

Caractérisation du contact sonde-échantillon en microscopie thermique à sonde locale (SThM) : prise en compte de la rugosité de surface dans la conductance de contact

Olivier RAPHAËL, Nathalie TRANNOY*, Philippe GROSSEL

Université de Reims Champagne Ardenne
GRESPI/LEO

Moulin de la Housse, BP 1039, 51687 REIMS cedex 2

*(auteur correspondant : nathalie.trannoy@univ-reims.fr)

Résumé – Cette étude porte sur la sonde thermique thermorésistive en contact et en mode alternatif. Pour aborder la résistance thermique de contact en tenant compte de la rugosité de surface, nous avons utilisé un modèle basé sur une double constriction des lignes de flux. Une modélisation par Eléments Finis, respectant la configuration géométrique du problème, couplée aux résultats expérimentaux nous a permis d'évaluer cette résistance thermique ainsi que la surface effective de contact solide-solide sonde-échantillon. Une étude de sensibilité précise celle de notre dispositif à la surface de contact.

1. Introduction

La mesure des propriétés thermo-physiques des matériaux par microscopie thermique à sonde locale nécessite la connaissance des conditions d'échanges thermiques entre la sonde et l'échantillon. Une des problématiques actuelles est l'évaluation de paramètres tels que la résistance thermique de contact sonde-échantillon. La sonde thermique utilisée est la sonde thermorésistive en Wollaston dont l'élément thermosensible est en platine rhodié. Notre étude est réalisée en mode alternatif avec notre propre système [1]. Ce système a été conçu afin de pouvoir réaliser une modélisation la plus fine possible de la réponse de la sonde. Une première étude nous a permis de caractériser et d'évaluer les paramètres importants intervenant dans la réponse de la sonde lorsque celle-ci est loin de tout échantillon (hors contact) [2] : la conductivité thermique et la résistivité électrique du filament thermo-résistif ainsi que le coefficient d'échange autour de ce filament ont ainsi été précisés.

La présente étude propose d'aborder la résistance thermique de contact en tenant compte des rugosités de surface de l'échantillon et de la sonde. En effet, une partie du flux dissipé par la sonde est transférée par conduction vers l'échantillon et dépend de l'état de surface des matériaux mis en contact. Les rugosités de l'échantillon et de la sonde ont pour effet de réduire la surface réelle de l'échange thermique et de multiplier les phénomènes de constriction des lignes de flux [3]. Ces phénomènes se caractérisent par une résistance au flux échangé. Nous proposons ici d'évaluer la résistance thermique de contact à l'aide d'un modèle dans le cas d'un contact à multi-constriction [4] et en caractérisant géométriquement la surface d'échange.

2. Dispositif expérimental

Le microscope à sonde locale (SThM) est utilisé en mode alternatif à l'aide d'un dispositif nous permettant d'obtenir une source de courant AC bien maîtrisée et indépendante des variations de la résistance électrique de la sonde thermique. La sonde utilisée est une sonde

thermorésistive réalisée à partir d'un fil de Wollaston de 75 μm de diamètre, comportant une âme de Pt-Rh de 5 μm de diamètre, dénudée sur une longueur approximative de 200 μm et pliée en forme de V de façon à créer une pointe servant au contact. Le rayon de courbure de cette sonde est alors de l'ordre de 20 μm . En microscopie thermique à sonde locale, cette sonde est mise en contact avec un échantillon alors que la tension électrique, mesurée à ses bornes, permet ainsi d'en déduire sa température [5].

3. Modélisation

Le problème a été modélisé par Eléments finis en trois dimensions. Le plan contenant le filament de platine/rhodium est incliné de 60° par rapport à l'échantillon. Du fait de la symétrie de la génération de chaleur au sein du filament, le système sonde-échantillon est délimité par un plan de symétrie passant par l'extrémité du filament, l'étude se fait alors sur une demi-sonde. Dans le cas du mode alternatif, l'étude de la réponse se fait à la troisième harmonique. Une puissance thermique modulée à la pulsation 2ω est appliquée en chaque nœud de la géométrie du filament. La particularité de notre approche réside dans la gestion des transferts de chaleur entre la sonde et l'échantillon. Dans une approche par éléments finis, la résistance thermique de contact (RTC) peut être introduite de deux façons : soit, d'une manière analytique, par l'intermédiaire d'un coefficient d'échange approprié, soit par un ensemble complexe de géométries représentant les aspérités et les fluides interstitiels. Cette seconde approche implique, entre autres, des variations dimensionnelles couvrant plusieurs ordres de grandeurs afin de permettre la représentation simultanée de la rugosité, de la sonde et de l'échantillon. De plus elle nécessite un nombre important de mailles pour une décomposition précise de la surface de contact. Ainsi ce type de géométrie atteint aisément plusieurs dizaines de milliers de mailles. Compte tenu de l'analyse temporelle nécessaire à l'obtention d'une réponse à 3ω , cette approche ne s'avère pas raisonnable.

Pour notre approche par éléments finis, nous avons donc retenu l'intégration de la conductance de contact à l'aide d'un coefficient d'échange. De façon identique à la prise en compte des phénomènes convectifs [6], ce coefficient caractérise le flux de chaleur échangé entre la sonde et l'échantillon. La surface d'échange est déterminée géométriquement par la pénétration de l'extrémité du filament dans l'échantillon. Pour une intégration correcte de la condition au contact, les champs de température dans la sonde et l'échantillon sont résolus distinctement l'un de l'autre. La conductance de contact apparaît alors comme une source de chaleur répartie uniformément sur la surface d'échange pour l'échantillon. Le flux de chaleur échangé est ainsi proportionnel à la différence de température entre les surfaces de contact associées à la sonde et à l'échantillon.

4. Etude de sensibilité

Afin d'apprécier au mieux l'importance des paramètres caractérisant le contact dans l'élaboration de la réponse à 3ω , une étude de sensibilité est réalisée. La figure 1 présente l'évolution fréquentielle de la sensibilité aux trois paramètres définissant le contact dans notre modèle : la conductance thermique et les longueurs du demi-petit-axe et du demi-grand-axe de la forme elliptique caractérisant la surface d'échange (respectivement Rayc1 et Rayc2). La surface de contact est définie par une ellipse de demi-axes 65 nm et 120 nm. L'analyse de ces résultats démontre une évolution similaire de la sensibilité pour chacun des trois paramètres donc une corrélation entre eux comme on pouvait le prévoir. Mais l'amplitude de la réponse au troisième harmonique apparaît plus sensible aux basses fréquences tandis que le déphasage présente une sensibilité maximale à 400 Hz. Remarquons que les sensibilités aux dimensions de la surface de contact (courbes « Rayc1 » et « Rayc2 ») sont légèrement différentes l'une de l'autre. Ainsi la sensibilité augmente avec la réduction de la surface d'échange. Cet écart

suppose la non-linéarité de la réponse à 3ω selon la variation des dimensions de la surface d'échange.

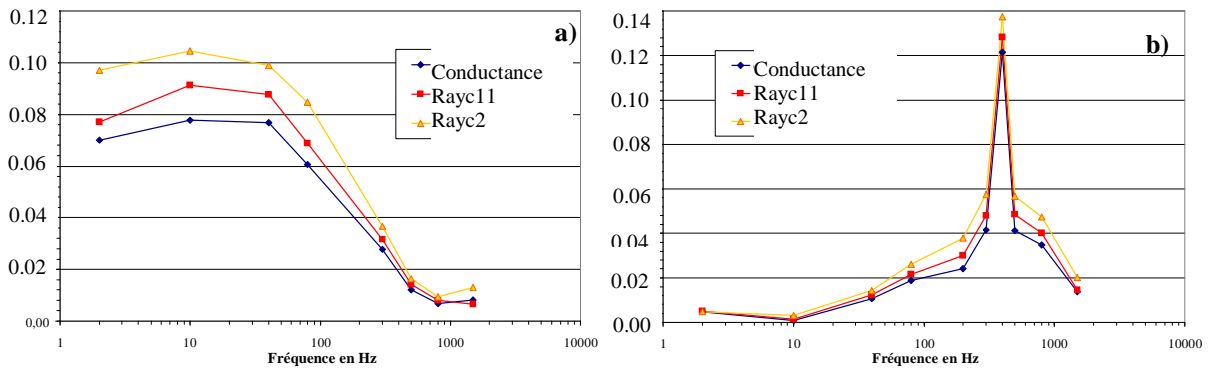


Figure 1 : Evolution fréquentielle de la sensibilité en amplitude (a) et en phase (b) de la réponse à 3ω pour une variation de 10% de la surface et de la conductance de contact

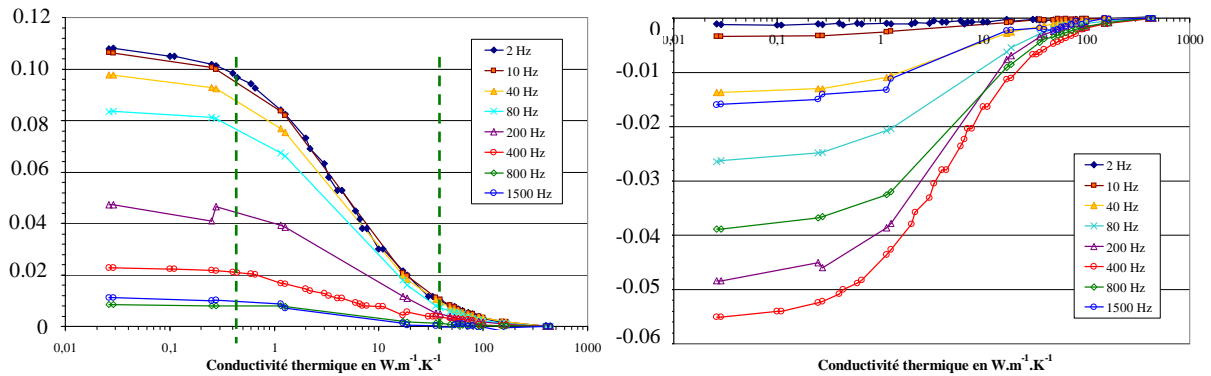


Figure 2 : Réponses normalisées à 3ω , en amplitude (à gauche) et en phase (à droite), en fonction de la conductivité thermique de l'échantillon pour huit fréquences de modulation (2, 10, 40, 80, 200, 400, 800 et 1500 Hz).

La figure 2 présente les évolutions de l'amplitude et de la phase en fonction de la conductivité thermique de l'échantillon. Une conductance de contact d'environ $1,9 \cdot 10^{-6} \text{ W.K}^{-1}$ est appliquée [7]. Cette dernière est supposée indépendante de la conductivité thermique de l'échantillon. Pour permettre la comparaison entre les réponses relatives aux huit fréquences de modulation, les valeurs sont normalisées par rapport à celles obtenues avec l'échantillon de cuivre. L'analyse de la pente de ces courbes révèle que les sensibilités en amplitude et en phase atteignent un maximum sur une plage de valeurs s'étendant de 1 à $20 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$. Pour les valeurs supérieures, la sensibilité décroît. Des observations expérimentales confirment ces résultats, validant ainsi notre approche théorique [8]. L'on obtient ainsi une précision sur la diminution de la sensibilité pour les conductivités thermiques inférieures à $1 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ avec identification de la valeur limite inférieure ($\lambda_1 \approx 0,4 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$). Nous pouvons remarquer que la valeur de la limite supérieure ($\lambda_2 \approx 40 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$) est proche de la conductivité thermique du filament Pt_{90%}-Rh_{10%}. On constate également que la fréquence de modulation du courant d'alimentation n'a pas d'influence sur la plage de sensibilité de la sonde thermorésistive. Ainsi, quelle que soit la fréquence, la sonde est plus performante avec des échantillons dont la conductivité thermique est comprise entre 0,4 et $40 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$.

5. Caractérisation du contact

L'évaluation précise du flux de chaleur transféré de la sonde à l'échantillon est indispensable à la réalisation de mesures quantitatives des propriétés thermiques des matériaux. Une part du flux dissipé par la sonde est transférée par conduction vers l'échantillon et dépend de l'état de surface des matériaux mise en contact. Les rugosités de l'échantillon et de la sonde ont pour effet de réduire la surface réelle de l'échange thermique et de multiplier les phénomènes de constriction des lignes de flux. Ces phénomènes s'opposent alors au transfert de chaleur et se caractérisent par l'augmentation d'une résistance thermique de contact.

Le modèle proposé par *Degiovanni et al.* est retenu pour sa capacité à prendre en compte différentes échelles de constriction en présence ou non d'un fluide interstitiel [4]. Seules les approches à simple et double constriction sont considérées ici. Les expressions correspondantes sont présentées par les équations (1) et (2). Elles font appel aux trois résistances caractéristiques du fluide interstitiel r_{fl} , de l'aspérité r_a et de la constriction associée r_{ct} . Ces résistances se définissent de la façon suivante dans lesquelles l'indice m caractérise le macro-contact, et n le nombre de micro-contacts par macro-cellule :

$$\text{Simple constriction } \frac{1}{r_c} = \frac{1}{r_{fl}} + \frac{1}{r_{ct} + r_a} = C \quad (1)$$

$$\text{Double constriction } \frac{1}{r_c} = \frac{1}{r_{fl_m}} + \frac{1}{r_{ct_m} + r_{a_m} + \frac{1}{C.n}} \quad (2)$$

$$\text{où } r_{fl} = \frac{1}{\pi(a^2 - b^2)} \cdot \frac{\delta_1 + \delta_2}{\lambda_f} \quad r_a = \frac{1}{\pi b^2} \cdot \left(\frac{\delta_1}{\lambda_1} + \frac{\delta_2}{\lambda_2} \right) \quad (3)$$

$$r_{ct} = \frac{1}{\pi b^2} \cdot \sum_{i=1}^{\infty} \frac{4J_1^2(\alpha_i b)}{\alpha_i^3 a^2 J_0^2(\alpha_i a)} \cdot \left(\frac{1}{\lambda_1} + \frac{1}{\lambda_2} \right) \quad (4)$$

dans lesquelles les indices 1, 2 et f représentent respectivement le filament de platine-rhodium, l'échantillon et le fluide. δ représente la hauteur des aspérités, λ la conductivité thermique, a le rayon de la cellule élémentaire et b le rayon de l'aspérité.

La figure 3, obtenue par AFM, présente un exemple de rugosité de surface pour un échantillon de cuivre. On constate que, en dehors de certains points, la hauteur moyenne des aspérités est inférieure à 13 nm. A l'aide d'un ensemble d'images dont la plus petite fait $1\mu\text{m}^2$, deux niveaux d'aspérités ont pu être identifiés. La première que nous appellerons « micro-rugosité » définit des aspérités dont la largeur et la périodicité sont estimées respectivement à environ (130 ± 20) nm et (201 ± 54) nm. La rugosité Ra_{micro} de ces aspérités est estimée à 2 nm. Une analyse fine de la topographie de l'échantillon permet également l'étude des nano-contacts. Une « nano-rugosité » Ra_{nano} , définissant l'état de surface des micro-aspérités précédentes, est estimée à 0,3 nm. La périodicité de ces « nano-aspérités » est, quant à elle, estimée à (8 ± 2) nm.

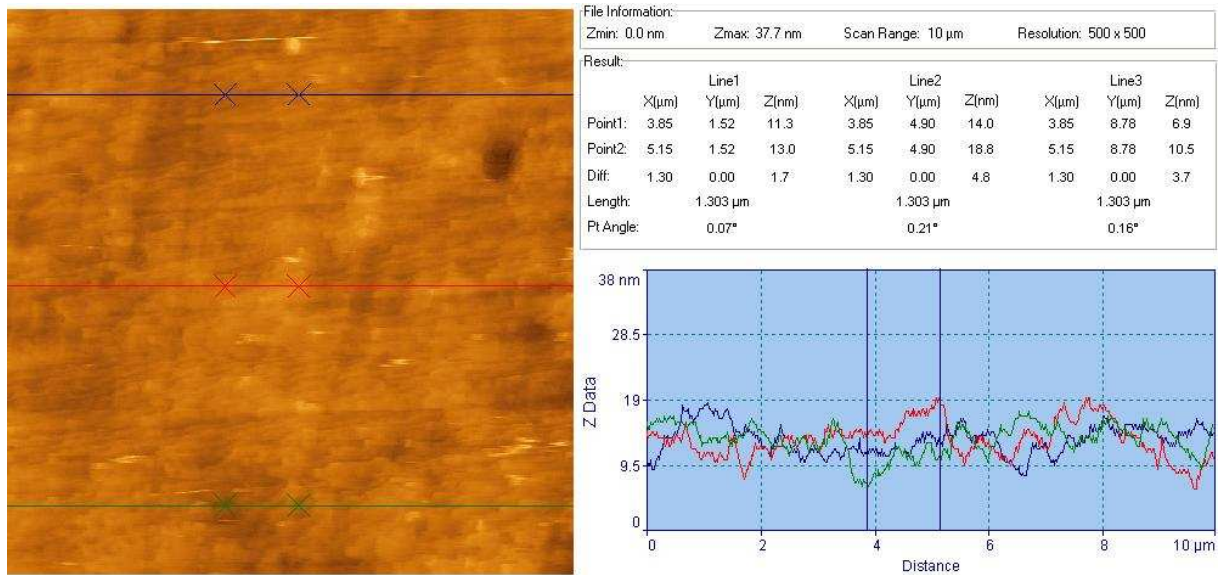


Figure 3 : Image topographique ($100 \mu\text{m}^2$) de la surface d'un échantillon de cuivre obtenue avec une sonde AFM.

La caractérisation géométrique de la surface d'échange permet l'étude analytique de la conductance de contact. Deux niveaux de constrictions des lignes de flux de chaleur sont pris en compte. Les grandeurs obtenues précédemment renseignent sur les dimensions de la surface d'échange et sur celles des nano-contacts.

Modèle de constriction	Simple constriction	Double constriction
Hauteur des aspérités du filament (nm)	90	0.2
Hauteur des aspérités de l'échantillon de cuivre (nm)	4	0.2
Pour l'échantillon du cuivre		
Rayon de la cellule élémentaire (nm)	106	4
Rayon de l'aspérité (nm)	69	1
Résistances thermiques ($\text{K}\cdot\text{W}^{-1}$) :		
Résistance thermique de l'aspérité	$1,23\cdot 10^{+5}$	$1,49\cdot 10^{+6}$
Résistance thermique de constriction	$1,97\cdot 10^{+5}$	$4,27\cdot 10^{+6}$
Nombre d'aspérités	1	30
Conductance thermique de contact totale ($\text{W}\cdot\text{K}^{-1}$)	$7,00\cdot 10^{-6}$	$2,99\cdot 10^{-6}$

Tableau 1 : Dimensions des aspérités des matériaux mis en contact et estimation analytique de la conductance de contact solide-solide pour une force d'application de la sonde égale à $6,2 \mu\text{N}$.

Le tableau 1 rassemble les dimensions retenues. Le diamètre de la cellule élémentaire est choisi égal à la largeur moyenne des stries observables à la surface du filament, soit 212 nm. Le rayon de l'aspérité est déterminé à partir du modèle de Hertz pour une force d'application de $6,2 \mu\text{N}$ [1]. L'approche analytique s'appuyant sur une symétrie cylindrique, ce rayon est calculé de façon à fournir une surface équivalente à la forme elliptique du contact. Les hauteurs des aspérités sont fixées à 90 nm et 4 nm respectivement pour le filament et l'échantillon de cuivre. Concernant le second niveau de contact, les hauteurs sont choisies identiques et égales à 0,2 nm. Le diamètre de la nano-cellule élémentaire correspond à la périodicité mesurée sur l'image topographique. Tandis que le diamètre de la nano-aspérité équivaut à un quart de la périodicité.

La conductance thermique de contact ainsi obtenue est alors de l'ordre de grandeur des valeurs couramment admises dans la littérature [7]. Dans le cas d'une seule constriction (c'est-à-dire une seule cellule), la conductance calculée s'élève à $7 \mu\text{W.K}^{-1}$. L'ajout d'un second niveau de constriction a pour effet d'abaisser la conductance. Le nombre de nano-cellules élémentaires permet de déterminer le nombre d'aspérités réalisant la surface de contact réel. Il peut varier de l'unité à la valeur du rapport des surfaces d'une nano-cellule et d'une micro-aspérité (b_m^2/a^2), soit dans le cas présent une valeur maximale de 300. Ainsi la conductance résultante de la double constriction peut varier de $0,17 \mu\text{W.K}^{-1}$ à $6,2 \mu\text{W.K}^{-1}$. Pour reproduire la valeur de la conductance obtenue par l'approche numérique, le nombre d'aspérité est ainsi fixé à 30. Ce qui correspond à une surface réelle de contact d'environ 94 nm^2 , équivalent à un disque de 11 nm de diamètre.

6. Conclusion

Au delà des forts contrastes qui apparaissent en imagerie pure lors d'un balayage sur une surface, la caractérisation quantitative des conductivités des échantillons repose sur la connaissance outre de la sonde elle-même de la résistance thermique de contact entre la sonde et l'échantillon. L'étude de la sensibilité de la réponse à 3ω confirme l'augmentation de la sensibilité de la sonde avec la diminution de la conductivité thermique de l'échantillon et met en évidence un intervalle de sensibilité maximale de $0,4$ à $40 \text{ W.m}^{-1}.\text{K}^{-1}$ avec une limite inférieure identifiée. Une approche analytique de la résistance thermique de contact, reposant sur l'évaluation de la rugosité des surfaces mises en jeu, est étudiée. Cette approche présente la particularité de prendre en compte simultanément plusieurs niveaux de constriction ainsi que la présence d'un fluide interstitiel. L'analyse topographique d'un échantillon de cuivre et du filament permet l'alimentation de ce modèle. Dans le cas d'une constriction double flux, une conductance thermique de contact d'environ $3 \mu\text{W.K}^{-1}$ est obtenue en supposant le nombre de contact, définissant la surface d'échange, égal à 30.

Références

- [1] O. Raphaël, Contribution à la microscopie thermique à sonde locale en mode alternatif : Caractérisation de la réponse et de l'interaction sonde-échantillon, *Thèse de doctorat, Université de Reims Champagne Ardenne* (2008)
- [2] Ph. Gossel, O. Raphaël, F. Depasse, T. Duvaut and N. Trannoy, Multifrequential AC modeling of the SThM probe behavior, *Int. J. Therm. Sci.*, 46-10 (2007) 980-988.
- [3] J.P. Bardon, *Introduction à l'étude des résistances thermiques de contact*, *Revue Générale de Thermique*, 125 (1972) 429-446.
- [4] A. Degiovanni, B. Remy, S. Andre, Thermal resistance of a multi-constrictions contact: A simple model, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 46 (2003) 3727-3735.
- [5] O. Raphaël, Ph. Gossel, N. Trannoy, Th. Duvaut, F. Depasse Caractérisation des propriétés thermo-physiques d'une microsonde thermo-résistive en microscopie thermique à sonde locale, *Proc. du Congrès Français de Thermique*, 15 (Les Embiez, 29 mai - 1 juin, 2007) 787-792.
- [6] O. Raphaël, N. Trannoy, Th. Duvaut, F. Depasse, and Ph. Gossel, Microscopie thermique à sonde locale en mode alternatif : Mise en évidence d'un phénomène d'interférences d'ondes de diffusion thermique, *Proc du Congrès Français de Thermique*, 14 (Ile de ré, 16 - 19 mai, 2006) 689-694.
- [7] S. Lefèvre, S. Volz, P.O. Chapuis, Nanoscale heat transfer at contact between a hot tip and a substrate, *Int. J. Heat Mass Transfer*, 49 (2006) 251-258.
- [8] F. A. Guo, K. Y. Zhu, N. Trannoy, J. Lu, Examination of thermal properties by scanning thermal microscopy in ultrafine-grained pure titanium surface layer produced by surface mechanical attrition treatment, *Thermochimia acta*, 419 (2004) 239-246.