

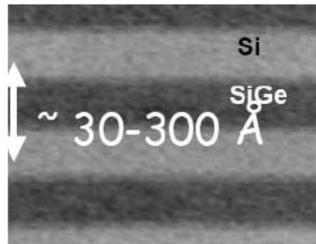
Caractérisation de propriétés thermophysiques locales: application aux nanostructures, milieux nanostructurés et interfaces

Séverine GOMES, Stéphane LEFEVRE
et Patrice CHANTRENNE

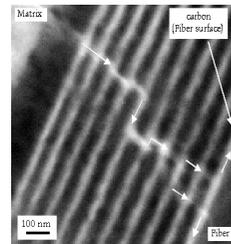
Severine.gomes@insa-lyon.fr

Micro et nanotechnologies

Matériaux nanostructurés

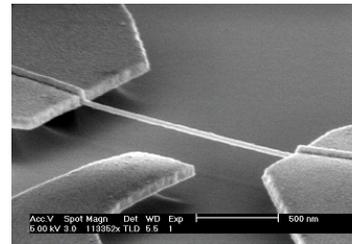


Superlattices



Nanosequenced
interphase, LCTS

Micro et nanosystèmes



NEMS, L.
Kouwenhoven and al.

Nouvelles propriétés et
comportements très
convoités par différents
secteurs industriels

Contrôle et maîtrise de la thermique de ces matériaux = facteurs d'efficacité

- *échauffement pouvant limiter leurs performances*
- *nombreuses défaillances d'origine thermique*

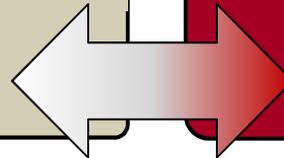
Compte tenu des échelles de longueurs considérées,

- Lois physiques macroscopiques ne sont plus utilisables pour décrire les transferts de chaleur
- Les métrologies thermiques classiques sont limitées en terme de résolutions

Deux approches complémentaires et incontournables

**Modélisation et
simulation des transferts
conductif et radiatif**

**Développement et
mise en œuvre de
métrologies
thermiques**



- Transfert conductif

*P. Chantrenne,
P-O. Chapuis*

**- Transfert radiatif aux petites
échelles (champ proche)**

R. Vaillon (coord. Thématique)

**- Caractérisations expérimentales
des transferts thermiques aux
micro et nano échelles**

*S. Gomès, S. Léfèvre, A. Assy, P-O.
Chapuis*

**- Mises en œuvre de la microscopie
thermique dans des conditions
non usuelles (applications)**

Moyens

Moyens de calculs:

- Cluster de l'Unité
- Centres de calculs locaux et nationaux FLCHP, CINES, IDRIS

Moyens expérimentaux:

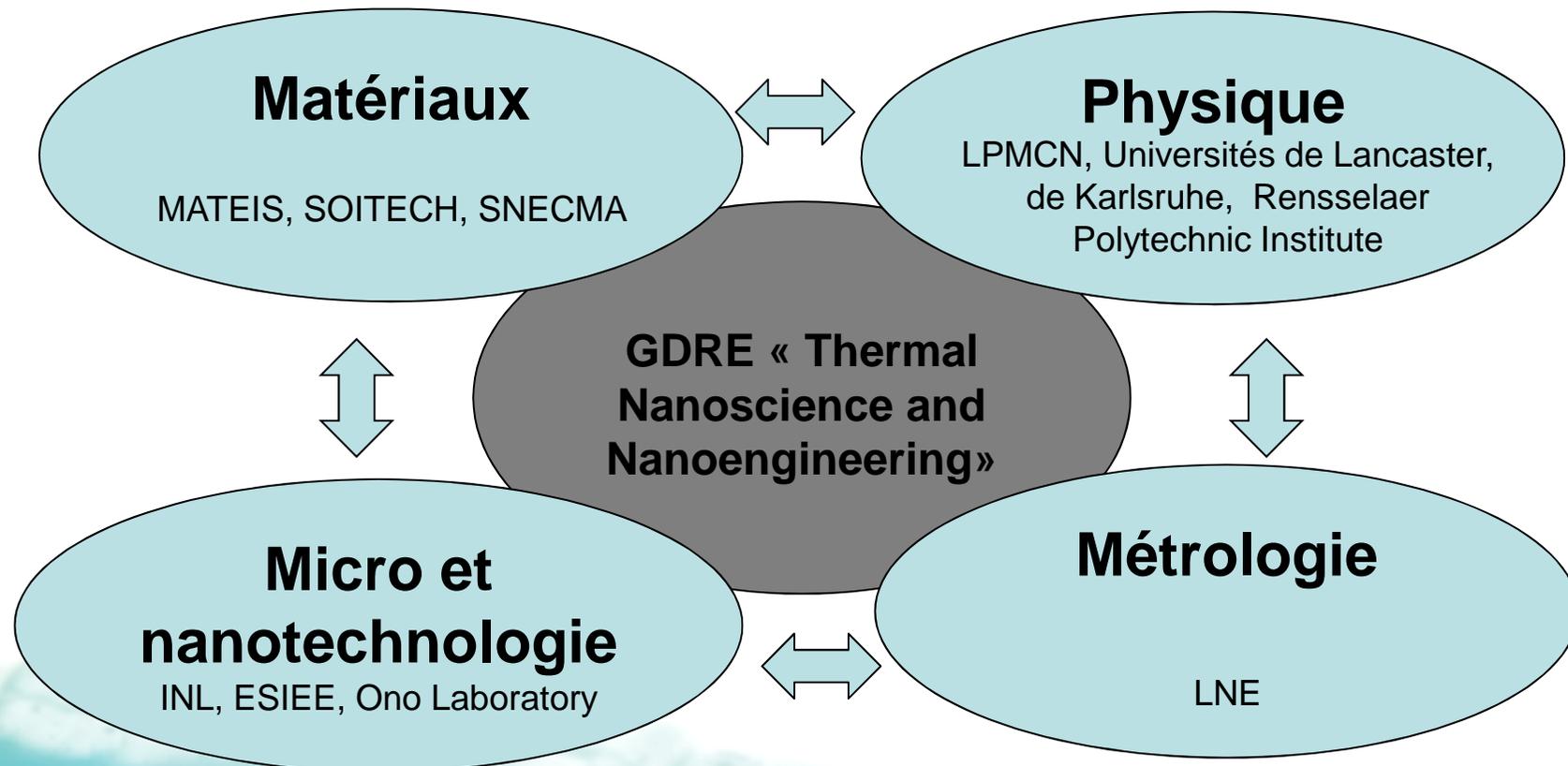
- **Plate forme de Microscopie interne (2 AFMs)**
- Consortium Lyonnais de Microscopie (CLYM)
- Plateforme Nanofils et Nanotubes de Lyon



Projets financés:

- ANR - programme Jeunes chercheurs, PNANO, Cluster Recherche « Microélectronique, Nanosciences et Nanotechnologie »
- Bonus qualité recherche INSA
- CNRS

Collaborations pluridisciplinaires



Zoom sur quelques résultats d'intérêts pour la micro-électronique



**Modélisation et simulation du transfert
conductif aux micro- et nano- échelles**



**Développement et mise en œuvre de
métrologies thermiques**

** Microscopie thermique à sonde locale: application à
l'étude de films minces et matériaux nanostructurés*

Actions mises en œuvre

- **Modélisation et simulation des propriétés de transport de nanostructures et de matériaux nanostructurés non ou peu conducteurs électriques**
- **Etude du couplage électron-phonon**

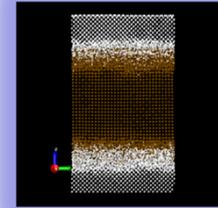
Approche

- ✓ **Simulation pour des nanostructures «idéales»**
- ✓ **Intégration progressive de la complexité (défauts structuraux, interfaces, rugosités) pour être représentatif des systèmes réels et de leur diversité**

Outils de modélisation/simulation

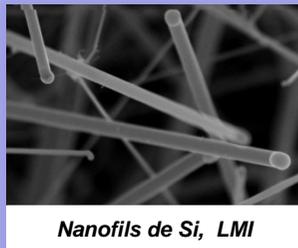
- **Dynamique moléculaire**

*Distribution des atomes pour
une interface Au/Si*



**Dimensions
de plus en
plus grandes**

- **Modèle basé sur la
théorie cinétique des gaz**



Nanoobjects

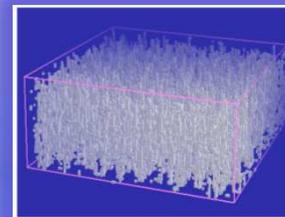
[Nanofils](#)

[Nanofilms](#)

- **Résolution de l'équation de transport
pour les phonons**

- Méthode des ordonnées discrètes
- Méthode de Monte Carlo

*Matériaux nanoporeux à
structure fractale*



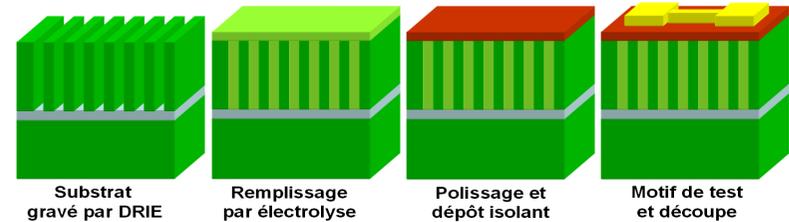
Échelle atomique

**Systemes et
géométries de
plus en plus
complexes et
réalistes**

Echelle
micrométrique

Transfert thermique dans des super-réseaux

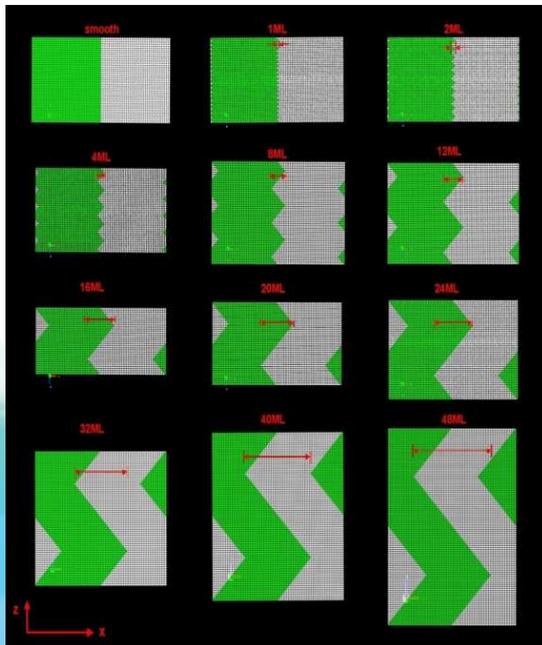
Application :
 Développement de nouveaux matériaux pour la conversion thermoélectrique
 Projet ANR COFISIS/Programme P3N
 ESIEE-CETHIL-MATEIS-MBDA



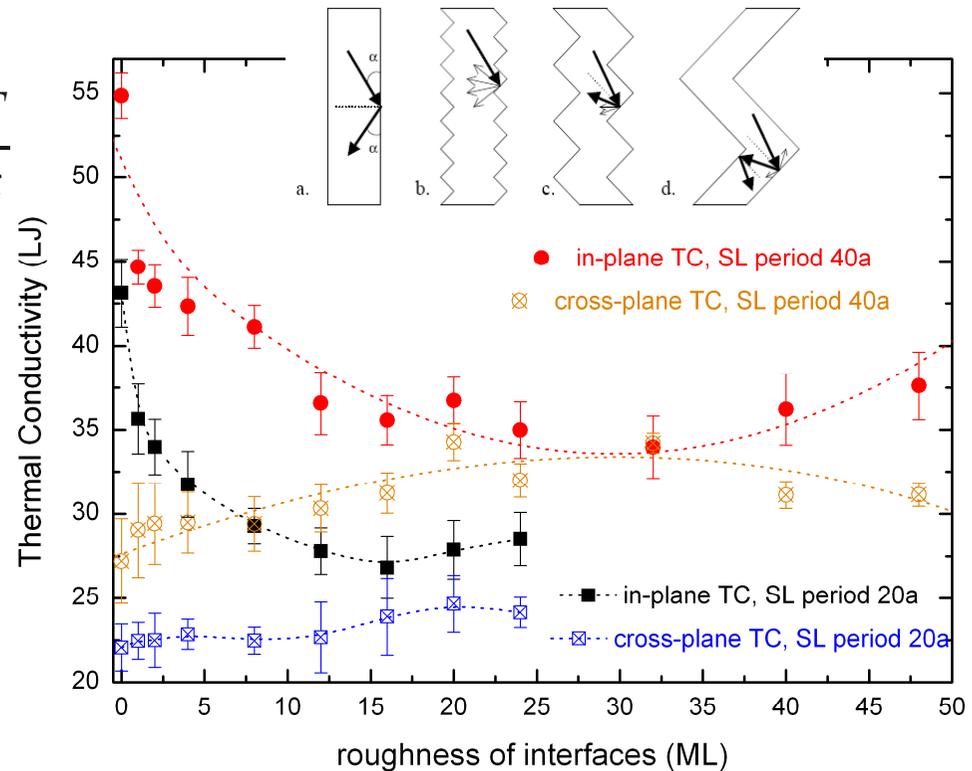
→ Composantes de la conductivité thermique $\lambda_{eq}^{||}$ et λ_{eq}^{\perp} de SRx

→ Influence de la rugosité d'interface

$$\frac{dQ}{dt} = -\lambda A \frac{dT}{dx}$$

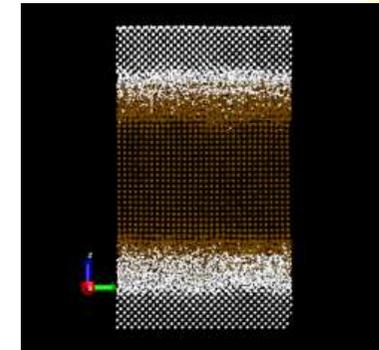


K. Termentzidis et al. *PRB* 79 2009 214307

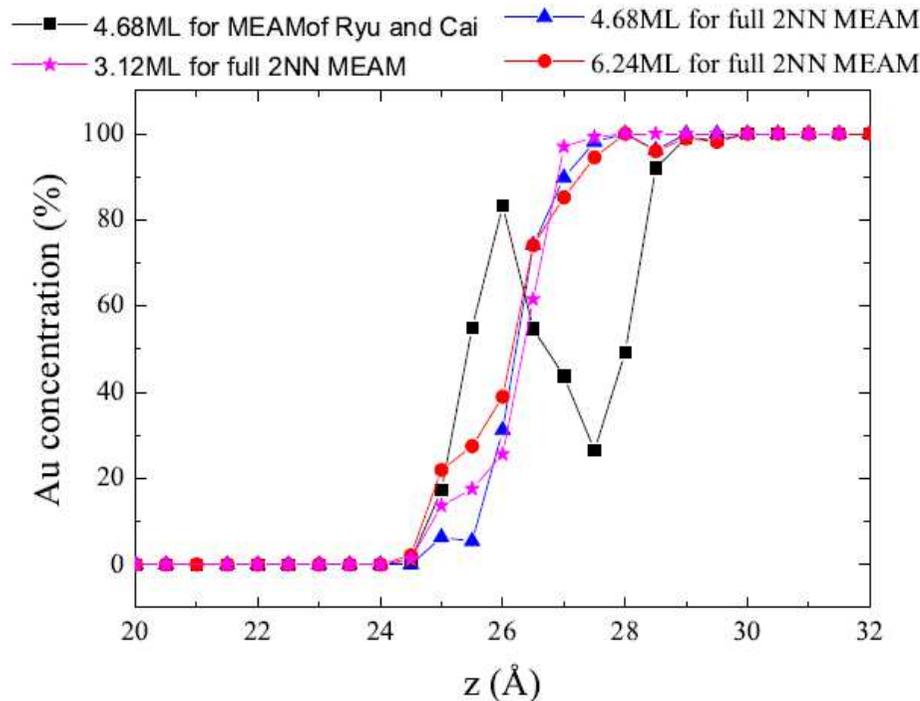


→ Conductance thermique d'interfaces diélectrique/métal

- Utilisation de la DM de non équilibre,
- Recherche des potentiels d'interaction atomique les plus appropriés pour décrire les systèmes binaires



Système étudié Si/Au



Méthodologie:

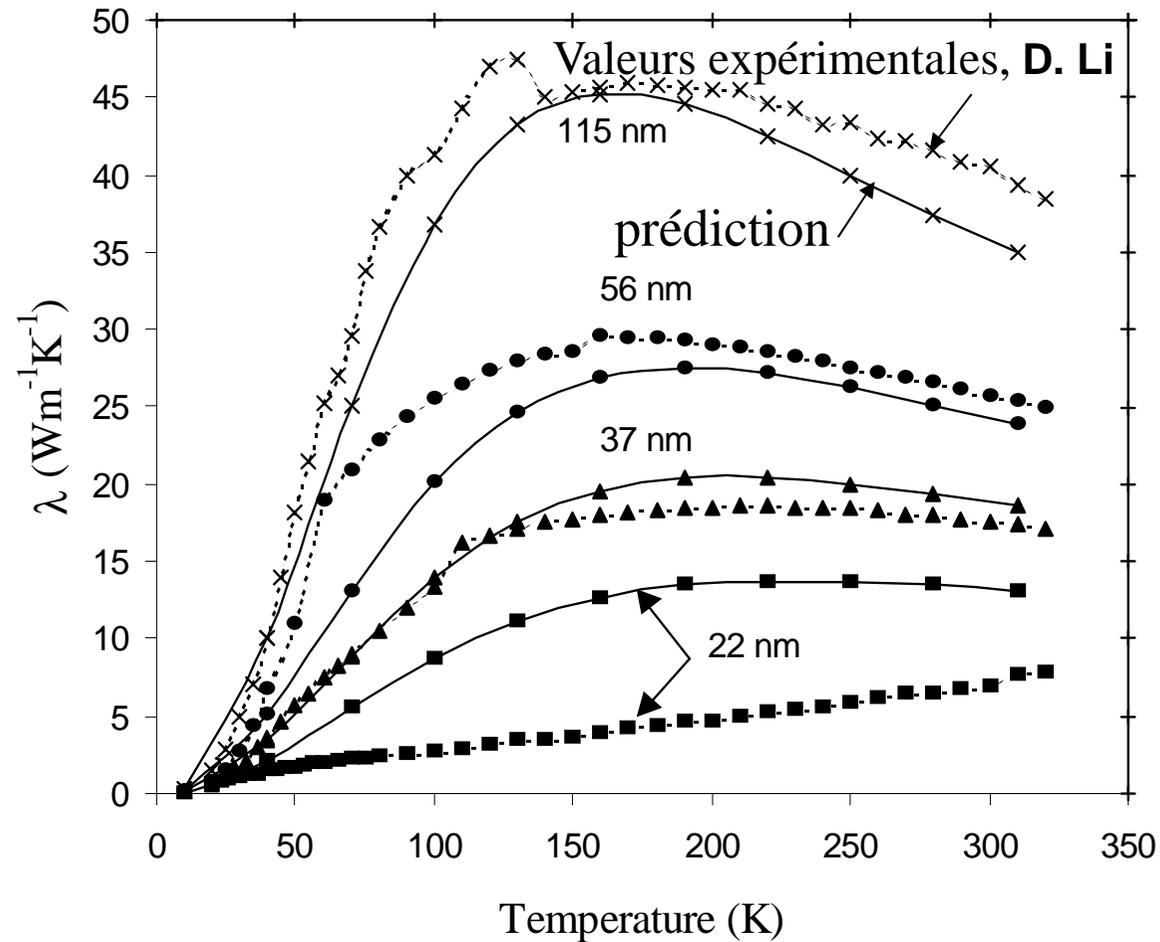
- comparaison des valeurs de propriétés physiques simulées avec différents potentiels de la littérature avec celles déterminées expérimentalement → choix +
- Apport d'une correction à ces potentiels pour tenir compte de l'interaction électron/phonon (calcul ab initio)

Thèse INSA Lyon 2011,
C. Abs Da Kruz; CETHIL

$$G_{\text{Si/Au}} = 160 \pm \text{MW/m}^2\text{K}$$



→ Conductivité thermique de fils de Si de 2 μm de long environ

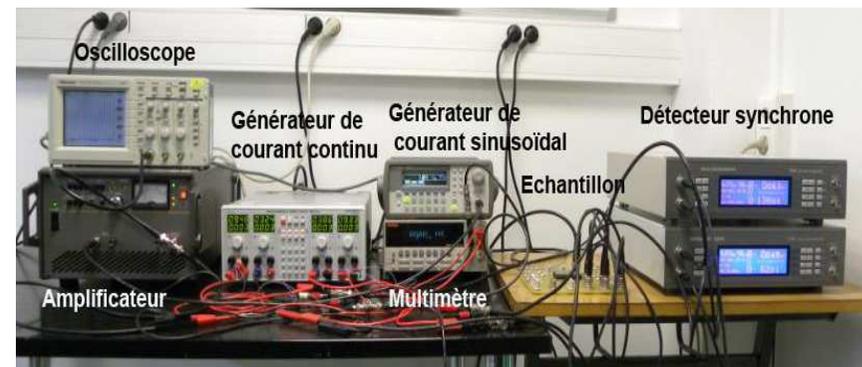
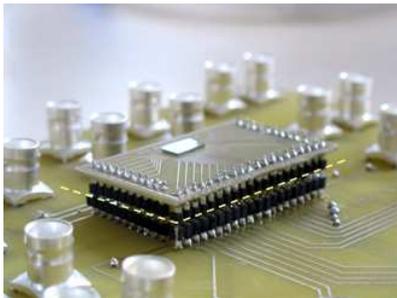


P. Chantrenne et al.,
JAP 97, (2005).

Actions mises en œuvre

- **Microscopie thermique à sonde locale - SThM**
- **Méthodes 2w et 3w** : application à l'étude de films ultraminces

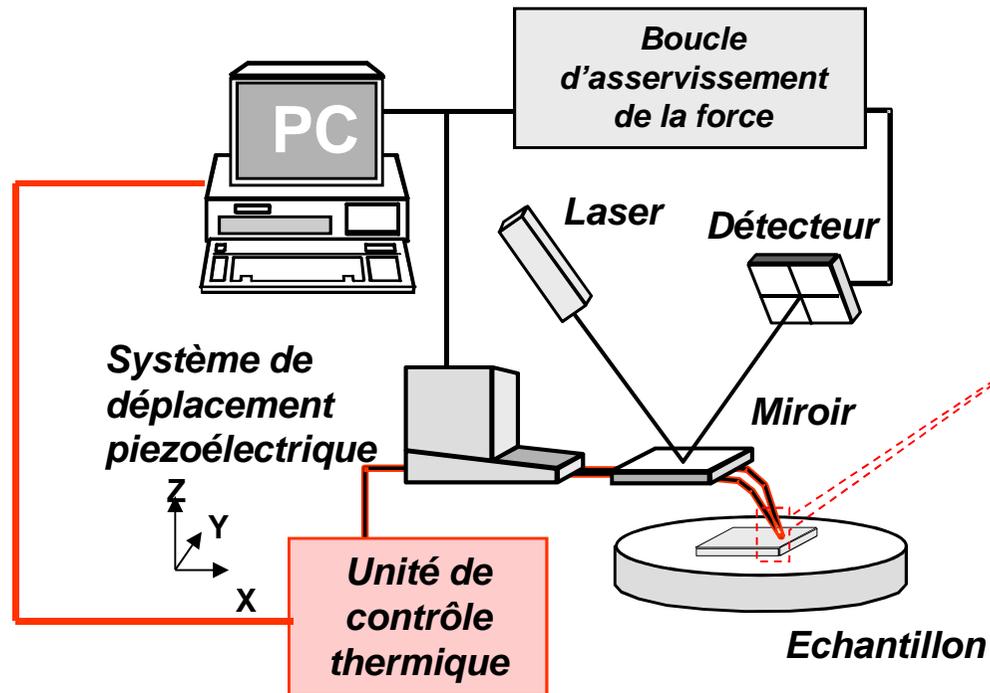
*Conception, fabrication et mise au point du dispositif en
collaboration avec ESIEE- Paris*



Approche

- ✓ Validation des méthodes sur des standards ou par inter-comparaison
- ✓ Applications à l'analyse de matériaux, structures,...

SThM = AFM + sonde thermique active

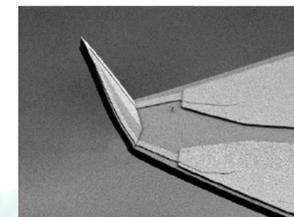
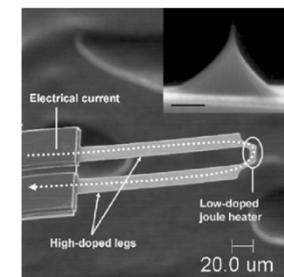
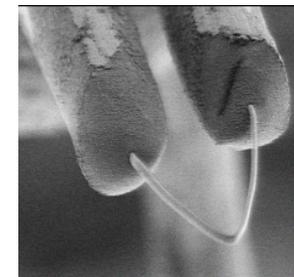


Différents modes:

- Analyse de la conductivité thermique
- Analyse thermomécanique
- Analyse thermoélectrique

Différentes sondes:

Bras de levier auto-chauffants



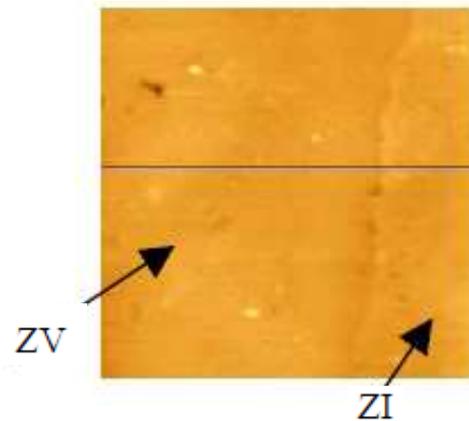
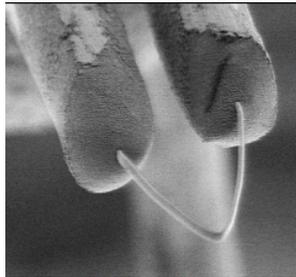
en fonction
de
l'analyse
visée

➔ **Images simultanée de la topographie et d'un contraste "thermique"**

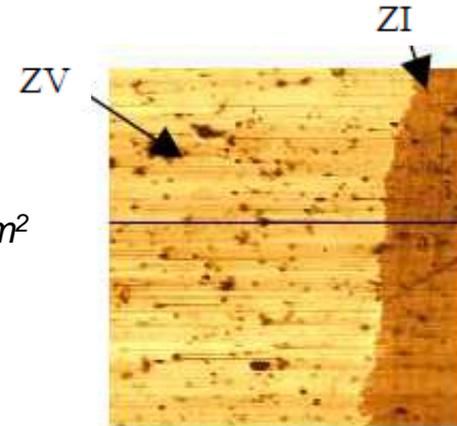
Topographie

Contraste thermique

Microsonde
filiforme
wollaston



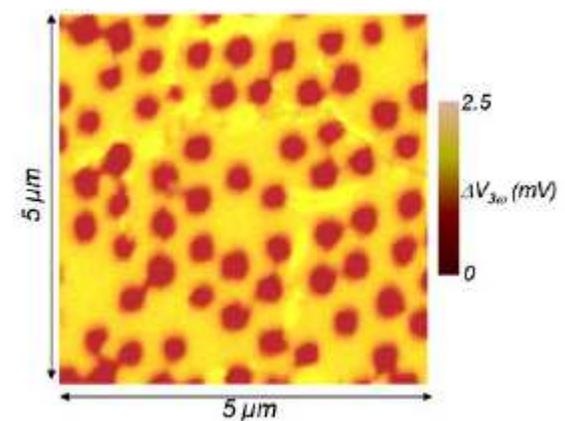
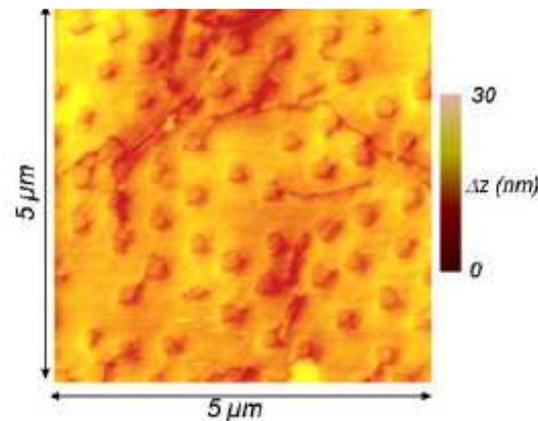
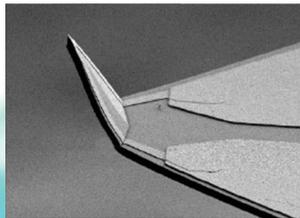
Images
80 X 80 μm^2



Thèse INSA
Lyon 2006,
L. David;
CETHIL

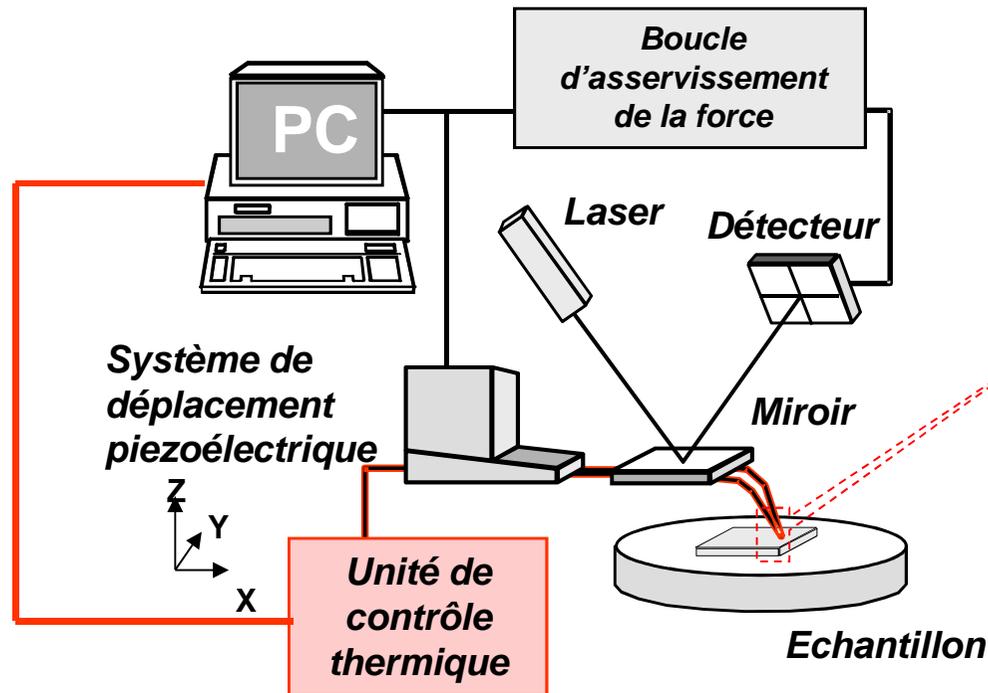
TiC SRMA au niveau de l'interface zone vierge/zone irradiée avec des ions Kr de 85 MeV

Nanosonde
Pd/SiO₂



Nanofils gravés de Si enrobés dans une matrice de SiO₂
(Thèse de l'Université Bordeaux1 2010, E. Puyoô)

SThM = AFM + sonde thermique active

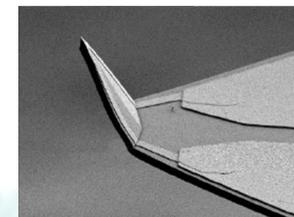
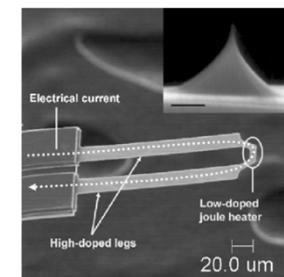
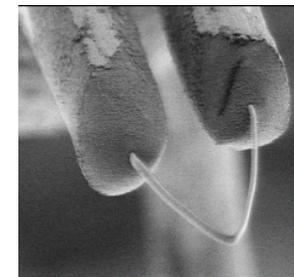


Différents modes:

- Analyse de la conductivité thermique
- Analyse thermomécanique
- Analyse thermoélectrique

Différentes sondes:

Bras de levier auto-chauffants



en fonction
de
l'analyse
visée

➔ **Images de topographie et d'un contraste "thermique"**

➔ **Mesure** : de quoi? avec quelles résolutions? Quelles incertitudes?

Trois problématiques spécifiques à la technique SThM

(1) OBJET

Matériau

Propriété recherchée et
définition aux micro et
nanoéchelles?

Etat de surface?

(2) DISPOSITIF DE MESURE

Sonde + Chaîne de mesure

Résolutions spatiales? Dynamique?
Caractéristiques?
Sensibilité? Limitations?
Procédure d'étalonnage? Etalons?

(3) INTERACTION POINTE/SURFACE

Mécanismes physiques opérant? prépondérant?
Description?

Paramètres
influant

Environnement
approprié

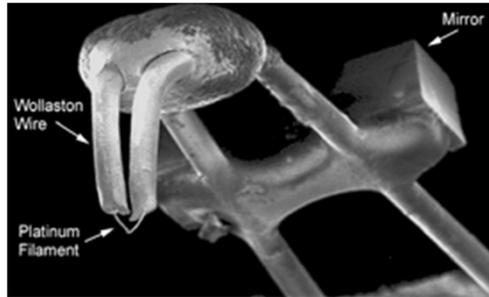
Modèle prédictif
de la mesure

Interprétation
de la mesure

Procédure
d'identification
de la grandeur
à mesurer

Voix
d'amélioration
de la méthode
(pointes)

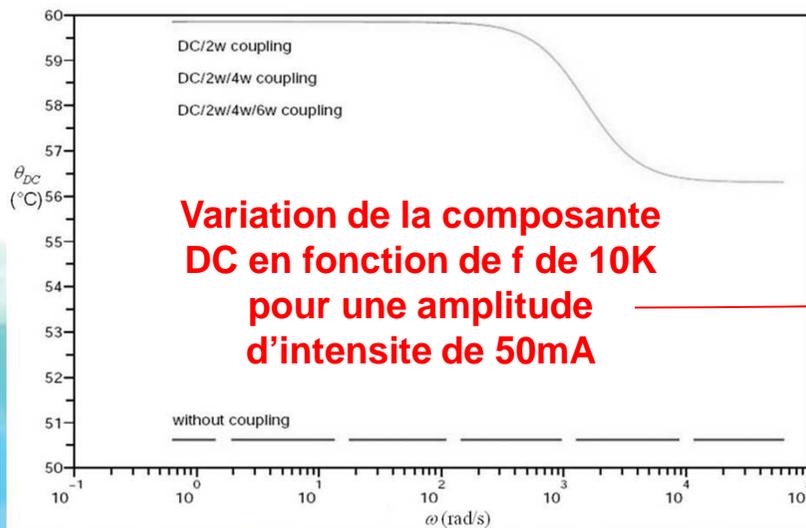
Microsonde de type Wollaston



Filament de platine
10% Rhodium
 $\alpha = 0.00165 \text{ K}^{-1}$
Longueur $200 \mu\text{m}$
Diamètre $5 \mu\text{m}$

- **Modes contact force constante de l'AFM**
- **2 régimes d'analyse : continu et modulé**

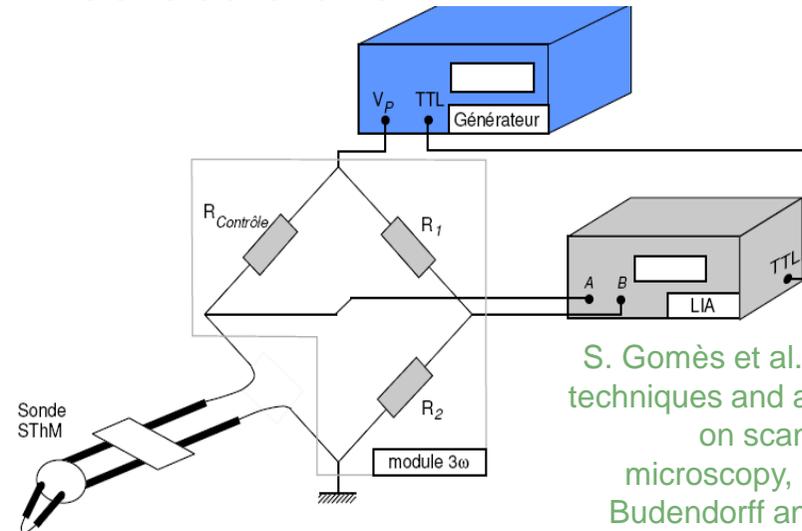
Dynamique des sondes



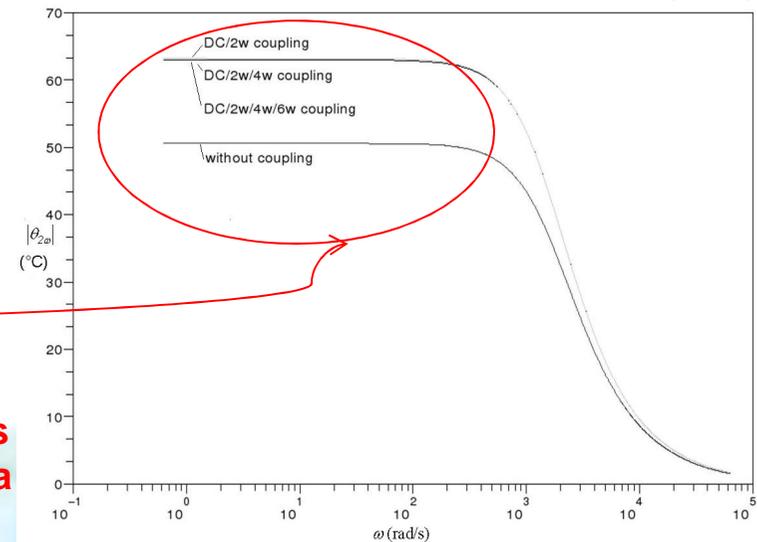
Composantes DC et 2w de la température moyenne de la sonde en fonction de la fréquence.

Couplage entre les harmoniques générées dans la sonde

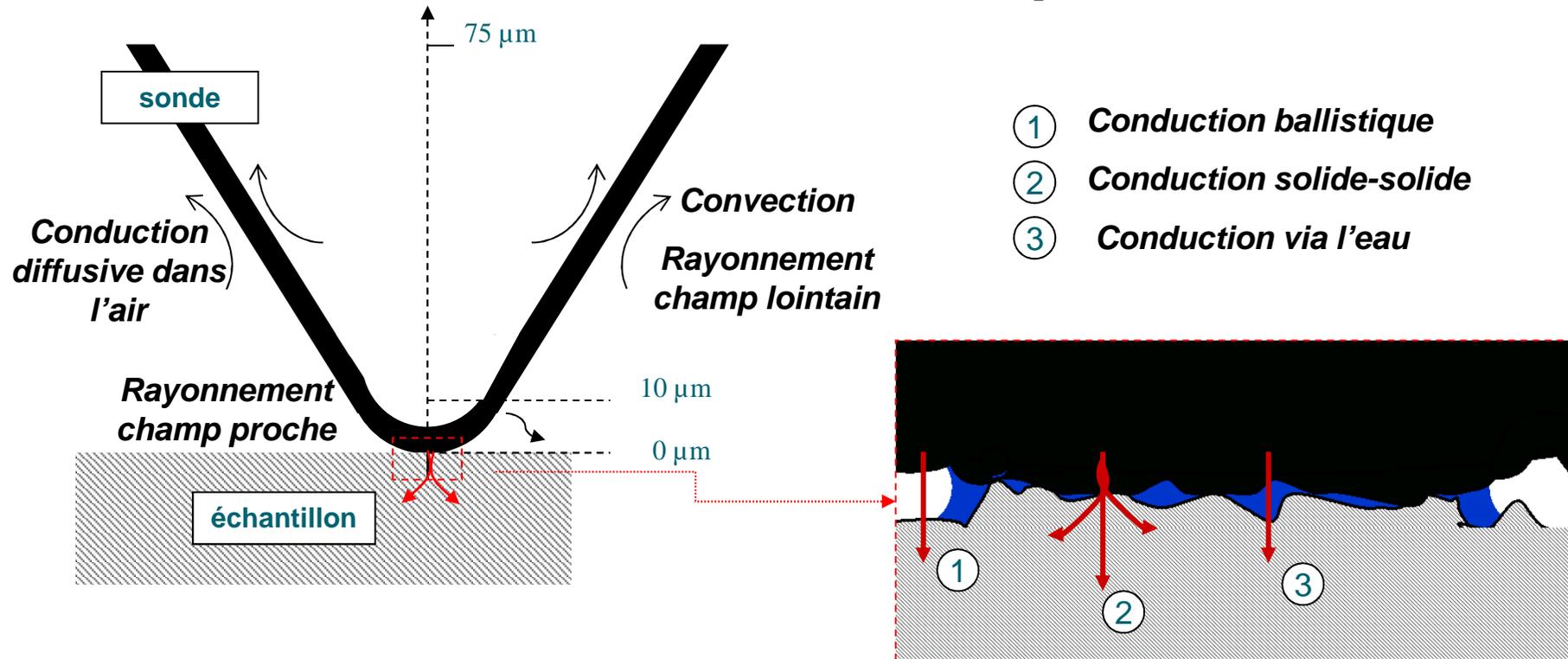
- Mise au point de « chaîne de mesure de laboratoire »



S. Gomès et al., Advanced techniques and applications on scanning probe microscopy, Editors J.L. Budendorff and F. H. Lei, (2009).



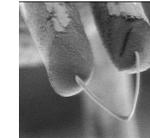
Mécanismes physiques de l'interaction thermique pointe/échantillon



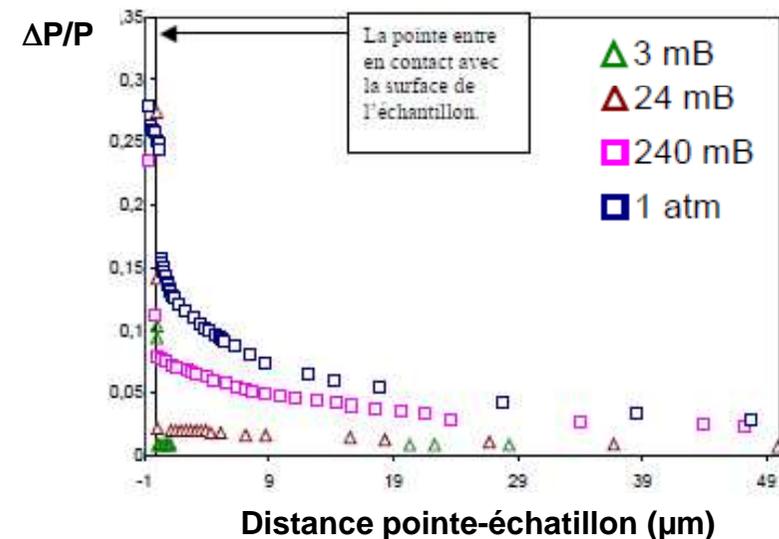
Les conditions environnementales, la contribution relative des différents mécanismes et la pointe elle-même définissent la résolution spatiale et la sensibilité de la technique

Etude de l'interaction pointe / échantillon

- Expériences pour différentes distances pointe/surface, différents gaz environnants, différents niveaux de pression et degrés d'humidité relative du gaz



- Meilleure compréhension du signal mesuré
- Détermination de la contribution relative des différents mécanismes de transfert thermique opérant
- Détermination des conditions favorisant la mesure de conductivité thermique



→ Modèles de l'interaction pointe / échantillon

Conductance thermique $G = G' + 2\pi a_c \lambda_{Pt} \cdot \lambda_s / (\lambda_{Pt} + \lambda_s)$ sur une aire effective de rayon b_{eq}

***Transposition possible des résultats d'une telle analyse à des situations dans lesquelles des objets de petites tailles et à faible distance sont en interaction**

Exemples de situations concrètes

1. Stockage de données

Envisagé pour remplacer la lecture/écriture laser sur DVD :

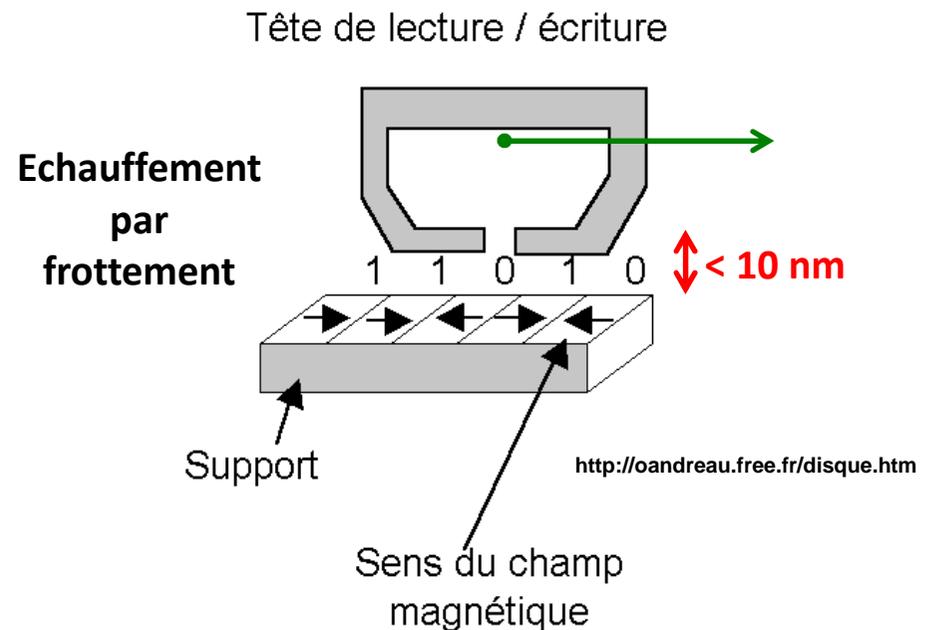
Bits d'information = trous creusés par
pointe chauffée

Stockage de données assisté thermiquement :
projet Millipede (IBM)



IBM Research Labs

Tête de lecture actuelle dans les disques
durs :



Exemples de situations concrètes

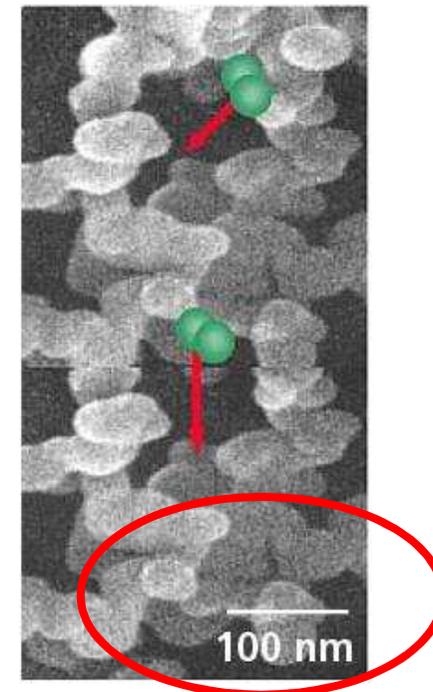
2. Mousses isolantes “nanoporeuses”



Laine de
verre

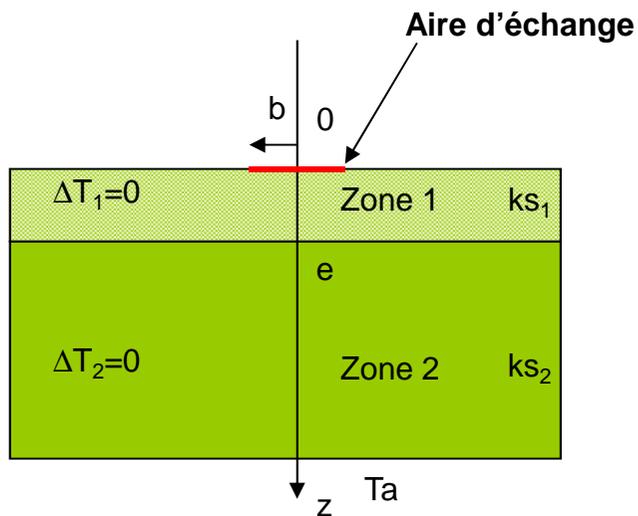
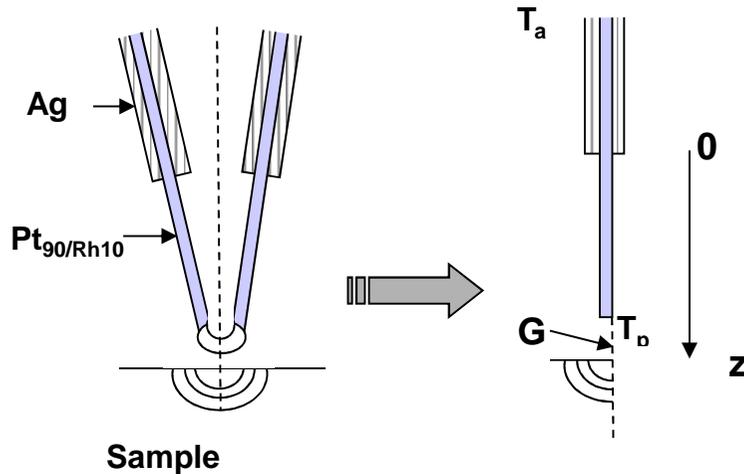
Super-isolant
nanoporeux

Fibres de silice



SEM image - Pore Size
Distribution.
(Source: EMPA, Switzerland)

Modèles prédictif de la mesure



Exemple en régime DC

- Sonde = deux ailettes thermiques
- Interaction modélisée par la conductance G sur une aire effective de rayon $b=b_{eq}$

$$G = G' + 2\pi a_c \lambda_{Pt} \cdot \lambda_s / (\lambda_{Pt} + \lambda_s)$$

- Echantillon monocouche supposé semi infini

$$\frac{\Delta P}{P} = \frac{3}{4} \frac{GF}{2GG_{Pt} + (2G_{Pt} + G)F}$$

où

$$F = \left(\frac{1}{\pi b^2} \int_0^\infty dq \frac{2(1+\Re)J_1^2(qb)}{\lambda_{s1} q^2 (1-\Re)} \right)^{-1}$$

$$\Re = f(k_{s1}, k_{s2}, e)$$

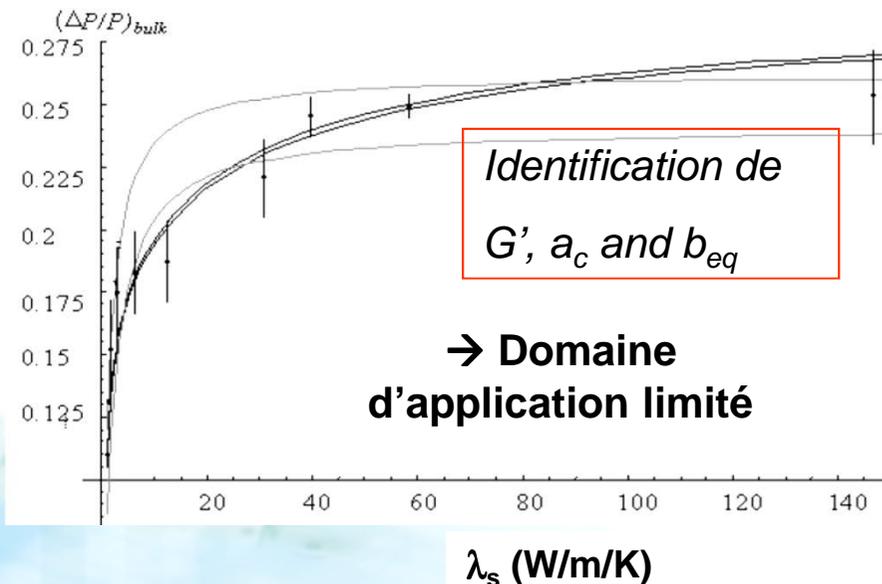
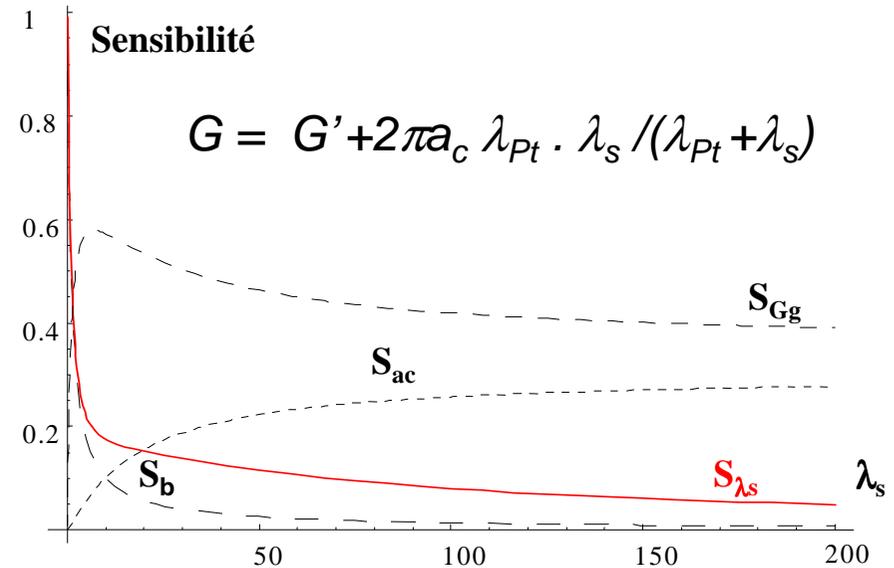
Etude de sensibilité pour des échantillons massifs

→ Forte sensibilité aux variations des paramètres du modèle décrivant l'interaction pointe/échantillon sur toute la gamme de conductivité thermique

→ Sensibilité à la conductivité thermique pour les matériaux faiblement conducteurs uniquement

→ Méthodologie d'étalonnage

Avec matériaux massifs de conductivité thermique connue, de propriétés mécaniques et d'état de surface les plus proches possibles de celles des matériaux à caractériser.



Applications

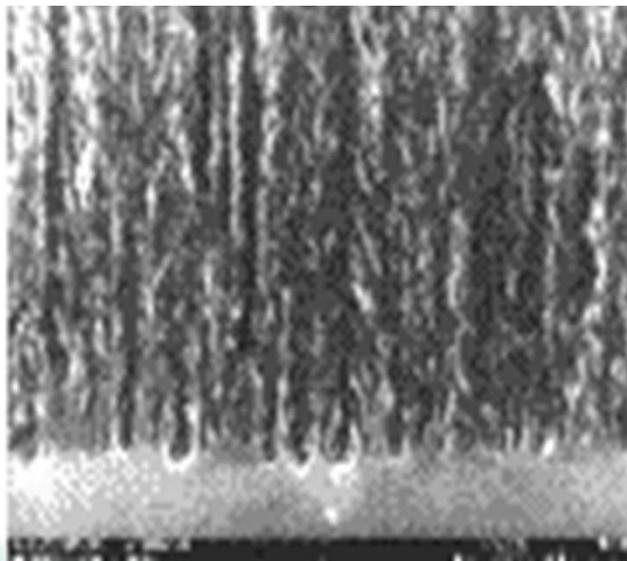
- Analyse de matériaux isolants sous forme de films minces et/ou d'étendue latérale limitée

***Développement et optimisation de procédés de fabrication de nouveaux matériaux pour l'isolation thermique (microélectronique, capteurs,...)**



Matériaux: silicium mésoporeux,
films minces de 100 nm à 10 μm

**Projet Bonus
Qualité
Recherche
INSA, INL-
CETHIL-MATEIS**

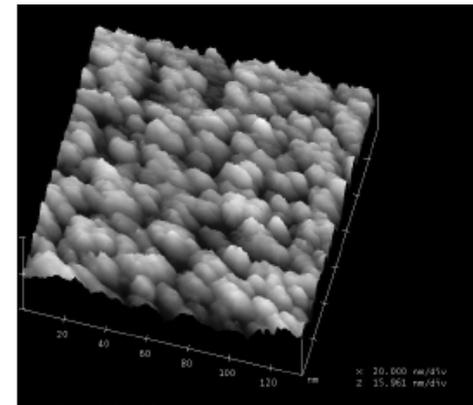


Fractographie (MEB)



10-20 nm

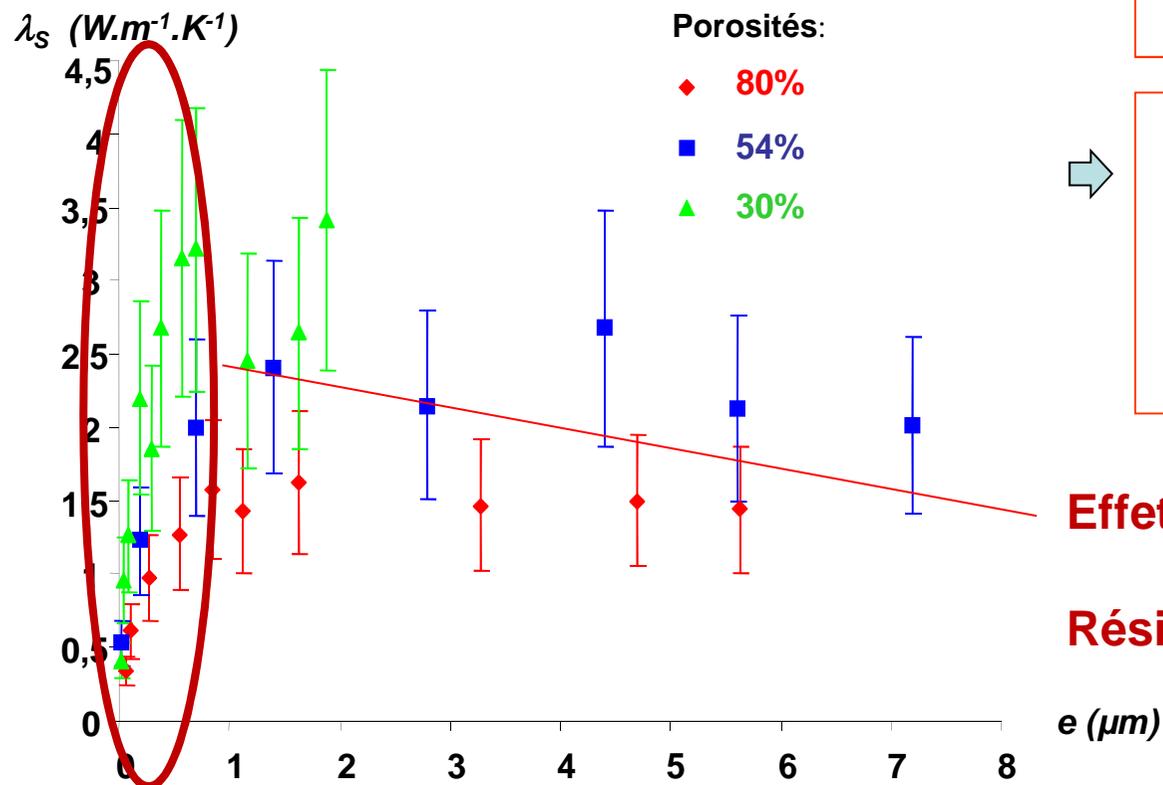
Rugosité < 5 nm



Topographie (AFM)

Etalonnage + Inversion du modèle prédictif (méthode de Gauss)

→ Conductivité thermique effective du Si mésoporeux en fonction de la porosité et de l'épaisseur de film e .



λ_S d'autant plus faible que la porosité est élevée



Estimation de la profondeur d'investigation de la technique $\mu \# 1 \mu\text{m}$, dépendant toutefois de la conductivité thermique de l'échantillon

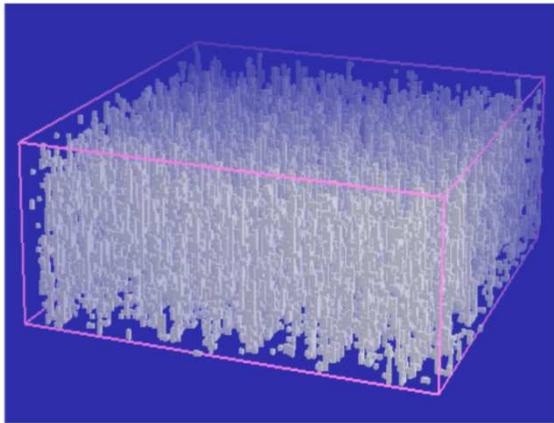
Effet de l'épaisseur du film?

Résistance d'interface?

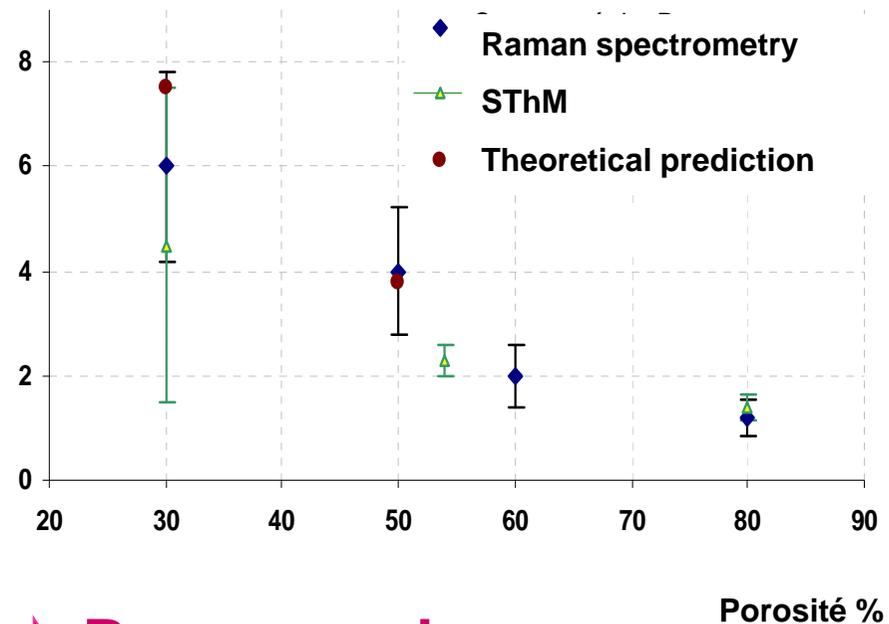
Comparaison des mesures SThM pour les épaisseurs $\mu\text{m}\text{étriques}$

- Spectrométrie Raman
- Modèle : résolution de l'équation de transport pour les phonons par la méthode MONTE CARLO

* Description fractale 3D

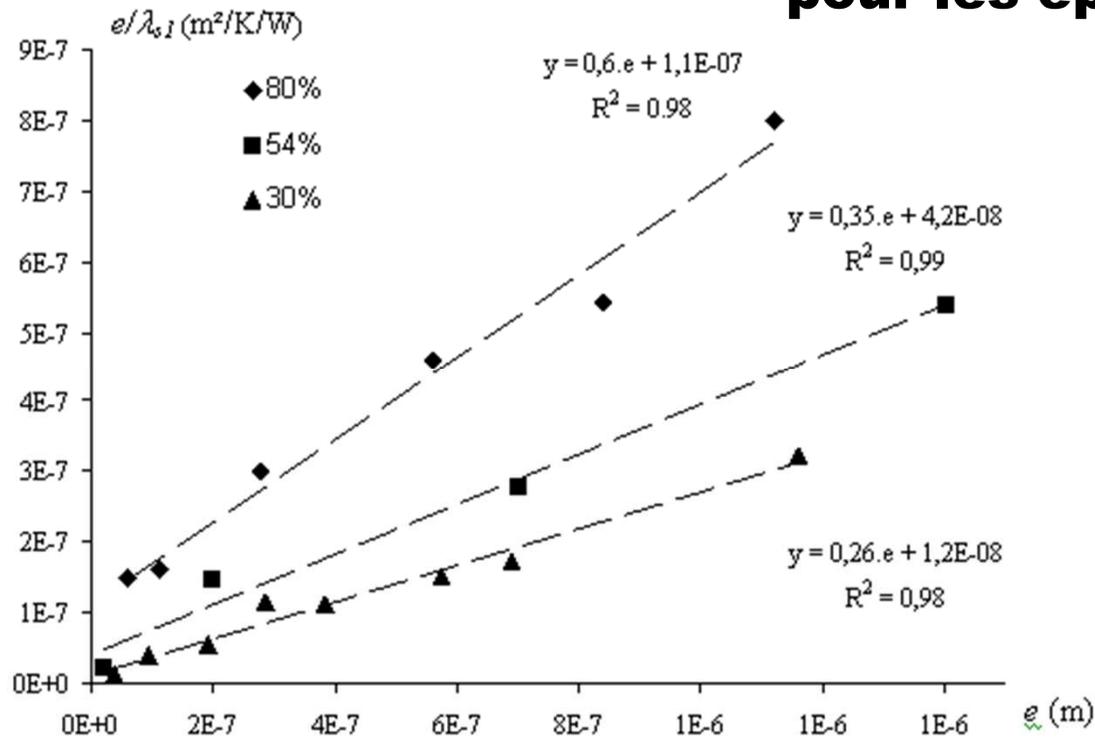


Conductivité thermique ($\text{W}\cdot\text{m}^{-1}\cdot\text{K}^{-1}$)



➔ **Bon accord**

pour les épaisseurs submicrométriques



$$\frac{e}{\lambda_{s1}} = \frac{e}{\lambda_{mPS}} + R_{int}$$

Résistance
d'interface

R_{int} d'autant plus élevée
que la porosité croît

Plus la porosité du
matériau est élevée, plus
l'effet des constriction
cumulées à l'interface
entre les cristallites et le
substrat de silicium est
important.

Porosity (%)	λ_{mPS} (W/m/K)	R_{int} (m ² /K/W)
30	3,8	$1,2 \cdot 10^{-8}$
54	2,8	$4,2 \cdot 10^{-7}$
80	1,7	$1 \cdot 10^{-7}$

Applications

- Conductivité thermique de films minces et d'étendue latérale limitée

*** Développement et optimisation de procédés de fabrication de nouveaux matériaux pour l'isolation thermique (microélectronique, capteurs,...)**

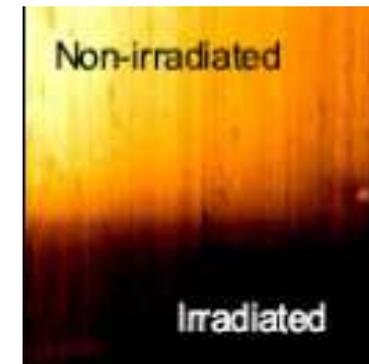
- Influence de traitement de surface sur la conductivité thermique de matériaux

*** Développement et optimisation de procédés de réalisation de circuits « thermiques » de dimensions micro et nanométrique (MEMS, NEMS,...)**

*** Choix de matériaux semi-métalliques (nucléaire)**

Impact de la dégradation microstructurale liée à une irradiation avec des ions énergétiques sur la conductivité thermique

Réduction de la conductivité thermique d'un facteur 2



Contraste obtenu par SThM à une interface entre une zone irradiée (fluence : $7 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$) et une zone non irradiée d'une couche de silicium poreux (porosité: 85%)

SThM = Méthode

- opérationnelle pour la caractérisation thermique localisée

❖ de films minces isolants,

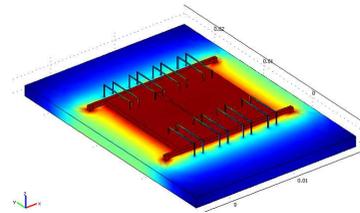
❖ de petits volumes de matière sans effet du substrat/support.

- complémentaire aux méthodes photothermiques
(champ lointain, champ proche)

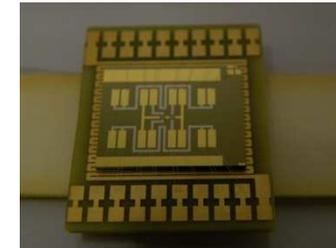
Une multitude de questions auxquelles il nous faut toutefois répondre pour optimiser cette technique

Utilisation et Développement de nouveaux outils:

- Echantillons d'étalonnage et de caractérisation de la mesure SThM

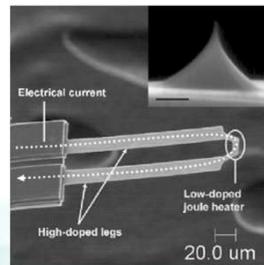
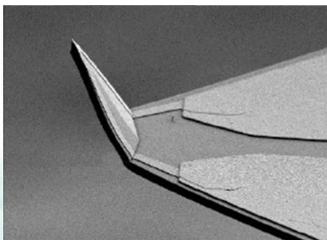


COMSOL simulations



Dispositif dont la température de surface peut être ajustée de manière contrôlée. Surface composée de différents matériaux

- Nanosondes/modes SThM

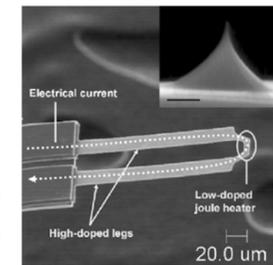
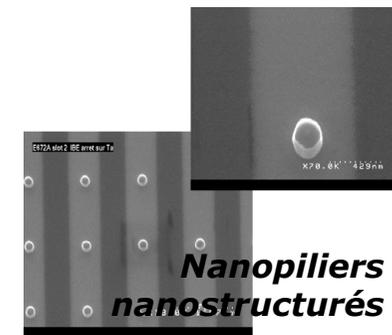
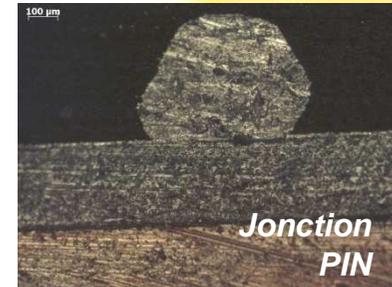


Nanosondes commerciales

- ❖ Elaboration d'une nouvelle méthodologie d'identification du coefficient Seebeck à l'échelle submicronique

Utilisations de la SThM dans des conditions non usuelles

- Analyse des phénomènes thermo-électriques dissipatifs au sein de composants d'électronique de puissance
- Caractérisation des phénomènes de transfert de chaleur au sein de structures envisagées pour préparer les générations futures de composants dans le domaine de l'électronique de spin.
- Analyse de polymères nanocomposites



*Nouvelle sonde
commerciale*

Merci de votre attention