

Contribution à l'étude du transport thermique du silicium poreux. Application aux microcapteurs thermiques

Amaria OULD-ABBAS*, Mama BOUCHAOUR, Malika MADANI,
Nasr-Eddine CHABANE SARI

Unité de Recherche Matériaux et Energies Renouvelables (URMER)

Université Abou Bekr BELKAID de Tlemcen, BP 119 Tlemcen 13000, ALGERIE

*(aouldabbes@yahoo.fr)

Résumé - La description des phénomènes de transport thermique d'un matériau poreux nanostructuré passe nécessairement par des considérations d'ordre morphologique. Le silicium poreux formé à partir de l'anodisation d'un substrat de Si, est constitué d'un réseau de nanocristallites organisé en une structure pseudo-colonnaire de multiples ramifications latérales, s'interprétant comme la phase solide interconnectée contribuant au transport thermique qui se caractérise par la conductivité thermique proche de celle de l'oxyde de silicium. C'est donc un excellent candidat pour assurer l'isolation thermique des microcapteurs sur silicium tout en garantissant la stabilité mécanique de la micro-structure.

Nomenclature

K	conductivité thermique, W/m.K	T	température, K
P	porosité, %	g	coefficient de percolation($g=(1-P)^2$), %
K _{cr}	conductivité thermique d'une cristallite, W/m.K	Λ_{Si}	libre parcours moyen de phonon, nm
Λ_{eff}	libre parcours moyen effectif, nm	r_{cr}	taille des cristallites, nm
V_{final}	volume de phase solide final, cm ³	$V_{initial}$	volume de phase solide initial, cm ³
τ	taux d'oxydation	ξ	fraction de silicium oxydée
P*	porosité du silicium poreux oxydé, %		
$k_{col, ox}$	la conductivité thermique des colonnes de silicium poreux oxydé		

1. Introduction

Une étude des mécanismes fondamentaux expliquant l'altération du transport thermique dans un milieu nano, meso et macroporeux constitue la base indispensable de toute phase d'optimisation technologique.

De plus, la géométrie complexe, la porosité, la taille des cristallites du silicium poreux et la composition chimique de la nanostructure sont autant de paramètres influant sur le transport thermique.

Une étude expérimentale de l'évolution de la conductivité avec la porosité est présentée et confrontée à une modélisation comportementale.

2. Procédures expérimentales

Réalisation du silicium poreux

Les structures poreuses sont obtenues par traitement anodique de substrat de Si de type p, d'orientation (100) et de résistivité 0.01-0.025 Ω .cm. cette attaque électrochimique est effectuée dans une solution de HF(48%) : C₂H₅OH de 1 : 1 sous des densités de courant

différentes. La densité de courant ainsi que le temps d'attaque choisis permettent de réaliser des couches de porosités et épaisseurs différentes. Le type de dopage influence la nature du SiP tel que pour le type p⁺, on obtient le silicium mésoporeux qui possède une taille de cristallites variant de 10 à 100 nm tandis que pour le type p des structures de silicium nanoporeux sont obtenus pour des tailles de cristallites de 1 à 5 nm. Après le traitement électrochimique, les échantillons sont rincés à l'eau désionisée et séchés sous flux d'azote.

3. Résultats et discussions

3.1 Etude théorique

3.1.1 Conductivité thermique du silicium poreux

La description des phénomènes de transport thermique d'un matériau poreux nanostructuré passe nécessairement par des considérations d'ordre morphologique. L'introduction d'un facteur de percolation proposé par Gesele et al. [1], permet de rendre compte de la micro-topologie structurale et s'interprète comme la fraction de phase solide interconnectée contribuant au transport thermique.

$$K_{SiP} = (1-P)^3 \cdot K_{Cr} \quad (1)$$

La conductivité K_{Cr} décrit la contribution élémentaire au transport thermique de chacune des cristallites quasi-sphériques formant le réseau pseudo colonnaire. En raison de leur dimension nanométrique ($r_{cr} = 8-12$ nm) inférieure à 7 fois le libre parcours moyen des phonons dans le silicium monocristallin à température ambiante ($\Lambda_{Si} = 43$ nm) [2], le transport de chaleur dans une cristallite n'est plus décrit par le modèle classique de Fourier. Dans ce cas, les phonons ne sont pas diffusés dans les cristallites et ni gradient, ni conductivité thermique ne peuvent y être définis. Seule, la diffusion des phonons aux interfaces permet de restaurer localement l'équilibre thermodynamique [3]. Le transport des phonons intervient suivant un phénomène balistique entre deux interfaces. Leur libre parcours moyen effectif Λ_{eff} est alors défini en fonction de leur longueur de diffusion dans le silicium monocristallin Λ_{Si} et de la taille des cristallites r_{cr} [4]. La conductivité thermique effective dans chaque cristallite s'écrit [5]

$$k_{Cr}^* = \frac{1}{3} \rho c_p v_p \Lambda_{eff} = \frac{k_{Si}}{1 + \frac{4}{3} \cdot \frac{\Lambda_{Si}}{r_{cr}}} \quad (2)$$

Compte tenu des équations 1 et 2, la conductivité thermique effective de la couche de silicium poreux s'exprime donc alors:

$$k_{SiP}^* = (1-P)^3 \frac{k_{Si}}{1 + \frac{4}{3} \cdot \frac{\Lambda_{Si}}{r_{cr}}} \quad (3)$$

La variation de K_{SiP} en fonction de la porosité pour des tailles croissantes, est représentée. Le silicium nanoporeux ($r_{cr} < 4$ nm) par des effets de confinement extrême présente le cas le plus favorable pour des fortes porosités. Cependant, la baisse de conductivité thermique avec la nanostructuration s'accompagne d'une fragilité accrue de la structure interdisant la réalisation de caisson épais. Le silicium méso-poreux ($100 \text{ nm} > r_{cr} > 4$ nm) offre un

compromis intéressant par des propriétés mécaniques permettant la réalisation de structures épaisses supportant l'enchaînement des étapes technologiques.

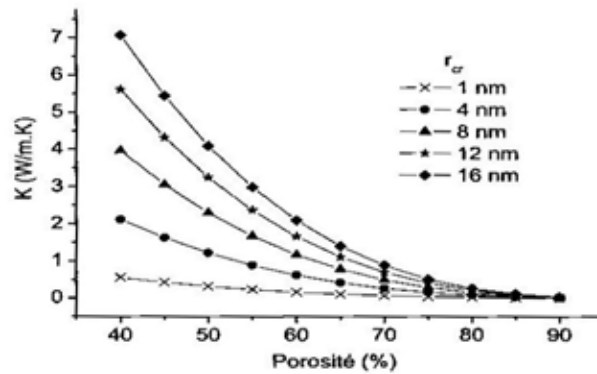


figure 1 : variation de la conductivité thermique en fonction de la porosité et des dimensions des cristallites de silicium, à partir de l'équation 3 [6].

3.1.2 Conductivité thermique du silicium poreux oxydé

L'importante surface spécifique du silicium poreux lui confère une forte réactivité chimique. L'introduction d'une nouvelle phase au sein de sa nanostructure par un traitement physico chimique constitue un levier supplémentaire achevant le contrôle et la stabilisation de ses propriétés physiques et notamment thermique. Dans ce paragraphe, l'effet de l'oxydation sur les propriétés de transport thermique dans les couches de silicium méso-poreux est modélisé.

Dans une première approche, la conductivité thermique du silicium poreux oxydé va diminuer car l'oxydation consomme du silicium. Cependant, la porosité globale de la couche va également diminuer car l'oxydation s'accompagne d'une augmentation de volume de phase solide ($V_{\text{final}} = 127\% V_{\text{initial}}$). Ainsi, la conductivité thermique du silicium poreux oxydé est paramétrée par sa porosité et son taux d'oxydation, noté τ .

La fraction de silicium oxydée, ξ , se définit comme le rapport entre le volume de silicium consommé sur le volume de silicium initial. Le taux d'oxydation, τ , rapport entre le volume d'oxyde de silicium et le volume de la phase solide après oxydation, s'écrit :

On peut alors calculer la porosité P^* de la couche et son taux d'oxydation τ :

$$P^* = 1 - (1 - P) \frac{2.27}{2.27 - 1.27\tau} \quad \text{avec} \quad \tau = \frac{2.27\varepsilon}{1 + 1.27\varepsilon} \quad (4)$$

2.27 étant le taux d'expansion volumique du silicium après oxydation.

Si l'on se restreint au cas où l'oxydation ne produit pas d'augmentation de volume telle que le volume de silicium poreux oxydé ne soit pas supérieur au volume de silicium massif initial, l'équation 4 induit un « domaine de validité » lié à la porosité initiale et au taux d'oxydation. En effet, la porosité étant toujours comprise entre 0 et 100% et τ entre 0 et 1, l'équation 5 doit être vérifiée :

$$\tau < \frac{2.27}{1.27} P \quad (5)$$

Ainsi, d'une part, des couches dont la porosité est faible ne pourront pas être oxydées complètement et d'autre part, les couches à forte porosité initiale pourront être oxydées « complètement » tout en conservant une porosité P^* .

Dans le cas de couches à faibles porosité, $P < 40\%$, la conductivité thermique des colonnes $k_{col, ox}$ est celle d'une colonne de silicium enrobée d'une couche d'oxyde de silicium.

$$k_{col}^{ox} = \frac{2.27}{\frac{2.27 - 2.27\tau}{k_{Si}} + \frac{2.27\tau}{k_{SiO_2}}} \quad (6)$$

L'expression de la conductivité thermique effective du silicium poreux oxydé est alors :

$$k_{sip}^{ox} = (1 - P) \frac{2.27}{2.27 - 1.27\tau} \frac{2.27}{\frac{2.27 - 2.27\tau}{k_{Si}} + \frac{2.27\tau}{k_{SiO_2}}} \quad (7)$$

Dans le cas de porosité plus élevée, $P > 50\%$, l'effet de confinement thermique dans les cristallites est accentué. La conductivité thermique d'une cristallite oxydée en fonction du taux d'oxydation s'écrit :

$$k_{Cr}^{Ox} = \frac{k_{Si}}{1 + \frac{4}{3} \frac{\Lambda_{Si}}{r_{cr}^3 \sqrt{\frac{2.27 - 2.27\tau}{2.27 - 1.27\tau}}}} \quad (8)$$

Enfin, la conductivité thermique complète s'écrit :

$$k_{Sip}^{Ox} = (1 - p)^3 \frac{2.27^4}{\frac{2.27 - 2.27\tau}{k_{Si}} \left(1 + \frac{4}{3} \frac{\Lambda_{Si}}{r_{Cr}^3 \sqrt{\frac{2.27 - 2.27\tau}{2.27 - 1.27\tau}}}\right) + \frac{2.27\tau}{k_{SiO_2}}} \quad (9)$$

La conductivité thermique est représentée en fonction du taux d'oxydation pour quatre tailles de cristallites sur la figure 2, la porosité de la couche est choisie à 60%. Pour un taux d'oxydation de 1, la conductivité des pores du matériau reste inférieure à celle de l'oxyde de silicium (1.4 W/ m.K), la totalité des pores n'étant pas bouchée.

D'après la figure 2, pour une porosité donnée, la conductivité thermique initiale dépend de la taille des cristallites donc du confinement du transport thermique plus ou moins prononcé donc du squelette de silicium.

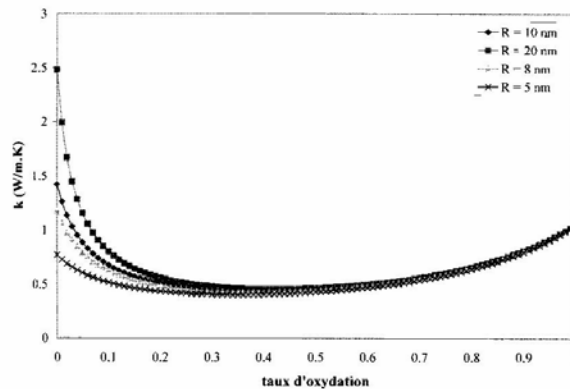


Figure 2: évolution de la conductivité thermique d'une couche de silicium poreux, de porosité 60%, en fonction du taux d'oxydation pour différentes tailles de cristallites[7].

3. 2. Etude expérimentale

Par la méthode de caractérisation micro Raman, présentée dans une précédente étude [7]. Nous avons obtenu les résultats suivants

3.2.1 Influence de la porosité

Pour une même porosité, la conductivité thermique de l'échantillon de référence est analysée et comparée avec son homologue partiellement oxydé (figure 3)

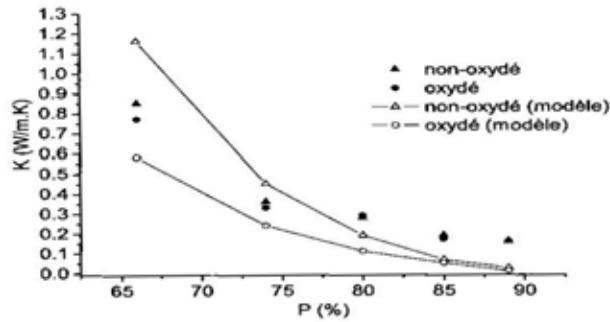


Figure 3: Mesures expérimentales et modélisation de la conductivité thermique en fonction de la porosité pour des échantillons partiellement oxydés ou non [8].

La porosité, puisque directement liée à la nanostructure du matériau, est le principal paramètre agissant sur la conductivité thermique. D'après la figure 3, on constate que la conductivité thermique décroît lorsque la porosité augmente. Ceci s'explique par l'effet de réduction de la taille effective des nano-cristaux de silicium ainsi que les surfaces d'interconnexion entre les cristallites lorsque la porosité augmente, ce qui réduit davantage le chemin thermique par conduction dans le squelette de silicium. Ce modèle corrobore le modèle analytique présenté au paragraphe 3.1.2, la porosité intervient en $(1-P)^3$ dans l'expression de la conductivité thermique : k diminue fortement jusqu'à ce qu'elle s'annule à $P=100\%$. D'autre part, l'étude de l'influence de l'oxydation sur la conductivité thermique est présentée, la variation de la conductivité thermique avec la porosité est conservée. Ces résultats expérimentaux sont en accord avec le modèle analytique présenté au paragraphe précédent. Seulement, pour les couches de forte porosité, l'influence de l'oxydation est moins significative. Le modèle théorique prédit également un minimum en conductivité thermique mais qui est moins spectaculaire puisque même non oxydées, la conductivité thermique de telles couches est déjà très faible. De plus, la détection expérimentale de ce minimum nécessite une résolution de mesure bien meilleure que celle de notre technique.

4. Application aux microsystemes thermiques

Dans le cas des mesures thermiques, il est nécessaire de minimiser la conductance thermique entre les zones de mesure et de référence du micro-dispositif afin de pouvoir détecter la plus petite élévation de température. Les capteurs de températures semiconducteurs présentent une sensibilité supérieure à celle des capteurs métalliques.

Cependant, la mesure d'un gradient de température sur le silicium est difficile en raison de sa forte conductivité thermique. En général, la solution utilisée est l'amincissement du substrat de silicium, pour ne laisser qu'une membrane ou poutre suspendue. Cette méthode, bien qu'efficace pour l'isolation thermique, requiert une technologie relativement complexe ainsi qu'un bon contrôle des contraintes mécaniques du dispositif. L'utilisation de couches de

silicium méso-poreux oxydé, dont la conductivité est plus faible que celle du silicium massif, apparaît comme une alternative intéressante.

5. Conclusion

La valeur de la conductivité thermique effective du silicium poreux peut donc être prédite en fonction de sa porosité et de la taille moyenne de ses cristallites.

Le libre parcours moyen effectif des phonons est limité par leur diffusion aux interconnexions entre cristallites ; la diminution de la conductivité thermique effective s'accroît avec la réduction de la taille des cristallites. Pour des taux d'oxydation faibles, la conductivité thermique décroît avec τ . Une partie du silicium monocristallin est remplacé par de l'oxyde de silicium plus isolant thermiquement. L'effet de confinement thermique est alors accentué. Pour des taux d'oxydation supérieurs à 50%, la conductivité thermique augmente et tend vers celle de l'oxyde de silicium massif. La conductivité thermique est alors contrôlée par l'augmentation de volume de la phase solide de la couche poreuse.

L'action simultanée des deux paramètres qui sont :

La diminution de la taille des nanocristallites qui amplifie le confinement des phonons

L'augmentation contrôlée de porosité qui altère la conductivité thermique abaisse la conductivité thermique, les résultats expérimentaux sont en accord avec le modèle analytique présenté dans cette étude à l'exception des fortes porosités, nous remarquons une divergence par rapport au modèle théorique, cette divergence est reprochée à notre technique qui nécessite une résolution meilleure. Ceci s'explique par l'effet de réduction de la taille effective des nano-cristaux de silicium ainsi que les surfaces d'interconnexion entre les cristallites lorsque la porosité augmente, ce qui réduit davantage le chemin thermique par conduction dans le squelette de silicium.

Références

- [1] Gesele G., Linsemeier J., Drach V., Fricke J., Arens-Fischer R., Temperature-dependent thermal conductivity of porous silicon, *Journal of Physics D*, 1997, vol. 30, p. 2911-2917.
- [2] Flik M. I., Choi B. I., Goodson K. E., Heat transfer regimes in microstructures, *ASME Journal of Heat Transfer*, 1992, vol. 114, p. 666-674.
- [3] Joshi A. A., Majumdar A., Transient ballistic and diffusive phonon heat transport in thin films, *J. Appl. Phys.*, 1993, vol. 74, n°1, p. 31-39
- [4] Chen G., Non local and non equilibrium heat conduction in the vicinity of nanoparticles, *J. Heat Transfer*, 1996, vol. 118, n°3, p. 539-545.
- [5] Lysenko V., Boarino L., Bertola M., Remaki B., Dittmar A., Amato G., Barbier D., Theoretical and experimental study of heat conduction in as-prepared and oxidized meso-porous silicon; *Microelectronics J.*, 1999, vol. 30, p. 1141-1147.
- [6] Stéphanie Périchon, Technologie et propriétés de transport dans les couches épaisses de silicium poreux : applications aux microsystèmes thermiques, *thèse de doctorat insa de lyon*, 2001
- [7] Amaria OULD-ABBAS*, Mama BOUCHAOUR, Malika MADANI Nasr-Eddine CHABANE SARI Analyse thermique et morphologique du silicium poreux oxydé ou non par spectroscopie Raman. Applications aux microsystèmes thermiques. *Proceeding de Congrès Français de Thermique*, SFT 2006, Île de Ré, 16-19 mai 2006
- [8] Charles Populaire, Propriétés physiques du silicium poreux : traitements et applications aux microsystèmes, *thèse de doctorat insa de lyon*, 18 mars 2005.