

# Conductivité thermique de films de Nitrure d'Aluminium élaborés par pulvérisation magnétron

Cyril DUQUENNE<sup>1</sup>, Marie-Paule BESLAND<sup>1\*</sup>, Pierre-Yves TESSIER<sup>1</sup>,  
Dominique AVERTY<sup>2</sup>, Abdou DJOUADI<sup>1</sup>, Philippe GUILLEMET<sup>3</sup>, Yves SCUDELLER<sup>3</sup>

<sup>1</sup>Institut des matériaux Jean Rouxel, IMN, Université de Nantes, CNRS, 2 rue de la Houssinière, 44300 Nantes

<sup>2</sup> Université de Nantes, IREENA, 2, rue de la Houssinière, 44322 Nantes Cedex 3, France

<sup>3</sup> Université de Nantes, Ecole Polytechnique, LGMPA, rue Christian Pauc BP 50609 44306 Nantes

\* (auteur correspondant : Marie-Paule.Besland@cnsr-immn.fr)

**Résumé** - La conductivité thermique de films de Nitrure d'Aluminium, élaborés par pulvérisation magnétron, a été mesurée par une technique de type transitoire à bande chaude, spécifiquement développée pour la caractérisation des couches minces. Cette méthode est basée sur l'analyse de l'évolution temporelle de la température d'un film métallique déposé sur le matériau à caractériser. Nous avons mis en relation les caractéristiques structurales des films AlN analysés et leur conductivité thermique.

## Nomenclature

$V$	Tension de déséquilibre du pont, $V$	$\lambda$	Conductivité thermique effective, $W.m^{-1}K^{-1}$
$U$	Tension d'alimentation du pont, $V$	$c_p \cdot \rho$	Capacité calorifique, $J.K^{-1}.m^{-3}$
$\beta$	Coefficient de température, $K^{-1}$	$R_{film}$	Résistance thermique du film, $K m^2 W^{-1}$
$\omega$	Facteur de pont	$R_{Si/AlN}$	Résistance thermique interface $K m^2 W^{-1}$
$T_m$	Température moyenne du ruban, $K$	$\lambda_{film}$	Conductivité thermique intrinsèque, $W.m^{-1}K^{-1}$
$T_0$	Température initiale du ruban, $K$		
$t$	temps, $s$		
$e$	Epaisseur du film, $m$		

## 1. Introduction

Dans la littérature, l'étude de la conductivité thermique des matériaux en couches minces montre une grande disparité de résultats et des variations sur plusieurs ordres de grandeur. Cette disparité peut être expliquée par la diversité structurale et morphologique des matériaux étudiés. Peu de méthodes permettent de caractériser parfaitement les propriétés thermiques des couches minces. A notre connaissance, aucune étude reliant les propriétés physico-chimiques des couches minces de nitrure d'aluminium de l'ordre du micromètre à leurs propriétés thermiques n'a été rapportée dans la littérature.

Afin d'étudier la conductivité thermique de films AlN, déposés par pulvérisation magnétron DC, nous avons développé une méthode de mesure originale basée sur un nouveau type de capteur et un système de mesure directement intégrés à la surface de l'échantillon à tester. Cette conception a permis de palier les principaux inconvénients de méthodes photo-thermiques et électrothermiques adaptées à la caractérisation de films minces [4,5]. Dans un premier temps, la technique de mesure a été validée par des mesures préliminaires effectuées sur différents matériaux de référence, puis les propriétés thermiques de films de nitrure d'aluminium obtenus dans différentes conditions expérimentales ont été déterminées.

## 2. Techniques expérimentales

Les films AlN ont été réalisés par pulvérisation cathodique magnétron diode continue (DC) d'une cible d'aluminium, en plasma réactif Argon/Azote sur substrat silicium (100). Le réacteur utilisé a été présenté en détail dans des travaux antérieurs [1] : il se compose d'une cathode magnétron de 50mm de diamètre, équipée d'une cible d'aluminium pur à 99,9995% et excitée par une source de tension continue. Le substrat peut être relié à la masse ou à un potentiel flottant dont la valeur peut être ajustée au moyen d'une résistance placée en série entre la masse et le porte-substrat. Les films ont été déposés sans chauffage de l'échantillon, dans une gamme de pression allant de 0,3 à 2 Pa, pour un flux de gaz total fixé à 12,5 sccm et un rapport azote/argon compris entre 10 et 60 %. Pour cette étude, la puissance électrique injectée au niveau de la cible a été fixée à 150 W. Deux configurations magnétiques de la source magnétron, décrites précédemment [2,3], ont été utilisées. Les films AlN ont été analysés par microscopie électronique à balayage (MEB) et leurs compositions chimiques ont été déterminées par spectroscopie de dispersion d'énergie des électrons secondaires (EDS). Leurs microstructures ont été déterminées par Diffraction de Rayons X (DRX) en configuration  $\Theta/2 \Theta$ . Des analyses par spectroscopie Infrarouge à Transformée de Fourier (FTIR) ont finalement complété les analyses physico-chimiques.

Les propriétés des films de nitrure d'aluminium ont été déterminées par une technique transitoire à bande chaude, spécifiquement développée pour la caractérisation des couches minces conductrices thermiques, tels que l'AlN. La conception d'un micro capteur de conductivité thermique intégré a été nécessaire. La mesure consiste à analyser l'évolution temporelle de la température d'un ruban métallique déposé en couche mince sur le film à caractériser, consécutive à son excitation thermique par une impulsion électrique. Le ruban, constitué d'un métal tel que l'aluminium, le nickel ou l'or, forme l'une des branches d'un pont de Wheatstone (Figure 1). La mesure de la tension de déséquilibre du pont consécutive à son excitation électrique par une brusque variation de la tension d'alimentation du pont, maintenue constante pendant quelques dizaines de microsecondes, permet de suivre l'évolution de la température du ruban à tout instant. Des micro-capteurs ont été réalisés par photo-lithographie à partir de films d'aluminium de 50 nm déposé par pulvérisation magnétron sur chaque échantillon à caractériser.

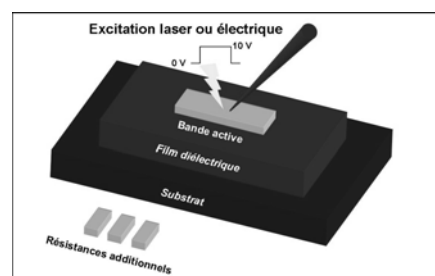


Figure 1 : Schéma de principe de la méthode de mesure de conductivité thermique.

L'échauffement du ruban à tout instant, consécutive à son excitation électrique est donnée par la relation (1) :

$$T_m - T_0 = \frac{V}{\omega \cdot \beta \cdot U} \quad (1)$$

$T_m$  est la température moyenne du ruban,  $T_0$  la température initiale du ruban,  $U$  la tension d'alimentation du pont,  $V$  la tension de déséquilibre du pont,  $\omega$  le facteur de pont,  $\beta$  le coefficient de température du ruban. Pour un pont parfaitement équilibré on a  $\omega = 0.25$ .

L'étalonnage, réalisé in-situ donne approximativement,  $\beta = 1.0 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ . La conductivité thermique est déterminée en ajustant l'évolution de la température du ruban, calculée par un modèle de diffusion thermique non-stationnaire sur tout ou partie du signal mesuré. Cet ajustement est réalisé par minimisation de l'écart quadratique E donné par la relation (2) :

$$E(\mu) = \sum_t (T^m(t) - T^c(\mu, t))^2 \quad (2)$$

$T^c$  est la température calculée par le modèle et  $T^m$  la température mesurée. La minimisation a été réalisée par un algorithme de type génétique [4]. L'identification s'appuie un modèle de diffusion thermique bidimensionnel qui a été validé par des simulations numériques 3D pour les temps considérés (quelques dizaines de microsecondes). Le ruban est considéré comme une capacité thermique (élément isotherme). Le film est supposé homogène, en contact parfait avec le substrat et le ruban, de sorte que la conductivité introduite est une grandeur effective prenant en compte l'existence d'une zone de transition à l'interface film-substrat.

### 3. Résultats

#### 3.1. Propriétés thermiques des films AlN

L'analyse physico-chimique détaillée des deux familles de films AlN synthétisés par pulvérisation magnétron a été décrite par ailleurs [2]. La première famille de films AlN, notée famille (A), présente de multiples orientations cristallographiques préférentielles (100) / (002) / (101), une taille de grain de l'ordre de 30 nm et un taux d'oxygène de 2 % at., les films sont peu denses et faiblement texturés, d'épaisseur 0,8 à 2,3  $\mu\text{m}$ . La deuxième famille de films AlN, notée famille (B), présente une taille de grain supérieure à 100 nm et un taux d'oxygène de 0,2 % at. Ces films sont très denses et fortement texturés selon (002), d'épaisseur 150 nm à 3,5  $\mu\text{m}$ . La rugosité de surface de ces films (RMS), déterminée par AFM, varie de 1 à 5 nm. Les Figures 2 et 3 présentent un exemple de signal thermique obtenu et le signal théorique associé (tracé discontinu), pour les deux familles de films, respectivement famille (A) et famille (B). L'encart de la Figure 3 donne la différence entre les courbes théorique et expérimentale en fonction du temps pour le film de la famille (B). Le modèle utilisé se compose d'une couche mince de métal, du film étudié et du substrat de silicium. Pour les deux familles, le modèle théorique s'ajuste parfaitement aux données expérimentales. Les valeurs de conductivité thermique sont de  $39 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$  et  $130 \pm 10 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$ , respectivement pour le film de 1,5  $\mu\text{m}$  de la famille (A) et le film de 3,5  $\mu\text{m}$  de la famille (B).

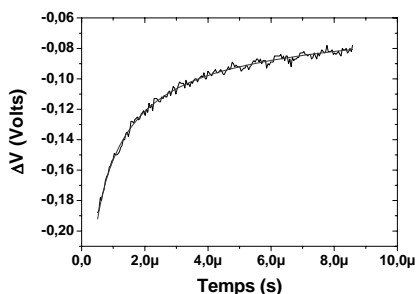


Figure 2 : Signaux électriques expérimental et théorique obtenus pour un film AlN de la famille (A) d'épaisseur 1.5  $\mu\text{m}$ .

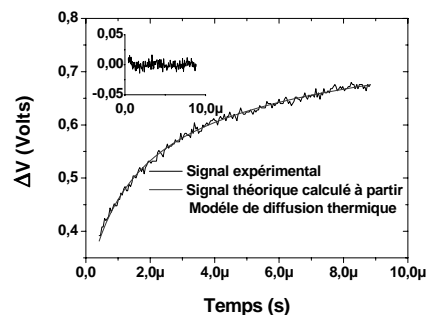


Figure 3 : Signaux électriques expérimental et théorique obtenus pour un film AlN de la famille (B) d'épaisseur 3.5  $\mu\text{m}$ .

### 3.2. Relation entre qualité cristalline et conductivité thermique

Les films AlN de la famille (A) présentent de multiples orientations cristallographiques préférentielles (100) / (002) / (101). Les valeurs de conductivité thermique déterminées varient sur un ordre de grandeur passant de  $2 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$  à plus de  $40 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$ . La Figure 4 rassemble les résultats obtenus: les conductivités thermiques obtenues pour les différentes orientations préférentielles des films sont reportées en fonction des valeurs de la largeur à mi-hauteur du mode de vibration infra rouge  $E_1(T_0)$ . L'ensemble des résultats montre que les films AlN présentant une orientation préférentielle (100) ont une conductivité thermique inférieure à  $10 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$ . La conductivité thermique des films d'AlN orientés (002) varie de 4 à  $26 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$  et les films orientés préférentiellement (101) ont une conductivité comprise entre 30 et  $50 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$ . La Figure 5 présente les spectres FTIR obtenus pour deux films de la famille (A): un film faiblement cristallisé d'épaisseur  $2,3 \mu\text{m}$  et un film de nitrure d'aluminium bien cristallisé d'épaisseur  $2 \mu\text{m}$ , présentant respectivement des conductivités thermiques de  $15 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$  et  $44 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$ . La variation de conductivité thermique des films AlN apparaît fortement liée à la largeur à mi hauteur du mode IR  $E_1(T_0)$  et donc à leur qualité cristalline. Par contre, il est difficile de conclure quant à l'effet de l'orientation préférentielle sur la conductivité thermique des films AlN étudiés.

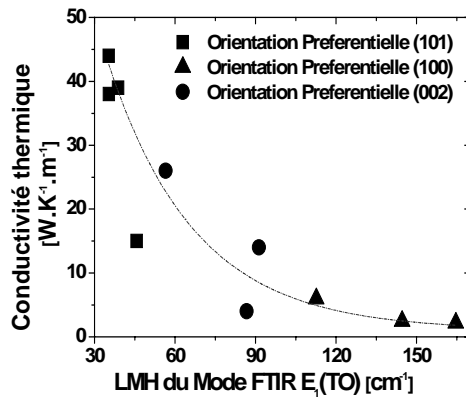


Figure 4 : conductivité thermique de films de nitrure d'aluminium en fonction de la largeur à mi-hauteur (FWHM) du mode FTIR  $E_1(T_0)$

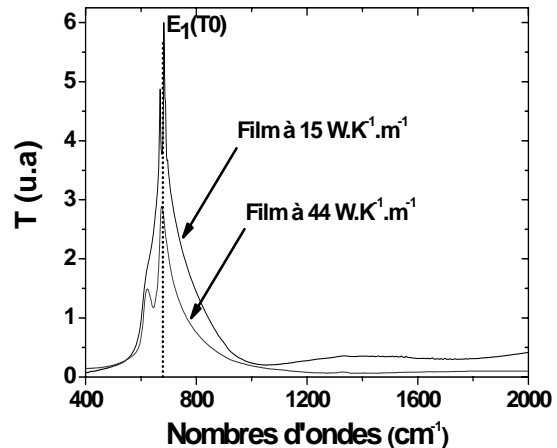


Figure 5 : spectres FTIR de films AlN de conductivité thermique  $44 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$  et  $15 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$

### 3.3. Relation entre l'épaisseur du film et conductivité thermique

Pour les films AlN de la famille (B), la cristallinité évolue fortement avec l'augmentation de l'épaisseur des films. La conductivité de films d'épaisseur comprise entre 150 nm et 3500 nm a été mesurée, afin de caractériser la conductivité du matériau i) au voisinage de l'interface Si/AlN, où le matériau est faiblement cristallisé et ii) dans le volume, où les films sont fortement cristallisés. Les mesures ont été analysées avec un modèle de diffusion thermique 2D faisant intervenir i) la capacité calorifique spécifique du capteur ii) la chaleur spécifique du film à analyser fixée à  $2,7 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$  et iii) la conductivité thermique et la chaleur spécifique du substrat silicium, fixées respectivement à  $150 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$  et  $1,6 \times 10^6 \text{ J.m}^{-3}.\text{K}^{-1}$ . La Figure 6 présente l'évolution temporelle de l'impédance thermique du ruban (rapport échauffement/densité de puissance) pour les différents échantillons étudiés..

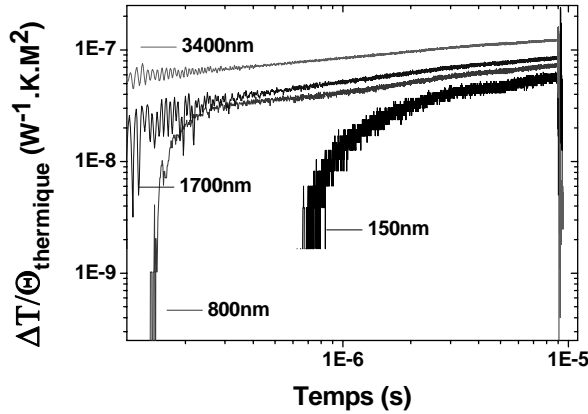


Figure 6 : Evolution de la température du capteur / flux thermique des films AlN en fonction du temps pour des films de différentes épaisseurs.

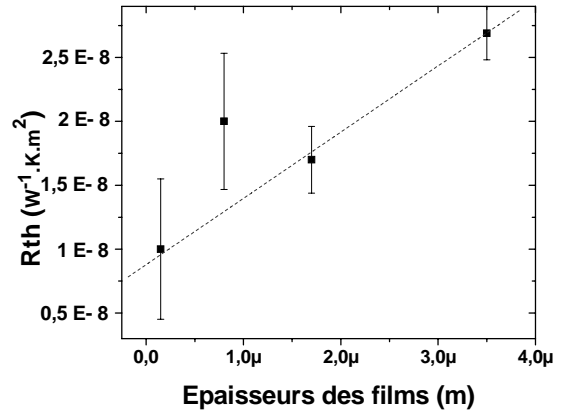


Figure 7 : Evolution de la résistance thermique des films AlN de la famille (B) avec l'épaisseur et la régression linéaire associée ( $R^2=0,973$ ,  $R_{interface} = 8,8 \times 10^{-9} \pm 2 \times 10^{-9} \text{ W}^{-1} \cdot \text{m}^2 \text{K}$  et  $1/\lambda = 5,2 \times 10^{-3} \pm 9 \times 10^{-4} \text{ W}^{-1} \text{mK}$ ).

Le Tableau 1 présente la conductivité thermique pour quatre films AlN de la famille (B), d'épaisseur croissante de 150 à 3500 nm, qui varie de 17 à 130  $\text{W.K}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ . Pour ces mesures, les valeurs moyennes de la résistance et de l'épaisseur du capteur ont été respectivement de  $23 \pm 5 \Omega$  et  $60 \pm 10 \text{ nm}$  et le coefficient de température de  $1 \times 10^{-3} \text{ K}^{-1}$ . Le tableau donne également la densité de puissance dissipée par le micro ruban, la variation maximale de température du micro-ruban:

Epaisseur des films AlN	Conductivité thermique identifiée	Densité de puissance	Echauffement
nm	$\text{W.K}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$	$\text{W.m}^{-2}$	(°C)
150 nm	17 +/- 8	$7,3 \times 10^8$	8
800 nm	40 +/- 10	$6,8 \times 10^8$	11
1700 nm	100 +/- 15	$7,6 \times 10^8$	18
3500 nm	130 +/- 10	$9,0 \times 10^8$	24

Tableau 1 : Caractéristiques obtenues pour les films AlN de la famille (B) en fonction de leurs épaisseurs : Conductivité thermique, Densité de puissance dissipée, Echauffement de la micro résistance.

Les analyses ont été réalisées sur des temps inférieurs à  $10 \mu\text{s}$ . A partir des valeurs de conductivité effective identifiées, il est possible de tracer l'évolution de la résistance thermique des différents films en fonction de l'épaisseur (Figure 7). La droite obtenue est de type :

$$R_{film} = R_{Si/AlN} + \frac{e_{film}}{\lambda_{film}} \quad (4)$$

La valeur de  $R_{Si/AlN}$  à  $R_{film}(0)$  correspond à la résistance thermique d'interface Si/AlN, soit celle de la couche de transition de l'ordre de  $1 \times 10^{-8} \text{ W}^{-1} \cdot \text{K} \cdot \text{m}^2$ . Puis, la pente de la droite permet de déterminer la conductivité thermique intrinsèque du film égale à  $170 \pm 30 \text{ W.K}^{-1} \cdot \text{m}^{-1}$ , La forte conductivité thermique obtenue met en évidence la grande qualité cristalline du matériau en dehors de la zone de transition amorphe.

## 4. Conclusion

Les propriétés thermiques de films de nitrure d'aluminium, obtenus par pulvérisation magnétron, ont été déterminées par une méthode de mesure, spécifiquement développée pour la caractérisation de films de l'ordre du micron et bons conducteurs thermiques. Nous avons montré que la conductivité thermique était fonction de la qualité cristalline, sans pouvoir conclure sur l'effet de l'orientation préférentielle des films. Pour les films AlN de la famille (A), les valeurs de conductivité thermique mesurées restent très éloignées de la valeur théorique de conductivité thermique d'un monocristal AlN ( $320 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$ ), mais sont tout à fait comparables aux valeurs de  $40\text{-}50 \text{ W.K}^{-1}.\text{m}^{-1}$  de la littérature. Pour les films d'AlN de la famille (B) de meilleure qualité cristalline, l'étude de la conductivité thermique en fonction de l'épaisseur a permis d'estimer la résistance thermique d'interface à  $1,0 \times 10^{-8} \text{ W}^{-1}.\text{K}.\text{m}^2$  et d'obtenir une valeur de conductivité intrinsèque égale à  $170 \pm 30 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ . Cette valeur élevée se rapproche de la valeur pour un AlN massif et montre qu'une forte conductivité thermique peut-être obtenue même en couche mince. Les caractéristiques thermiques de ces films AlN restent inférieures à celle de l'AlN massif mais sont bien supérieures à celles des matériaux traditionnels de type oxyde ou nitrure de silicium utilisés pour la passivation des semi-conducteurs.

## Références

- [1] B.Angleraud, P.Y.Tessier, *Diamond and related materials* 12, (2003), 1093.
- [2] C. Duquenne, P.Y. Tessier, M.P. Besland, B. Angleraud, P.Y. Jouan, R. Aubry, S. Delage, M.A. Djouadi, *J. Appl. Phys.*, 104, (2008), 063301-1, 063301-8.
- [3] C. Duquenne, M.A. Djouadi, P.Y. Tessier, P.Y. Jouan, C. Brylinski, R. Aubry, S. Delage, M.P. Besland, *Appl. Phys. Lett.*, 93, (2008), 52905 .
- [4] S.Orain, Y.Scudeller, S.Garcia, T.Brousse. *International Journal of Heat and Mass Transfer*, 44 (2001) pp 3973-3984
- [5] S.Orain, Y.Scudeller, T.Brousse, *Microscale Thermophysical Engineering*, 5 (2001), pp265-273

## Remerciements

Cette étude a été réalisée avec le soutien financier d'Alcatel III-Lab. Les auteurs remercient A. Barreau pour les observations au MEB et les analyses par EDS, P.E. Petit pour les analyses structurales en diffraction X et J.Y. Mevellec pour les analyses spectroscopiques par FTIR.