b). Dans ces polymères, les chaînes se comportent différemment. Elles forment toujours des plis, mais au lieu de s'emmêler désespérément, ils forment des piles ordonnées de chaînes pliées,

appelées lamelles. Les lamelles apportent un ordre à longue distance aux polymères, ce qui ressemble plus à la disposition ordonnée des atomes dans des cristaux typiques. Notons que les lamelles de certains polymères ont un petit nombre de chaînes qui sortent des piles ordonnées. Les scientifiques se réfèrent souvent au degré de cristallinité d'un polymère pour décrire où il se situe le long de ce spectre. En théorie la cristallinité peut aller de 0 % (entièrement amorphe) à 80 % (entièrement cristallin), mais la plupart des polymères se situent quelque part entre ces extrêmes.

Le degré de cristallinité est directement lié au fait qu'un polymère fond comme un solide typique ou qu'il transite entre les états vitreux et caoutchouteux. La notion de taux de cristallinité est définie comme une fraction massique ou molaire d'unités structurales cristallisées par rapport à la totalité des unités présentes (masse de phase cristalline/masse totale de polymère). Plus ce facteur est grand, plus on a un polymère ordonné, donc cristallin. Cette fraction peut se calculer par méthode volumétrique ou par méthode calorimétrique. Les polymères hautement cristallins ont un point de fusion plus traditionnel, de sorte que lorsqu'ils sont chauffés, ils atteignent une certaine température à laquelle la disposition ordonnée de leur structure à longue chaîne se transforme en une disposition aléatoire et désorganisée. Cette valeur est généralement un nombre spécifique, désigné comme le point de fusion (T_m). Parmi les polymères semi-cristallins, nous trouvons la plupart des plastiques traditionnels (thermoplastiques), la famille du polyéthylène (LDPE, HDPE, UHMW-PE), le polypropylène, le nylon, l'acétal et les polymères fluorés

Annexe F

1. LES CHAMPS D'APPLICATION DES PARYLENES

Les champs d'application des Parylènes sont vastes. Ils sont largement utilisés dans les assemblages électroniques, les capteurs, les dispositifs médicaux, les équipements aérospatiaux et avioniques, car il possède des propriétés physiques, chimiques, mécaniques et électriques attrayantes par rapport à d'autres matériaux polymères. Grace à leur composition moléculaire benzénique ils ont une bonne stabilité thermique et une bonne tenue aux éléments corrosifs. Le polyéthylène (-CH₂-), l'élément d'interconnexion entre les noyaux aromatiques, permet d'avoir un certain aspect flexible.

Les applications industrielles utilisant les diverses familles de parylène en couche mince sont actuellement en plein essor. Ces domaines d'applications sont présentés ci-dessous :

- *Parylènes en Spatial et aéronautique*

Le parylène est utilisé pour des applications spatiales et aéronautiques (approuvé par la NASA et l'ESA). Les systèmes électroniques de vol et de contrôle des avions, soumis à des conditions extrêmes durant phases les décollages/atterrissages et en haute altitude avec de très fortes amplitudes de températures, de pression, de vibrations et d'humidité, sont bien souvent (et efficacement) revêtus et protégés par un film parylène [Bea 1989, Jef 2004].

- *Parylènes en micromécanique*

La maîtrise dimensionnelle du film de parylène (conformabilité + épaisseur) est bien entendu un atout majeur en micromécanique. Le parylène est ici majoritairement utilisé à des fins tribologiques, protection contre la corrosion pour les surfaces métalliques (lubrifiant solide,...) ou en tant que diélectrique dans le cadre d'applications horlogères, mais aussi en tant que barrière environnementale pour de petits éléments en matériaux sensibles et fragiles au milieu extérieur [Eil 2008, Xia 2009].

- *Parylènes en électronique*

A la fin des années 1970, le parylène a initialement été utilisé pour la protection des ferrites (composants utilisés dans la fabrication des cartes électroniques). Ces dernières années, on le trouve dans l'électronique portable, en particulier pour des dispositifs pouvant être portés la peau pour surveiller en permanence les activités d'un individu (humain et animal)[Yok 2016]. La technologie OLED (*Organic Light Emitting Diode*) est utilisée pour créer des affichages

numériques pour les téléviseurs, les ordinateurs et les appareils portatifs intelligents. Les revêtements d’OLED disposant d’une couche isolante de parylène permettent une meilleure protection à l’humidité [Kim 2017]. Enfin, le parylène C est aussi utilisé comme matériau diélectrique en remplacement du SiO₂ dans des capteurs de gaz O₂ construits sur la base de transistors à effet de champ (FET) [NAO 2010].

- ***Parylènes et MEMS :***

Plus récemment, la mise à profit de films de Parylène de très faible épaisseur s’est étendue aux micro-technologies à la micro-fluidique, notamment dans le domaine des MEMS (*MicroElectroMechanical Systems*) [Wat 2015, Kim 2016]. Ils sont employés couramment en préservant la flexibilité et l’élasticité des caoutchoucs dans les couches de revêtement performante pour la protection des PCB (*Printed Circuit Board*) [Kim 17]. Ils sont compatibles avec des processus lithographiques de fabrication de CMOS. Dans des dispositifs utilisant le parylène C comme couche barrière et d’isolation électrique dans des transistors FET à base de graphène [Sab 2009, Mas 2009]. Nous retrouvons également le parylène C dans les dispositifs d’électro mouillage EWOD (ElectroWetting On Dielectrics) où il est utilisé comme couche de support diélectrique [Var 2020].

- ***Parylènes dans le domaine médical et Bioélectronique***

Dès lors que la biocompatibilité des parylènes N et C a été établie, leurs applications du parylène se sont étendues au revêtement de dispositifs médicaux, notamment les outils chirurgicaux et accessoires [Kup 2015, Gri 2015]. La protection finale de l’électronique des pacemakers est garantie par un revêtement de parylène depuis à présent environ 40 années. Récemment, des études ont montré que le parylène pouvait être utilisé en tant que couche isolante pour protéger le capteur électrique et empêcher le contact des lignes métalliques véhiculant le signal électrique avec la peau [Gao 2016].

- ***Parylènes dans le domaine nanotechnologie***

Les champs d’application du parylène dans les nanotechnologies n’en sont sans doute qu’à leurs prémices, ce secteur étant amené à encore se développer dans les années à venir. Le parylène est également utilisé comme couche diélectrique d’interconnexion pour diminuer les pertes entre les lignes de connexion dans les composants ULSIs (Ultra Large Scale Integrated systems) [Sen 1999, Sen 2000, Men 2008] ainsi que dans les circuits intégrés [Ho 2003] et comme couche de protection des cartes électroniques à la place des résines époxy, des silicones, et du polyuréthane [Lee 1983]. D’un point de vue électrique, le caractère isolant du parylène a

permis le fonctionnement de la sonde d'une microbalance à cristal de quartz dans un environnement liquide [Han 2009]. Récemment, le parylène-C a été utilisé avec succès dans le développement de polymères nano composites pour minimiser les effets d'interface notamment entre les particules métalliques et les matériaux semi-conducteurs dans une configuration MIS (métal-isolant-semi-conducteur). On le retrouve ainsi comme matériau d'encapsulation de nanoparticules magnétiques Fe_3O_4 [Ign 2010] et comme couche d'isolation de nanoparticules d'or pour des mémoires [Byo 2008]. Le revêtement ou l'encapsulation de nanotubes de carbone avec du parylène-C est probablement l'un des sujets présentant le plus d'intérêt aujourd'hui au niveau des applications [Chi 2008, Chi 2009, Lia 2009].

Comme nous pouvons le constater les applications des parylènes sont nombreuses et variées, à titre d'exemples complémentaires les références [Bea 1988] et [For 2004] peuvent être consultées.

2. DIFFERENTS TYPES DE PARYLENES

Il existe plus de vingt variantes de parylène, cinq d'entre elles sont largement connues, le parylène N, le parylène C, le parylène D, le parylène F (HT ou AF-4) et le parylène VT-4. Chacun de ces polymères possède des propriétés uniques qui le rend intéressant pour des applications particulières. Seuls les parylènes chlorés et fluorés ont trouvé des applications industrielles, car ils sont relativement faciles à réaliser. Les principaux types de parylène commercialisés sont :

1. Le parylène N appelé aussi Poly-para-xylylène (ou PPX N- (C_8H_8)) est la molécule la plus petite et la plus active par rapport à d'autres variantes. Il est un hydrocarbure aromatique formé par une succession d'unités structurales constituées par un noyau aromatique central fixé entre deux groupements méthyle (Fig. 2). En raison de son activité modulaire élevée à l'état monomère pendant le processus de dépôt, le parylène N a le plus grand pouvoir de pénétration et est capable de recouvrir des cavités profondes. Il a le coefficient de frottement le plus bas, une faible elongation, le facteur de dissipation (électrique) le plus bas, la rigidité diélectrique la plus élevée et une constante diélectrique indépendante de la fréquence. Ces propriétés du parylène-N le rendent bien adapté aux applications qui nécessitent un pouvoir de pénétration élevé, une capacité de lubrification à film sec, une couverture complète sans trou et comme isolant pour les applications à haute fréquence.

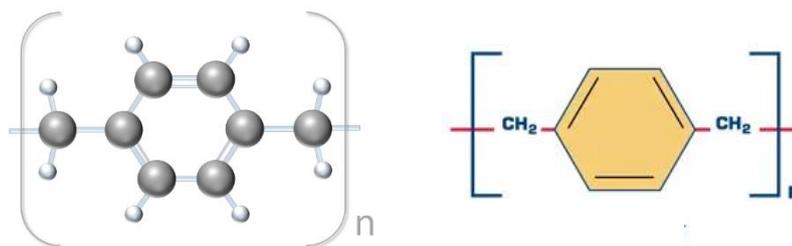


Figure 2 : Représentation structurale d'une molécule et formule chimique du (n) monomère de parylène N.



2. Le parylène D dite aussi Poly-dichloro-para-xylylène (ou PPX D ($C_8H_6Cl_2$)) a une structure proche au parylène C. C'est la plus grosse molécule, car il possède deux atomes de chlore opposés sur le cycle benzénique (Fig. 3). Il a la plus grande stabilité thermique, la plus faible capacité de pénétration, la surface la plus dure et le plus petit coefficient d'élongation parmi les quatre parylènes (N, C, F et HT). Le parylène D est souhaitable pour les applications qui nécessitent une ténacité physique, une stabilité thermique et une résistance chimique car il possède d'excellentes propriétés physiques et électriques à une température plus élevée.

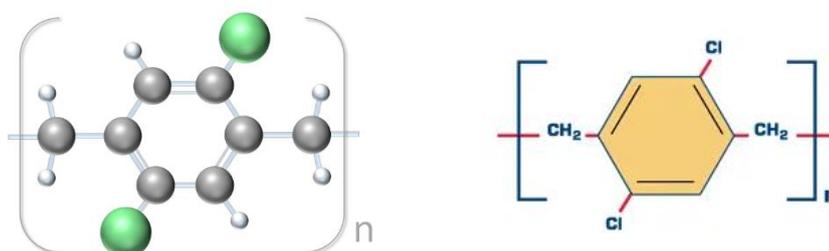


Figure 3 : Représentation de structure d'une molécule et formule chimique du (n) monomère de parylène D.



3. Le parylène F noté aussi Poly-terafluoro-para-xylylène est également appelé parylène fluoré aliphatique (ou AF-4 et, selon l'appellation de SCS parylène, HT ($C_8H_4F_4$)). Il possède la même structure moléculaire que le parylène N, à l'exception des atomes de fluor dans le cycle benzénique qui ont pris la place des atomes d'hydrogène des sites aliphatiques (Fig. 4). En conséquence, il a une résistance plus élevée aux températures élevées et aux rayonnements UV, et il a également une constante diélectrique réduite. Ces propriétés rendent le parylène HT bien adapté aux applications avioniques et semi-conductrices.

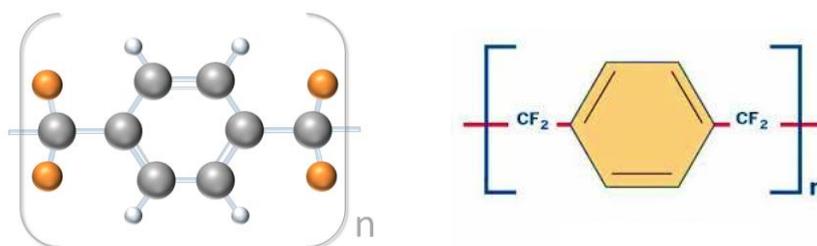


Figure 4 : Représentation de structure d'une molécule et formule chimique du (n) monomère de parylène F.



4. Le poly-difluoro-para -xylylène appelé aussi parylène fluoré aromatique (ou VT-4 ($C_8H_4F_4$)) a la même structure que le parylène AF-4, à la seule différence que les 4 atomes de fluor qui se présentent dans le monomère sont, cette fois, attachés aux sites aromatiques et non plus aux sites aliphatiques (Fig. 5).

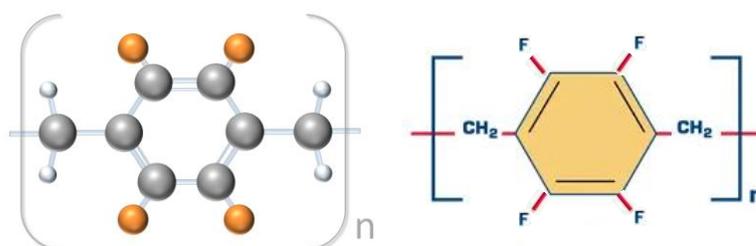


Figure 5 : Représentation de structure d'une molécule et formule chimique du (n) monomère de parylène VT-4.



Les précurseurs du parylène disponibles commercialement, relativement faciles à réaliser, sont les dimères des parylènes N, C, D. Les autres types de dimères substitués sont moins facilement accessibles, et notamment le dimère F ou VT-4, en raison des difficultés de fabrication du dimère [Ho 2003]. La quantité disponible de dimère pour ces deux types de parylènes est très limitée dans le monde, car, son coût est excessivement élevé. Les fournisseurs du dimère de parylènes les plus connus dans le monde sont : la société Kisco au Japon [Kis 2020], une entreprise distribue un dimère de marque Galentis Galaxyl en Italie [Con 2020] et l'Union Carbide Corporation (UCC) aux Etats-Unis [Par 2020].

Résumé :

Le dépôt de matériaux en couches minces suscite un grand intérêt dans les secteurs industriel et académique de différents domaines tels que par exemple la micro et nanoélectronique. Dans ce cadre, la connaissance des propriétés thermiques de matériaux en couches minces, et en particulier de la conductivité thermique, est essentielle pour optimiser les performances de nombreux dispositifs. Néanmoins, la mesure de ces paramètres reste difficile compte tenu des faibles dimensions mise en jeu. En particulier, l'existence d'une résistance thermique interfaciale d'une part entre la couche déposée et le matériau hôte et d'autre part entre la couche mince et le capteur de température rend délicate l'extraction rigoureuse de la conductivité thermique.

Parmi les méthodes de mesure susceptibles de répondre à cette problématique, notre choix s'est porté sur la technique différentielle 3-oméga (3ω), qui a été introduite par D. G. Cahill, en raison de sa simplicité d'utilisation, de sa précision et des faibles pertes de chaleur par rayonnement thermique occasionnées durant la mesure. Cette méthode nécessite le dépôt, par photolithographie optique, d'une ligne métallique déposée en surface de l'échantillon à caractériser. La ligne agit simultanément comme élément de chauffe et capteur de température. Il est alors nécessaire d'acquérir la tension de la 3^{ème} harmonique ($V_{3\omega}$: d'où le nom de la méthode) pour remonter à la conductivité thermique. Cette mesure se fait à l'aide d'un banc de mesure dédié développé au laboratoire. Ce travail expérimental est accompagné d'études de modélisation à l'aide du formalisme proposé par D. G. Cahill et également par une approche des éléments Finis (FEM) à l'aide du logiciel Comsol Multiphysics, pour estimer la conductivité thermique et la résistance thermique interfaciale entre les différentes matières constituant l'échantillon (élément de chauffe/film, film/substrat). La confrontation des résultats expérimentaux à ceux issus du modèle analytique de D. G. Cahill et des simulations numériques par FEM démontre que nous disposons de deux outils complémentaires efficaces pour la détermination de la conductivité thermique de matériaux en couches minces et la résistance interfaciale. A côté de ces deux outils, l'existence d'un dispositif de mesure fiable permet de relever l'expertise acquise dans la détermination de la conductivité thermique de matériaux massifs ou en films minces.

Mots-clés : Conductivité thermique, méthode 3-oméga, méthode des éléments finis (FEM), couches minces, substrat, source de chaleur, onde thermique, température, résistance thermique interfaciale.

Abstract :

The deposition of materials in thin layers arouses a great interest in the industrial and academic sectors of various fields such as for example micro and nanoelectronics. In this context, knowledge of the thermal properties of thin film materials, and in particular of thermal conductivity, is essential for optimizing the performance of many devices. Nevertheless, the measurement of these parameters remains difficult given the small dimensions involved. In particular, the existence of an interfacial thermal resistance on the one hand between the deposited layer and the host material and on the other hand between the thin layer and temperature sensor makes the rigorous extraction of thermal conductivity delicate.

Among the measurement methods likely to respond to this problem, our choice fell on the 3-omega (3ω) differential technique, which was introduced by DG Cahill, because of its simplicity of use, its precision and low heat loss by thermal radiation caused during the measurement. This method requires the deposition, by optical photolithography, of a metal line deposited on the surface of the sample to be characterized. The line acts simultaneously as a heating element and a temperature sensor. It is then necessary to acquire the voltage of the 3rd harmonic ($V_{3\omega}$: hence the name of the method) to go back to thermal conductivity. This measurement is done using a dedicated measurement bench developed in the laboratory. This experimental work is accompanied by modeling studies using the formalism proposed by DG Cahill and also by a Finite Element Approach (FEM) using the Comsol Multiphysics software, to estimate thermal conductivity and interfacial thermal resistance. Between the different materials constituting the sample (heating element / film, film / substrate). The comparison of the experimental results with those resulting from the analytical model of D. G. Cahill and numerical simulations by FEM shows that we have two efficient complementary tools for the determination of the thermal conductivity of materials in thin layers and the interfacial resistance. Besides these two tools, the existence of a reliable measuring device makes it possible to note the expertise acquired in the determination of the thermal conductivity of solid materials or thin films.

Keywords: Thermal conductivity, 3-omega method, finite element method (FEM), thin films, substrate, heat source, thermal wave, temperature, interfacial thermal resistance.

المخلص:

يثير ترسب المواد في طبقات رقيقة اهتمامًا كبيرًا في القطاعات الصناعية والأكاديمية في مختلف المجالات مثل الإلكترونيات الدقيقة والنانوية. في هذا السياق، تعد معرفة الخصائص الحرارية لمواد الأغشية الرقيقة، وخاصة التوصيل الحراري، أمرًا ضروريًا لتحسين أداء العديد من الأجهزة. ومع ذلك، لا يزال قياس هذه المعلمات صعبًا نظرًا للأبعاد الصغيرة المتضمنة. وعلى وجه الخصوص، وجود مقاومة حرارية بينية من جهة بين الطبقة المترسبة والمادة المضيفة ومن جهة أخرى بين الطبقة. يجعل الاستخراج الدقيق للموصلية الحرارية حساسًا.

من بين طرق القياس التي من المحتمل أن تستجيب لهذه المشكلة، وقع اختيارنا على تقنية (3ω)-3-أوميغا التفاضلية، والتي قدمها DG Cahill، بسبب بساطة استخدامها ودقتها وانخفاض فقد الحرارة بسبب الإشعاع الحراري الناتج أثناء القياسات. تتطلب هذه الطريقة الترسيب، عن طريق الليثوغرافيا الضوئية، لخط معدني مترسب على سطح العينة ليتم تمييزه. يعمل الخط في وقت واحد كعنصر تسخين ومستشعر درجة حرارة. من الضروري بعد ذلك الحصول على جهد التوافقي الثالث ($V_{3\omega}$) ومن هنا جاء اسم الطريقة للعودة إلى التوصيل الحراري. يتم إجراء هذا القياس باستخدام منضدة قياس مخصصة تم تطويرها في المختبر. يرافق هذا العمل التجريبي دراسات النمذجة باستخدام الشكلية التي اقترحها DG Cahill وأيضًا من خلال نهج العناصر المحدودة (FEM) باستخدام برنامج Comsol Multiphysics، لتقدير التوصيل الحراري والمقاومة الحرارية البينية بين المواد المختلفة التي تشكل العينة (عنصر التسخين / فيلم، فيلم / ركيزة). توضح مقارنة النتائج التجريبية مع تلك الناتجة عن النموذج التحليلي لـ D.G. Cahill والمحاكاة العددية بواسطة FEM أن لدينا أداتين تكمليتين فعاليتين لتحديد التوصيل الحراري للمواد في الطبقات الرقيقة والمقاومة البينية. إلى جانب هاتين الأداةين، فإن وجود جهاز قياس موثوق به يجعل من الممكن ملاحظة الخبرة المكتسبة في تحديد التوصيل الحراري للمواد الصلبة أو الأغشية الرقيقة.

الكلمات المفتاحية: التوصيل الحراري، طريقة 3-أوميغا، طريقة العناصر المحدودة (FEM)، الأغشية الرقيقة، الركيزة، مصدر الحرارة، الموجة الحرارية، درجة الحرارة، المقاومة الحرارية البينية