

Mesures de propriétés thermiques de couches minces

Stefan Dilhaire

CPMOH – université Bordeaux 1 – CNRS, 351 cours de la Libération 33405 Talence
courriel: s.dilhaire@cpmoh.u-bordeaux1.fr

Méthode Flash

Si la capacité calorifique ρc du matériau à caractériser est bien connue, une méthode mesurant la diffusivité thermique permet l'identification de la conductivité thermique indirectement. En effet on sait que :

$$a = \frac{\lambda}{\rho c} \quad (1)$$

où a est la diffusivité thermique. Elle s'exprime en m^2/s . Ces méthodes ont l'avantage d'avoir un temps de mesure réduit, puisqu'elles n'attendent pas l'équilibre thermique de l'échantillon pour faire l'acquisition. Elles sont très utilisées pour la caractérisation à haute température.

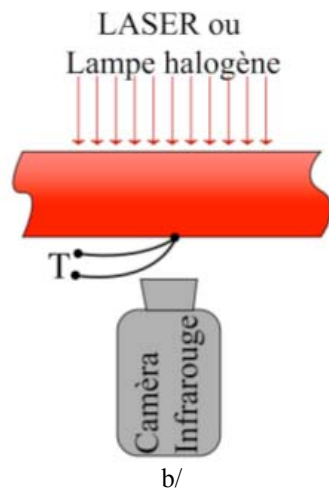


Figure 1 : Méthode Flash

La méthode Flash est de loin la plus utilisée de nos jours. La configuration typique d'un montage Flash est montrée sur la Figure 1a. L'échantillon se présente typiquement sous forme d'une couche mince micrométrique. Une source lumineuse (Laser, lampe flash, faisceau d'électrons) irradie une face de la couche pendant une durée inférieure à la milliseconde. La température de l'autre face est relevée par un capteur (photodiode, caméra infrarouge, thermocouple). Pour avoir une bonne approximation d'un flux unidimensionnel, le faisceau incident doit être uniforme, et la surface de mesure beaucoup plus petite que la surface éclairée. Sous ces conditions, la température croît sous l'influence de l'impulsion de chaleur, puis ensuite décroît asymptotiquement jusqu'à la température ambiante. Le temps mis pour atteindre la moitié de

la température maximale $t_{1/2}$ peut être utilisé pour déterminer la diffusivité thermique :

$$a = \frac{1.37d^2}{\pi^2 t_{1/2}} \quad (2)$$

où d est l'épaisseur de la tranche. Cette dernière doit être suffisamment fine pour que l'impulsion arrive de l'autre côté avant qu'il y ait des pertes. Elle doit être également suffisamment épaisse pour que le temps de montée soit beaucoup plus grand que la durée de l'impulsion.

Méthode Calorimétrique

Cette méthode est utilisée pour la caractérisation de couches minces. Elle mesure la diffusivité parallèle au plan de la couche. L'échantillon est éclairé par une source lumineuse dont l'intensité est modulée sinusoïdalement (voir Figure 2). Une partie de l'échantillon est masquée par une plaque opaque. Un microthermocouple relève la température à une distance L du bord du masque. Encore une fois, il s'agit de résoudre un problème de transfert de chaleur à une dimension. Pour ce faire, la longueur de diffusion doit être beaucoup plus grande que l'épaisseur de la couche, $d \ll 2\pi(2a/\omega)^{1/2}$ afin de négliger le gradient perpendiculaire au plan. Pour retrouver la diffusivité, il suffit de relever la température en deux positions différentes du masque. L'amplitude ou la phase de cette dernière permettent l'identification de la diffusivité thermique a .

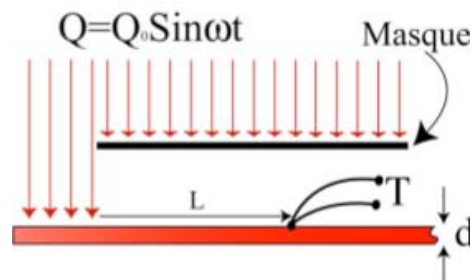


Figure 2 : Méthode calorimétrique AC.

Méthode 3ω

Cette méthode a été originalement développée pour la caractérisation de verres et d'autres solides amorphes. Par la suite, elle s'est avérée idéale pour la caractérisation de couches minces. La figure 3

montre le principe de la technique. Un film métallique est déposé sur l'échantillon par évaporation. Il faut remarquer qu'un échantillon conducteur électrique nécessite une couche isolante avant l'évaporation du fil. Le fil est branché électriquement dans une configuration à quatre fils, typique pour la mesure de tension. Le fil est excité sinusoïdalement. Il se comporte donc comme une source de chaleur linéique dissipant au double de la fréquence d'excitation 2ω , du fait du caractère quadratique de l'effet Joule.

La chaleur diffuse vers l'échantillon avec une symétrie cylindrique avec le fil chauffant comme axe. Ceci produit une variation de la température du fil à la fréquence 2ω . Etant donné que la résistance du fil dépend de la température, elle variera aussi à 2ω . La différence de potentiel aux bornes du fil contiendra donc une composante à la troisième harmonique 3ω . Deux mesures de la troisième harmonique de la tension $V_{3\omega 1}$ et $V_{3\omega 2}$ à des fréquences d'excitation différentes ω_1 et ω_2 permettent l'identification de la conductivité thermique :

$$\lambda_{ech} = \frac{V_{1\omega}^3 \ln\left(\frac{\omega_1}{\omega_2}\right)}{4\pi R^2 (V_{3\omega 1} - V_{3\omega 2})} \frac{dR}{dT}$$

(3)

où $V_{1\omega}$ est l'amplitude de la première harmonique de la tension du fil et R la résistance électrique au repos du fil.

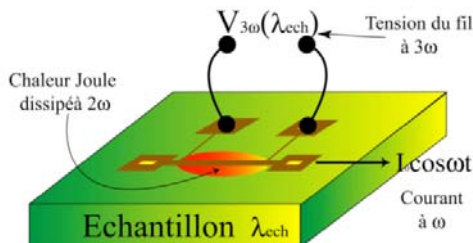


Figure 3 : Méthode 3ω

Méthode Mirage

La figure 3 montre le principe de cette méthode. L'échantillon est chauffé périodiquement par un faisceau pompe modulé. La diffusion de la chaleur correspondante provoque une variation de l'indice de réfraction de l'air à proximité de l'échantillon. Un deuxième laser, en direction parallèle à la surface de l'échantillon, frôle cette dernière. Le faisceau est dévié par les variations d'indice de l'air. Cette déflexion est détectée à l'aide d'une photodiode à quadrants. L'angle de déflexion $\phi||$ transverse à la surface obéit à la loi :

$$\phi|| = |\phi|| e^{-i\left(\omega t + \frac{x}{l_c} + \epsilon\right)}$$

où ω est la pulsation du faisceau pompe, x le déplacement latéral du faisceau pompe dans la direction du faisceau sonde; l_c est la longueur caractéristique de l'onde thermique, et ϵ est une fonction dépendant de plusieurs paramètres du montage expérimental, et que l'on considère constante.

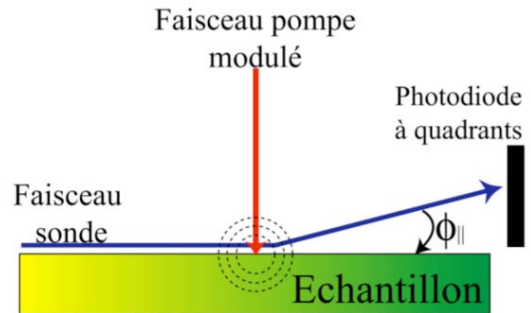


Figure4 : Méthode Mirage

Il est évident que le fait de déplacer la pompe par rapport à la sonde de façon perpendiculaire entraîne une variation linéaire de la phase de la température. Une régression linéaire de la phase obtenue à différentes positions permet l'extraction de la longueur caractéristique de l'onde thermique. On en tire la diffusivité par la relation :

$$a = \frac{\omega}{2} l_c^2$$

(5)

Cette relation est valable pour un faisceau sonde très proche de la surface de l'échantillon. Dans le cas contraire, on risque de mesurer les propriétés de l'air. Heureusement, cet effet affecte la mesure seulement avec un fond continu. On peut s'en affranchir en faisant des mesures relatives :

$$a = \frac{1}{2} \left(\frac{\frac{\Delta l_c}{\Delta \frac{1}{\sqrt{\omega}}}}{\Delta \frac{1}{\sqrt{\omega}}} \right)^2$$

(6)

SThM (Scanning Thermal Microscopy)

Le microscope à force atomique est un instrument versatile, allant des applications d'imagerie thermique et de déformation à la mesure localisée de conductivité. Dans cette section on s'intéressera à la mesure de conductivité thermique.

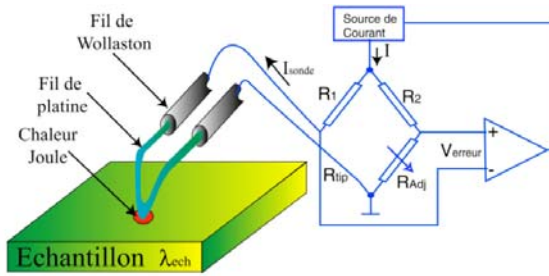


Figure 5 : Principe de la mesure de λ avec STHM

La sonde de l'STHM (voir figure 5) consiste en un fil de Wollaston en platine gainé avec de l'argent. Une partie du fil de platine est dénudée à l'extrémité de la sonde. Le fil fait partie d'un pont de Wheatstone. Une boucle de contre-réaction relie la tension du pont au courant injecté à travers des variations de résistivité électrique du fil en platine. En effet, le système est au repos quand la sonde est hors contact. On ajuste R_{adj} de manière à avoir $V_{erreur}=0$. Un courant de repos I_0 traverse le pont. En réalité, la pointe se comporte comme un élément chauffant, dissipant de la chaleur à un taux de $R_{pointe}I_{sonde}^2$, et ayant une température moyenne de repos T_0 .

Quand la sonde entre en contact avec l'échantillon, les fuites de chaleur vers ce dernier font chuter la température du fil, donc sa résistivité électrique. Le pont est ainsi déséquilibré, V_{erreur} n'est plus nul. Par contre-réaction, le courant dans le pont est modifié proportionnellement à la variation de température du fil. Le courant augmente, le fil dissipe davantage de chaleur et sa température remonte. Il retrouve à nouveau sa température moyenne de repos, mais maintenant le courant du pont est $I=I_0+I_{ech}$. Une procédure de calibrage permet de retrouver la conductivité thermique de l'échantillon à partir des variations de courant dans le pont.

Thermoréflectance picoseconde

L'étude du transfert de chaleur aux échelles micro et nanométriques, nécessite le plus souvent de travailler sur de faibles échelles de temps allant de quelques ps à quelques ns. Depuis son apparition, la technique pompe-sonde optique utilisant des impulsions laser de durée allant de quelques dizaines de femtosecondes à quelques dizaines de nanosecondes, s'est imposée comme un moyen indispensable à la caractérisation des propriétés thermophysiques des structures étudiées selon leur nature (métal, semi-conducteur, ou isolant), et leur état cristallin (monocristal, polycristal, ou amorphe). Cette méthode optique s'est montrée bien adaptée à l'étude des petits systèmes (films minces, multi couches, super-réseaux, nanoparticules). Ces performances tiennent dans trois caractéristiques essentielles :

- □ C'est une méthode de mesure sans contact.

- □ Lorsque la structure étudiée est un film métallique, ou recouverte d'un film métallique, pour la majorité des longueurs d'onde utilisées, la profondeur de pénétration optique est très faible, de l'ordre de quelques nm.
- □ C'est une technique dotée d'une très grande dynamique temporelle, ce qui permet l'étude des phénomènes extrêmement rapides.

Le champ d'applications de la technique s'est étendu à partir des années 90 grâce au développement de nouvelles sources laser femtoseconde fiables et faciles d'emploi, avec des durées de l'ordre de 100fs. Dans cette technique, une impulsion laser ultracourte intense la « pompe » permet l'excitation thermique du système étudié, et une autre impulsion de faible intensité « la sonde », pour être considérée comme non perturbatrice, permet la détection de l'élévation de température engendrée par la pompe.

La thermoréflectance picoseconde est une technique résolue en temps. L'absorption d'une impulsion laser pompe sub-picoseconde par un film mince génère par effet photo-thermique une contrainte thermique, cette dernière donnera par la suite naissance à une contrainte élastique. Une onde de pression se crée et commence alors sa propagation en même temps que la diffusion de chaleur dans le film.

La faible pénétration optique de la technique pompe-sonde lui confère une très haute résolution axiale, et ainsi une très grande flexibilité quant à l'étude du transfert de chaleur dans les systèmes étudiés. Cette technique convient parfaitement à l'étude du transfert de chaleur sur des échelles nanométriques comme c'est le cas dans les films minces, les multicouches, et les super-réseaux.

La structure étudiée est alors couverte d'un film métallique de faible épaisseur. L'absorption de l'impulsion laser pompe focalisée sur la surface du film, crée une variation de température ΔT à sa surface, cette variation induit à son tour une variation de réflectivité de la surface du film ΔR . La mesure de ΔR au même temps que le film se refroidit dans la structure étudiée se fait via un train d'impulsions sonde retardé par rapport au train d'impulsions pompe. La comparaison de la courbe expérimentale à la courbe théorique permet par optimisation des paramètres libres, d'extraire la composante perpendiculaire et dans certaines conditions la composante transverse de la conductivité thermique de la structure étudiée, ainsi que la résistance thermique de l'interface film/structure. Souvent, le transfert radial peut être négligé, et un modèle unidimensionnel est largement suffisant pour modéliser le transfert de chaleur dans la direction normale à la surface du film. Ceci est dû à la grande taille des spots laser

pompe et sonde ($\sim 20\mu\text{m}$ de diamètre) en comparaison avec la profondeur d'investigation dans la structure (quelques dizaines de nm). Il faut noter que cette technique, au contraire de la technique 3ω , permet de distinguer entre la conductivité thermique d'un film mince et la résistance thermique de ces interfaces. La figure 6 illustre un cas de figure typique dans lequel il est possible d'identifier les propriétés thermiques d'une structure multicouche de l'ordre de dont l'épaisseur est inférieur à 300nm.

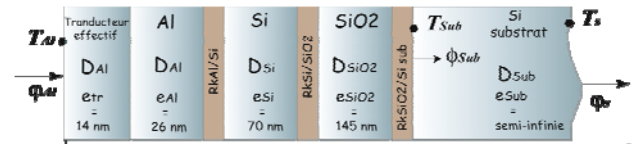


Figure 6 : Vue en coupe d'une structure multicouche nanométrique