THÈSE

Pour l'obtention du grade de
DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE POITIERS
École nationale supérieure d'ingénieurs (Poitiers)
Pôle poitevin de recherche pour l'ingénieur en mécanique, matériaux et énergétique - PPRIMME (Poitiers)
(Diplôme National - Arrêté du 25 mai 2016)

École doctorale : Sciences et Ingénierie des Matériaux, Mécanique, Énergétique (Poitiers)
Secteur de recherche : Energétique-thermique

Présentée par :
Kamal Alaili

Transport de chaleur dans les nano-couches minces excitées par une source laser d'intensité modulée

Directeur(s) de Thèse :
Younès Ezzahri, José Ordonez-Miranda

Soutenue le 10 décembre 2019 devant le jury

Jury :

Président	**Karl Joulain**	Professeur, ENSIP, Université de Poitiers
Rapporteur	**David Lacroix**	Professeur, LEMTA, Université de Lorraine, Nancy
Rapporteur	**Konstantinos Termentzidis**	Chargé de recherche CNRS, INSA, Lyon
Membre	**Younès Ezzahri**	Maître de conférences, ENSIP, Pprime, Université de Poitiers
Membre	**José Ordonez-Miranda**	Chargé de recherche CNRS, Pprime, ENSIP, Université de Poitiers
Membre	**Danièle Fournier**	Professeur, Sorbonne-Université, Paris

Pour citer cette thèse :
Kamal Alaili. *Transport de chaleur dans les nano-couches minces excitées par une source laser d'intensité modulée* [En ligne]. Thèse Energétique-thermique. Poitiers : Université de Poitiers, 2019. Disponible sur Internet <http://theses.univ-poitiers.fr>

THÈSE

Pour l'obtention du grade de

DOCTEUR DE L'UNIVERSITÉ DE POITIERS

École nationale supérieure d'ingénieurs de Poitiers

Diplôme National - Arrêté du 25 mai 2016

École doctorale : Sciences et Ingénierie en Matériaux, Mécanique, Énergétique (SIMME)

Secteur de Recherche : Énergétique

Présentée par
Kamal ALAILI

Transport de Chaleur dans les Nano Couches Minces Excitées par une Source Laser d'Intensité Modulée

---

Directeur de thèse M. Younès EZZAHRI
Co-encadrant M. Jose ORDONEZ-MIRANDA

Soutenue publiquement le 10/12/2019
devant la Commission d'examen

Jury

M. David LACROIX	Professeur, LEMTA, Nancy	Rapporteur
M. Konstantinos TERMENTZIDIS	Chargé de recherche CNRS (HDR), Insa de Lyon	Rapporteur
Mme. Danièle FOURNIER	Professeure émérite, Sorbonne Université, Paris	Examinatrice
M. Karl JOULAIN	Professeur des universités, Institut PPRIME	Examinateur
M. Younès EZZAHRI	Maître de Conférences (HDR), Institut PPRIME	Examinateur
M. Jose ORDONEZ-MIRANDA	Chargé de recherche CNRS, Institut PPRIME	Examinateur

Remerciements

Je voudrais tout d'abord adresser toute ma gratitude à Messieurs **Younès Ezzahri** et **José Ordonez-Miranda** pour m'avoir accueilli au sein de l'équipe TNR pendant mes années de thèse.

Je remercie également Monsieur **Karl Joulain** pour l'honneur qu'il m'a fait en assurant la présidence du jury. Je suis très reconnaissant envers Messieurs **David Lacroix** et **Konstantinos Termentzidis** pour l'intérêt qu'ils ont porté à cette thèse en acceptant la charge de rapporteur. Un grand merci à Madame **Danièle Fournier** de m'avoir fait l'honneur d'assister au jury.

Mes vifs remerciements vont également à l'ensemble du Bâtiment B25. Merci à **Hélène Grassin** d'être toujours à l'écoute. Merci aux doctorants pour la bonne ambiance et bonne chance pour les prochains. Une mention spéciale pour **Kasali Suraju Olawale**, **Houssem Kallel**, **Etienne Blandre**, **Refet Ali Yalcin**, **Armande Herve** et **Hugo Prod'homme** mes compagnons de bureau.

Mes remerciements s'étendent à **Jean-Christophe Vergez** et **Lucas Toitot** pour la mise en place de dernière minute de la visioconférence lors de ma soutenance.

Je tiens à exprimer mes sincères remerciements à **Bouba El Harchi**, **Marlène Martin** et **Janick Laumonier** pour leurs appuis logistiques durant mes missions.

Un grand merci à **Dragana Cvetkovic** de son soutien tout au long de mes années de thèse et d'avoir lu et corrigé mes articles ainsi que mon manuscrit.

Enfin, je voudrais exprimer ma reconnaissance envers mes parents et ma famille qui m'ont toujours encouragé et soutenu non seulement durant ma thèse, mais tout au long de mes précédentes années d'études. Je n'oublie pas non plus mes amis qui m'ont apporté le support moral et intellectuel.

Titre : Transport de Chaleur dans les Nano Couches Minces Excitées par une Source Laser d'Intensité Modulée.

Résumé :

Ce travail, divisé en deux parties principales, porte sur l'étude du transport de chaleur dans les nanocouches excitées par une source laser d'intensité modulée. Dans la première partie, nous exploitons la solution analytique de l'équation de transport de Boltzmann appliquée aux phonons pour décrire les variations de la température et du flux de chaleur dans les films minces diélectriques excités par un laser d'intensité modulée. Cette dernière solution nous permet de modéliser le comportement de la résistance thermique d'interface (RTI) entre deux couches diélectriques en fonction de la nature du régime du transport des phonons et de la fréquence de modulation. Dans le régime stationnaire, nous montrons que cette résistance d'interface présente un caractère non-intrinsèque et asymétrique par rapport aux propriétés des deux couches. En plus, elle devient très importante quand le régime du transport des phonons est balistique. Nos résultats sont en bon accord avec le modèle DMM dans le régime balistique, tandis que l'écart entre les deux modèles ne dépasse pas 16% dans le régime diffusif. Cependant, en régime dynamique, la RTI atteint son maximum à une fréquence caractéristique dans la limite diffusive. L'expression de cette fréquence caractéristique pourrait servir à déterminer le libre parcours moyen et le temps de relaxation des phonons dominants de la couche d'épaisseur finie en comparant les données expérimentales aux résultats théoriques. Dans la seconde partie, nous proposons trois différentes méthodes pour extraire simultanément la diffusivité et la conductivité thermiques d'une couche finie en se basant sur l'équation de la chaleur de Fourier. L'idée est d'utiliser l'expression exacte du profil de température à la face avant lorsque celle-ci est excitée par un flux thermique modulé, tandis que la face arrière peut être maintenue à trois différentes conditions : température modulée, flux thermique modulé où température constante. Nous déterminons les expressions des fréquences de modulation auxquelles le profil de température atteint ses premiers maximum et minimum. La combinaison de ces fréquences caractéristiques avec le rapport entre les premiers maximum et minimum de la température, conduisant ainsi à la détermination de la diffusivité et de la conductivité thermiques.

Mots-clés : Nanocouches diélectriques, Equation de transport de Boltzmann, Résistance thermique d'interface, Régimes balistique et diffusif, Diffusivité et conductivité thermiques.

Title : Heat Transport in Nanolayers Excited by a Laser Beam of Modulated Intensity.

Abstract :

This work, separated into two main parts, deals with the study of heat transport in nanolayers excited by a laser beam with modulated intensity. In the first part, we exploit the analytical solution of the phonon Boltzmann transport equation to describe the variations of temperature and heat flux in thin dielectric films excited by a laser beam of modulated intensity. This last solution allows us to model the behavior of the interface thermal resistance (ITR) between two dielectric layers according to the nature of the phonon transport regime and the modulation frequency. In the steady state regime, we show that this interface resistance has a non-intrinsic and asymmetric character with regard to the two layers properties. In addition, it becomes very important when the phonon transport regime is ballistic. Our results are in good agreement with the diffuse mismatch model in the ballistic regime, while they differ by about 16% in the diffusive regime. However, in the dynamical regime, we mainly show that in the diffusive regime, the ITR reaches a maximum at a characteristic modulation frequency. The expression of this characteristic frequency can thus be used to determine the dominant phonons mean free path and relaxation time through the comparison of our theoretical model with experimental data. In the second part, we propose three different ways to extract simultaneously the thermal diffusivity and conductivity of a finite layer based on the Fourier heat equation. The idea is to use the accurate expression of the temperature profile when the front surface of the thin layer is excited by a periodic heat flux, while the rear surface is maintained at one of three different types of boundary conditions : modulated periodic heat flux, modulated temperature, or constant temperature. We determine the expressions of the modulation frequencies at which the front surface temperature reaches its first maximum and first minimum. The combination of these characteristic frequencies with the ratio between the first maximum and the first minimum of the temperature, thus leads to the determination of the diffusivity and thermal conductivity.

Keywords : Dielectric nanolayers, Boltzmann transport equation, Interface thermal resistance, Ballistic-diffusive regime, Thermal diffusivity and thermal conductivity.

Table des matières

Remerciements **iii**

Introduction générale **1**

1 Rappel sur la physique des phonons **5**
1.1 Introduction . . . 7
1.2 Vibrations du réseau cristallin et Phonons . . . 8
1.2.1 Structure cristalline . . . 8
1.2.2 Réseau linéaire ayant un atome par maille élémentaire . . . 9
1.2.3 Réseau linéaire ayant deux atomes par maille élémentaire . . . 12
1.2.4 Réseau cristallin à trois dimensions . . . 15
1.3 Propriétés thermiques en relation avec les phonons . . . 15
1.3.1 Chaleur spécifique d'un cristal classique : La loi de Dulong et Petit 16
1.3.2 Chaleur spécifique dans le cadre de la théorie quantique . . . 17
1.3.3 Conductivité thermique des milieux massifs . . . 19
1.4 Réduction de la conductivité thermique . . . 23
1.4.1 Les couches minces . . . 23
1.4.2 Les multi-couches et les super-réseaux semi-conducteurs . . . 26
1.5 Résistance thermique d'interface . . . 27
1.5.1 Prédiction théorique de la RTI . . . 29
Modéle AMM . . . 29
Modéle DMM . . . 32
1.5.2 Les limites des modèles AMM et DMM . . . 33
1.5.3 Techniques photothermiques . . . 35
Technique 3ω . . . 35
Thermoréflectance résolue en temps . . . 36
Radiométrie photothermique . . . 38
Technique photoacoustique . . . 39
1.6 Equation de transport de Boltzmann . . . 40
1.6.1 Résolution de l'ETB pour les phonons . . . 41
1.6.2 Méthodes de résolution . . . 42
1.6.3 Approximation du temps de relaxation . . . 43
1.7 Conclusion . . . 44

2 Effet du régime du transport des phonons sur la résistance thermique d'interface **45**
2.1 Introduction . . . 47
2.2 Solution analytique de l'ETB dans l'approximation du temps de relaxation 47
2.2.1 Profil de température en régime stationnaire . . . 56
2.2.2 Densité du flux de chaleur en régime stationnaire . . . 59
2.3 Résistance thermique effective d'interface . . . 60
2.3.1 Une couche déposée sur un substrat . . . 60
2.3.2 Deux couches déposées sur un substrat . . . 65

2.4 Conductivité thermique effective 70
2.4.1 Deux couches déposées sur un substrat 71
2.4.2 *N* couches déposées sur un substrat 76
2.5 Conclusion 79

3 Effet de la fréquence de modulation sur la résistance thermique d'interface 81
3.1 Introduction 83
3.2 Solution analytique de l'ETB en régime fréquentiel 83
3.2.1 Effet de la fréquence de modulation sur le profil de température . . 87
3.2.2 Effet de la fréquence de modulation sur la densité du flux de chaleur 90
3.3 Expression analytique de la RTI en régime dynamique 93
3.4 Résultats et discussion 95
3.5 Conclusion 99

4 Détermination des propriétés thermiques d'une couche d'épaisseur finie par une méthode à double excitation 101
4.1 Introduction 103
4.2 Cas 1 : face avant sous excitation par un flux de chaleur modulé et face arrière sous excitation par une température modulée 105
4.2.1 Équation de la chaleur, ou équation de diffusion 105
4.2.2 Condition initiale et conditions aux bords 106
4.2.3 Conditions homogènes auxiliaires 107
4.2.4 Solution complète d'un problème non homogène 108
4.2.5 Détermination des propriétés thermiques 111
4.3 Cas 2 : faces avant et arrière sont excitées par un flux de chaleur modulé . 118
4.3.1 Condition initiale et conditions aux bords 118
4.3.2 Solution complète d'un problème non homogène 119
4.3.3 Détermination des propriétés thermiques 122
4.4 Cas 3 : face avant est excitée par deux flux de chaleur modulés et face arrière est maintenue à une température constante 126
4.4.1 Condition initiale et conditions aux bords 127
4.4.2 Solution complète d'un problème non homogène 127
4.4.3 Détermination des propriétés thermiques 129
4.5 Conclusion 132

Conclusion et Perspectives 135

Bibliographie 139

A Calcul de la conductivité thermique à partir du modèle cinétique 157

B La loi de Fourier en régime stationnaire 159

C Solution de l'équation de la chaleur en régime non-stationnaire 163

Liste de publications et de conférences 167
I Publications 167
Articles dans des revues à comité de lecture 167
Articles dans des actes de conférence à comité de lecture 167
II Conférences 168
Présentations Orales 168
Présentations par affiche 168

Table des figures

1.1 Figure de gauche : structure cristalline de type diamant. Chaque atome du réseau a quatre proches voisins constituant un tétraèdre. Figure de droite : structure cristalline de type Zinc Blende. Tiré de la référence [Yu05]. 8
1.2 Schéma d'un réseau cristallin bidimensionnel avec $a_1 = a_2$ et $\gamma = 90°$ . . . 9
1.3 Onde longitudinale (a) Onde transversale (b). 9
1.4 Modèle représentatif de la chaîne linéaire monoatomique. 10
1.5 Courbe de dispersion des vibrations pour une chaîne linéaire monoatomique en tenant compte seulement des interactions avec les premiers proches voisins. On se limite à la PZB $k \in [-\pi/a\ , +\pi/a]$. 12
1.6 Modèle représentatif de la chaîne linéaire diatomique. 12
1.7 Courbe de dispersion pour une chaîne linéaire diatomique. La branche supérieure est la branche optique. La branche inférieure est dite acoustique, elle possède la même forme que celle du cas monoatomique. 14
1.8 Ondes transverses optique (a) et acoustique (b) dans un réseau linéaire diatomique, illustrant les déplacements des atomes dans les deux modes pour la même longueur d'onde. 14
1.9 Courbe de dispersion expérimentale pour le silicium (gauche) et le germanium (droite). Tiré de la référence [Dol63]. 15
1.10 Comportement de la chaleur spécifique molaire à pression constante en fonction de la température pour trois matériaux différents, K, Sn et Cu. La ligne en trait discontinu correspond à la loi classique de Dulong et Petit. Tiré de la référence [Kit96]. 17
1.11 Schéma représentatif des différents processus de collision intrinsèques à 3 phonons. Processus Normaux (a) et Processus Umklapp (b). 20
1.12 La variation de la conductivité thermique en fonction de la température dépend du comportement du mécanisme de diffusion dominant selon la température dans un cristal de Silicium. Tiré de la référence [Kim15]. . . . 22
1.13 Schéma d'un régime de transport diffusif (a), balistique (b) et intermédiaire (c) des porteurs de chaleur. Dans le régime diffusif, les porteurs de chaleur subissent des collisions avant de traverser le système. Par contre dans le régime balistique, les collions des porteurs se font essentiellement avec les bords du système. Les flèches noires représentent les trajectoires des phonons après leurs collisions avec les autres phonons ou avec les interfaces. 24
1.14 La variation de la conductivité thermique des films (a) et nanofils (b) de Si en fonction de leur dimension caractéristique (épaisseur des films et diamètre des fils). La conductivité thermique est normalisée par celle de Si massif (κ_{bulk}=130 W/m.K). Tiré de la référence [Ma12]. 25
1.15 Comportement du facteur de mérite ZT en fonction de la température pour différents super-réseaux. Tiré de la référence [Ven01]. 27
1.16 Représentation schématique de deux milieux qui sont mis en contact ainsi que les sauts de température qui se produisent au niveau de l'interface. . 28

1.17 Schéma de transmission d'un phonon sur une interface entre deux milieux semi-infinis ayant des propriétés différentes. 30
1.18 Mesures de la RTI entre le cuivre et l'hélium-4 superfluide multipliée par T^3. Tiré de la référence [Swa89]. 34
1.19 Résistance thermique d'interface entre Rh :Fe et Al_2O_3 multipliée par T^3. Les points correspondent aux mesures expérimentales. La courbe continue est obtenue par le modèle AMM et la courbe en pointillé est obtenue par le modèle DMM. Tiré de la référence [Swa89]. 34
1.20 Schéma de principe du montage expérimental de la technique 3ω. 36
1.21 Schéma de principe du montage expérimental de la méthode de thermoréflectance résolue en temps. 37
1.22 Schéma de principe du montage expérimental de radiométrie photothermique infrarouge. 38
1.23 Schéma de principe du montage expérimental de spectroscopie photoacoustique (PA). 39

2.1 Couche d'épaisseur L déposée sur un substrat semi-infini. l_i et τ_i $(i = 1, 2)$ désignent le LPM et le temps de relaxation de chaque couche, respectivement. L'excitation thermique est appliquée en $z = 0$. 48
2.2 Intensité de phonons réfléchie et transmise à l'interface $z_1 = L(z_2 = 0)$. . . 51
2.3 Variation de la densité de flux normalisé Q_{s1} en fonction de la position normalisée $x = z/l$ pour trois épaisseurs différentes. 54
2.4 Comportement des paramètres $\beta(\lambda)$ et $\gamma(\lambda)$ en fonction de l'épaisseur normalisée $\lambda = L/l$. 56
2.5 Mono-couche avec deux parois soumises à une différence de température $\Delta T = T_0 - T_1$. 57
2.6 Profils de température normalisés par $\Delta T = T_0 - T_1$ en fonction de la position normalisée $x = z/l$ (a) et Pourcentage d'erreur entre l'approximation du premier ordre et celle du second ordre (b). 58
2.7 Comportement du flux normalisé en fonction de l'épaisseur normalisée en utilisant l'approximation du premier ordre et celle du second ordre pour la température. 60
2.8 Schéma représentatif d'une couche déposée sur un substrat. 61
2.9 Variation de la fonction paramétrique $f(\lambda)$ définie dans l'équation (2.34) en fonction de l'épaisseur normalisée $\lambda = L/l_1$. 62
2.10 Profil de température normalisé dans une couche d'épaisseur finie déposée sur un substrat ; Si film/Ge substrat (a), et Ge film/ Si substrat (b). La RTI a été estimée en exploitant l'expression (2.33). 64
2.11 Schéma représentatif de deux couches déposées sur un substrat. 65
2.12 Variation de la RTI entre deux couches d'épaisseur finie en fonction de l'épaisseur normalisée de celle du bas ; Si film/Ge film/substrat (a), et Ge film/Si film/ substrat (b). 69
2.13 Variation de la conductivité thermique dans la direction perpendiculaire au plan de la couche en fonction de l'épaisseur normalisée en utilisant le présent modèle, et le modèle de Majumdar [Maj93]. 72
2.14 Comportement de la CTE d'un système à deux couches en série Si/Ge en fonction de l'épaisseur normalisée de Si (a) et Ge (b). 74
2.15 Variation de l'épaisseur critique normalisée en fonction du rapport $(\kappa_{0i}/\kappa_{0j})$ pour différents cristaux semi-conducteurs. Les calculs ont été réalisés à partir des données du tableau 2.1. 76

2.16 Schéma représentatif d'un système composé de N couches déposées sur un substrat. Les calculs ont été faits à partir des données du tableau 2.1. . 77
2.17 Variation de la CTE d'une structure multicouche Si/Ge en fonction de l'épaisseur normalisée de la couche de Si, pour deux valeurs différentes du nombre de couches ; $N = 2$ et $N = \infty$. 78

3.1 Couche d'épaisseur finie L déposée sur un substrat semi-infini. l_i et τ_i $(i = 1, 2)$ désignent le LPM et le temps de relaxation de chaque couche, respectivement. La surface en $z = 0$ est soumise à une excitation thermique modulée. 83
3.2 Variation des fonctions $M(x)$ et $M_1(x)$ en fonction de la position normalisée $x = z/l$. 86
3.3 Variation de la partie réelle de la température en fonction de la fréquence de modulation à la surface éclairée ($z = 0$), comparaison entre les prédictions de l'ETB et celles de Fourier. 88
3.4 Variation de la partie réelle de la température en fonction de la fréquence de modulation en $z = L^-$ (a), $z = L^+$ (b) et $z = L^-$ et $z = L^+$ (c) en utilisant seulement l'ETB. Les calculs ont été réalisés pour une couche de Si déposée sur un substrat de Ge. 89
3.5 Variation de la partie réelle de la densité du flux normalisé q_t/q_0 en fonction de la fréquence de modulation à l'interface entre matériaux diélectriques différents (a) $L = 100l_1$ et (b) $L = l_1$, respectivement. 92
3.6 R_{ac} en fonction de l'épaisseur normalisée L/l_1 et de la fréquence de modulation $\omega\tau_1$. Si film/Ge substrat (a et b) et Ge film/Si substrat (c et d). . . 95
3.7 R_{ac} en fonction de l'épaisseur normalisée L/l_1 et de la fréquence de modulation $\omega\tau_1$. InSb film/GaAs substrat (a et b) et GaAs film/InSb substrat (c et d). 96
3.8 comportement de R_{ac} en fonction de la fréquence de modulation $L = 100l_1$ (a), $L = 10l_1$ (b) et $L = l_1$ (c). Les calculs ont été faits pour quatre interfaces différentes. 97

4.1 Schéma représentatif d'une couche d'épaisseur L de conductivité thermique κ et de diffusivité thermique α. La face avant est sous excitation par un flux de chaleur modulé et la face arrière est sous excitation par une température modulée. 105
4.2 Variation de la température moyenne et du flux thermique moyen normalisés à la surface éclairée $z = 0$ en fonction de la fréquence normalisée Ω_1 pour trois valeurs de Ω_2. La flèche haut/bas correspond à la différence entre le premier maximum et le premier minimum de la température. Les calculs ont été réalisés pour $L = 10^{-3}$m, $\kappa = 100$ Wm^{-1}K^{-1}, $T_0 = 300$ K, $m = 1/15$ et $q_1 = 2.10^6$ Wm^{-2}. Tiré de la référence [Ala19]. 113
4.3 Variation de $\Omega_{1,\max}$ et $\Omega_{1,\min}$ en fonction de Ω_2. Les calculs ont été effectués pour $L = 10^{-3}$m, $\kappa = 100$ Wm^{-1}K^{-1}, $T_0 = 300$ K, $m = 1/15$ et $q_1 = 2.10^6$ Wm^{-2}. La courbe en pointillés représente le fit linéaire et la courbe continue représente la solution numérique de l'équation (4.28). Tiré de la référence [Ala19]. 115
4.4 Variation de de la conductivité thermique κ en fonction du rapport $(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min})$ pour trois valeurs différentes de Ω_2. Les calculs ont été réalisés pour $L = 10^{-3}$m, $T_0 = 300$ K, $m = 1/15$ et $q_1 = 2.10^6$ Wm^{-2}. Tiré de la référence [Ala19]. 117

4.5 Schéma représentatif d'une couche d'épaisseur L de conductivité thermique κ et de diffusivité thermique α. Les deux surfaces en $z = 0$ et $z = L$ sont excitées par des flux thermiques modulés aux fréquences ω_1 et ω_2, respectivement. 118
4.6 Variation de la température moyenne et du flux thermique moyen normalisés à la surface éclairée $z = 0$ en fonction de la fréquence normalisée Ω_1 pour trois valeurs de Ω_2. La flèche haut/bas correspond à la différence entre le premier maximum et le premier minimum de la température. Les calculs ont été effectués pour $L = 10^{-3}$m, $\kappa = 100$ Wm^{-1}K^{-1}, $T_0 = 300$ K, et $q_1 = q_2 = 2.10^5$ Wm^{-2}. 123
4.7 Variation de $\Omega_{1,\max}$ et $\Omega_{1,\min}$ en fonction de Ω_2. Les calculs ont été faits pour $L = 10^{-3}$m, $\kappa = 100$ Wm^{-1}K^{-1}, $T_0 = 300$ K, et $q_1 = 2.10^5$ Wm^{-2}. La courbe en pointillés représente le fit linéaire et la courbe continue représente la solution numérique de l'équation (4.51). 124
4.8 Variation de de la conductivité thermique κ en fonction du rapport $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ pour trois valeurs différentes de Ω_2. Les calculs ont été réalisés pour $L = 10^{-3}$m, $T_0 = 300$ K, et $q_1 = 2.10^5$ Wm^{-2}. 125
4.9 Schéma représentatif d'une couche d'épaisseur L de conductivité thermique κ et de diffusivité thermique α. La face avant sous excitation par deux flux de chaleur modulés et la face arrière est maintenue à la température initiale T_0. 126
4.10 Variation de la température moyenne et du flux thermique moyen normalisés à la surface éclairée $z = 0$ en fonction de la fréquence normalisée Ω_1 pour trois valeurs de Ω_2. La flèche haut/bas correspond à la différence entre le premier maximum et le premier minimum de la température. Les calculs ont été réalisés pour $L = 10^{-3}$m, $\kappa = 100$ Wm^{-1}K^{-1}, $T_0 = 300$ K et $q_1 = q_2 = 2.10^6$ Wm^{-2}. 131
4.11 Variation de de la conductivité thermique κ en fonction du rapport $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ pour trois valeurs différentes de Ω_2. Les calculs ont été effectués pour $L = 10^{-3}$m, $T_0 = 300$ K et $q_1 = 2.10^6$ Wm^{-2}. 132

A.1 Déplacement d'un phonon autour d'une position z_0 dans un barreau soumis à une différence de température $\Delta T = T_c - T_f$. 157

B.1 Couche d'épaisseur L déposée sur un substrat semi-infini. l_i, τ_i et κ_i $(j = 1, 2)$ désignent le LPM, le temps de relaxation et la conductivité thermique de la couche i, respectivement. Un flux thermique stationnaire est appliqué en $z = 0$. 159

C.1 Couche d'épaisseur L déposée sur un substrat semi-infini. κ_i et α_i $(i = 1, 2)$ désignent la conductivité thermique et la diffusivité thermique de la couche i, respectivement. L'excitation thermique est appliquée en $z = 0$. . 163

Liste des tableaux

1.1 Valeurs du LPM des phonons à température ambiante [Che98]. 25

2.1 Propriétés thermiques des cristaux semi-conducteurs à température ambiante. Les données proviennent de la référence [Dat]. 63

Liste des Abréviations

PZB	**P**remière **Z**one de **B**rillouin
TO	**B**ranche **O**ptique **T**ransversale
TA	**B**ranche **A**coustique **T**ransversale
LPM	**L**ibre **P**arcours **M**oyen
ETB	**E**quation de **T**ransport de **B**oltzmman
MEB	**M**olecular **B**eam **E**pitaxy
MOCVD	**M**etal **O**rganic **C**hemical **V**apor **D**eposition
LPE	**L**iquid **P**hase **E**pitaxy
AMM	**A**coustic **M**ismatch **M**odel
DMM	**D**iffuse **M**ismatch **M**odel
RTI	**R**ésistance **T**hermique d'**I**nterface
ETR	**E**quation du **T**ransfert **R**adiatif
MOD	**M**éthode des **O**rdonnées **D**iscrètes
MVF	**M**éthode des **V**olumes **F**inies
CTE	**C**onductivité **T**hermique **E**ffective
LF	**L**oi de **F**ourier
PA	**P**hotoacoustique
Si	**S**ilicium
Ge	**G**ermanium
GaAs	**A**rséniure de **G**allium
AlAs	**A**rséniure d'**A**luminium
GaN	**N**itrure de **G**allium
GaP	**P**hosphure de **G**allium
InSb	**A**ntimoniure d'**I**ndium
InP	**P**hosphure d'**I**ndium
InAs	**A**rséniure d'**I**ndium

Liste des Symboles

T	température, K
a	paramètre de maille, m
ω	pulsation, rad s^{-1}
k	vecteur d'onde, m^{-1}
λ	longueur d'onde, m
t	temps, s
Λ	paramètre de la rugosité, m
m	masse, kg
v	vitesse de groupe, m s^{-1}
κ	conductivité thermique, W m^{-1} K^{-1}
z	position, m
x	position normalisée
ρ	densité, kg m^{-3}
C_V	chaleur spécifique à volume constant, J mol^{-1} K^{-1}
c	chaleur spécifique à hautes températures, J kg^{-1} K
ν	fréquence, Hz
k_B	constante de Boltzmann, J K^{-1}
$\hbar$	constante réduite de Planck, J s
θ_D	température de Debye, K
q	densité du flux de chaleur, W m^{-2}
I_0	intensité des phonons à l'équilibre, W m^{-2}
I	intensité des phonons, W m^{-2}
τ	temps de relaxation, s
l	libre parcours moyen, m
L	dimension caractéristique, m
R	résistance thermique d'interface, m^2 K GW^{-1}
σ	constante de Stefan-Boltzmann, W m^{-2} K^{-4}
α	diffusivité thermique, $m^2 s^{-1}$
j	polarisation
max	maximum
min	minimum

A mes parents

A mes soeurs

A mon frère

A toute ma famille

A mes amis.

Introduction générale

Au cours des deux décennies écoulées, le domaine des micro et nanotechnologies a connu un essor formidable, grâce notamment au développement de nouvelles techniques de fabrication et de synthèse (MBE, LPE, MOCVD). Ces techniques nous permettent, aujourd'hui, d'élaborer des objets dont les dimensions caractéristiques sont inférieures au millimètre, allant jusqu'à quelques dizaines de nanomètres. On peut citer, par exemple, les films minces, les nanofils, les multicouches ou les super-réseaux. Ces systèmes nanostructurés sont largement utilisés dans différents domaines d'applications, et plus particulièrement en électronique. Avec la réduction de la taille des dispositifs en microélectronique, la gestion de la dissipation thermique est devenue une nécessité. Cette dissipation est la principale cause de défaillance dans les dispositifs électroniques. Les problèmes liés à la dissipation de chaleur constituent un véritable défi devant la miniaturisation des composants électroniques. Le développement des dispositifs de plus en plus performants exige une compréhension plus approfondie de la thermique.

Les propriétés thermiques des matériaux nanostructurés changent énormément par rapport aux matériaux massifs. A titre d'exemple, un nanofilm de Si peut avoir une conductivité thermique cent fois plus faible que celle du Si massif dans une large gamme de température [200-500 K] [Vol99] et le nanotube de carbone a une conductivité thermique beaucoup plus élevée que celle du diamant [Min05]. La théorie classique décrivant le mécanisme du transfert de chaleur dans les matériaux massifs est connue depuis plusieurs décennies [Kit96 ; Ash12]. Depuis, des travaux ont été menés sur l'effet du couplage électron-phonon [Maj04], ainsi que sur les processus de diffusion aux interfaces semi-conducteur/semi-conducteur et métal/semi-conducteur. Ce sont des sujets de recherche encore ouverts. La réduction de la conductivité thermique dans les matériaux diélectriques et semi-conducteurs a fait aussi l'objet de nombreux travaux de

recherche pour atteindre des valeurs plus adéquates pour des applications thermoélectriques [Maj93 ; Che98 ; Che05a]. Cette réduction de la conductivité thermique est due essentiellement à la présence de la résistance thermique d'interface (RTI) et des surfaces. Cette résistance thermique joue le rôle d'une barrière thermique qui s'oppose à la propagation du courant thermique. Cette barrière thermique est difficile à contrôler et à estimer en raison de plusieurs paramètres l'influençant comme la qualité de l'interface, température, régime du transport, etc [Xia17]. Dans la littérature, on retrouve deux principaux modèles théoriques qui permettent de modéliser cette résistance d'interface. Le premier, dit le modèle de la désadaptation acoustique (AMM) considère les phonons comme des ondes acoustiques subissant des réflexions spéculaires au niveau de l'interface. Le second, dit le modèle de la désadaptation diffuse (DMM), considère que les phonons incidents subissent des réflexions diffuses [Swa89]. Ces deux modèles considèrent que la RTI est une propriété intrinsèque à l'interface. Ceci est en désaccord souvent avec les résultats expérimentaux et les résultats de simulation [Kak17].
Le travail de recherche réalisé dans le cadre de cette thèse vise à étudier l'influence du régime de transport de phonons ainsi que la fréquence de modulation du champ de température (flux de chaleur) sur la RTI au niveau de la jonction entre deux matériaux diélectriques en se basant sur la solution analytique de l'équation de transport de Boltzmann (ETB) obtenue dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation et du spectre gris. Le manuscrit comporte quatre chapitres :

Le premier chapitre de cette thèse est consacré au rappel des outils de base de la physique des phonons. Ces outils sont indispensables dans la compréhension du transport de chaleur dans les matériaux massifs diélectriques et semi-conducteurs et dans les structures à basses dimensionnalités telles que les films minces, les multicouches et les super-réseaux. Après avoir introduit certaines propriétés thermiques et notamment la chaleur spécifique et la conductivité thermique, nous introduisons les limites des lois macroscopiques décrivant les transferts thermiques aux petites échelles. Nous discutons aussi les différents mécanismes susceptibles d'expliquer le comportement thermique de ces nanostructures, et la réduction de leur conductivité thermique en comparaison avec celle du milieu massif. Les principaux paramètres influençant cette propriété thermique sont revus, en particulier la RTI. Un rappel sur les deux principaux modèles AMM et

DMM ainsi que les techniques expérimentales estimant cette résistance d'interface est aussi présenté. A la fin de ce chapitre, nous présentons l'ETB qui décrit le transfert thermique dans les matériaux nanostructurés ainsi que ses méthodes de résolution.

Le second chapitre est consacré à l'étude de la RTI entre nanocouches diélectriques. La première partie sera consacrée à la la résolution de l'ETB en régime stationnaire dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation et du spectre gris. Cette résolution permet de décrire les variations de la température et du flux de chaleur dans les couches diélectriques. Nous étudions ensuite le comportement de la RTI en fonction de la nature du régime du transport des phonons. Cette résistance d'interface devient de plus en plus importante lorsque le transport des phonons dans la couche d'épaisseur finie est purement balistique. Enfin, nous calculons la conductivité thermique effective d'une structure multicouches en prenant en compte la RTI au niveau de l'interface entre deux couches adjacentes.

Dans le troisième chapitre, nous présentons dans une première partie la solution analytique de l'ETB en régime dynamique dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation et du spectre gris. Dans la deuxième partie, nous discutons l'effet de la nature du régime du transport des phonons dans la couche d'épaisseur finie, ainsi que la fréquence de modulation sur la RTI. Dans la dernière partie du chapitre, nous proposons une méthode pour la détermination des propriétés physiques intrinsèques de la couche d'épaisseur finie, particulièrement, le LPM et le temps de relaxation des phonons.

Le quatrième chapitre concerne la détermination des propriétés thermiques d'une couche d'épaisseur finie en se basant sur la résolution de l'équation de la chaleur de Fourier. Nous résolvons cette équation, où les deux faces peuvent être soumises moyennant un laser d'intensité modulée, à trois conditions aux bords différentes. L'analyse du profil de température obtenu en face avant permet d'extraire simultanément la diffusivité et la conductivité thermiques de la couche d'épaisseur finie.
Enfin, une conclusion générale de la thèse, ainsi que des perspectives de ce travail sont présentées.

Chapitre 1

Rappel sur la physique des phonons

Sommaire

1.1 Introduction 7
1.2 Vibrations du réseau cristallin et Phonons 8
1.2.1 Structure cristalline 8
1.2.2 Réseau linéaire ayant un atome par maille élémentaire 9
1.2.3 Réseau linéaire ayant deux atomes par maille élémentaire 12
1.2.4 Réseau cristallin à trois dimensions 15
1.3 Propriétés thermiques en relation avec les phonons 15
1.3.1 Chaleur spécifique d'un cristal classique : La loi de Dulong et Petit 16
1.3.2 Chaleur spécifique dans le cadre de la théorie quantique 17
1.3.3 Conductivité thermique des milieux massifs 19
1.4 Réduction de la conductivité thermique 23
1.4.1 Les couches minces 23
1.4.2 Les multi-couches et les super-réseaux semi-conducteurs 26
1.5 Résistance thermique d'interface 27
1.5.1 Prédiction théorique de la RTI 29
1.5.2 Les limites des modèles AMM et DMM 33
1.5.3 Techniques photothermiques 35
1.6 Equation de transport de Boltzmann 40
1.6.1 Résolution de l'ETB pour les phonons 41
1.6.2 Méthodes de résolution 42
1.6.3 Approximation du temps de relaxation 43
1.7 Conclusion 44

1.1 Introduction

D'un point de vue thermodynamique, le transport de chaleur dans un matériau se produit comme une conséquence de l'existence d'un écart de températures. Selon le deuxième principe, ce transport s'effectue spontanément dans le sens opposé du gradient de température. Les phénomènes de transport de chaleur sont très confrontés dans la vie courante et jouent un rôle crucial dans presque tout type d'applications. Dépendant de la nature du solide, différents types de porteurs de chaleur peuvent se manifester comme les électrons, les photons, les phonons, etc. Ces porteurs permettent de transporter la chaleur d'un endroit à l'autre. Dans les métaux, les électrons transportent aussi bien la charge électrique que la chaleur. Par contre, dans le cas des semi-conducteurs (type de matériau qui sera mis en exergue dans ce travail), ce sont les vibrations du réseau cristallin (phonons) qui constituent les porteurs dominants de la chaleur. Dans ce chapitre, nous présentons les bases théoriques du transport de phonons dans les milieux massifs puis dans les milieux nanostructurés.

Nous commençons d'abord ce chapitre par un rappel des notions de base des phonons. Ainsi, nous étudions les vibrations atomiques d'un réseau linéaire monoatomique puis diatomique dans le cadre de l'approximation harmonique afin d'introduire la notion de courbe de dispersion.
La seconde partie est consacrée au transport de chaleur dans les milieux massifs cristallins. A cet égard, la notion de quantification des modes normaux appelés "phonons" est introduite afin de mieux comprendre les mécanismes de diffusion responsables du transport de chaleur, ainsi que la détermination des propriétés thermiques des solides. Ensuite, la conductivité thermique est définie à partir de la théorie cinétique des gaz appliquée aux phonons.
Dans la troisième partie, nous abordons le transport de chaleur dans les milieux nanostructurés cristallins. Puis, nous discutons la limite de validité des lois classiques décrivant les phénomènes du transfert thermique .
Dans la quatrième partie, nous présentons une revue générale de la résistance thermique d'interface entre deux matériaux solides cristallins, en mettant l'accent sur les différents

paramètres qui influencent cette résistance interfaciale. Un rappel sur les principaux modèles (AMM et DMM) estimant la résistance thermique d'interface est aussi présenté. Enfin dans une dernière partie, nous introduisons l'équation de transport de Boltzmann dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation ainsi qu'un aperçu sur quelques-unes des méthodes de résolution. Cette équation servira dans les deux chapitres 2 et 3 pour la modélisation de la résistance thermique d'interface entre deux couches diélectriques.

1.2 Vibrations du réseau cristallin et Phonons

1.2.1 Structure cristalline

Dans les matériaux solides cristallins, les atomes se trouvent organisés pour constituer des réseaux périodiques bien ordonnés, comme indiqué dans les Figures 1.1 et 1.2 ci-dessous. Cet organisation périodique dans l'espace est due aux forces interatomiques de diverses origines en fonction de la nature du solide. A $T = 0$ K, tous les atomes sont fixes dans leurs positions d'équilibre. Sous l'influence de l'augmentation de la température, les atomes commencent à vibrer autour de leurs positions d'équilibre et leurs amplitudes de vibration augmentent. Ces vibrations provoquent des déformations sous forme de paquets d'ondes qui se propagent dans toutes les directions du réseau. L'onde issue des déplacements atomiques peut avoir deux polarisations. Si le déplacement des

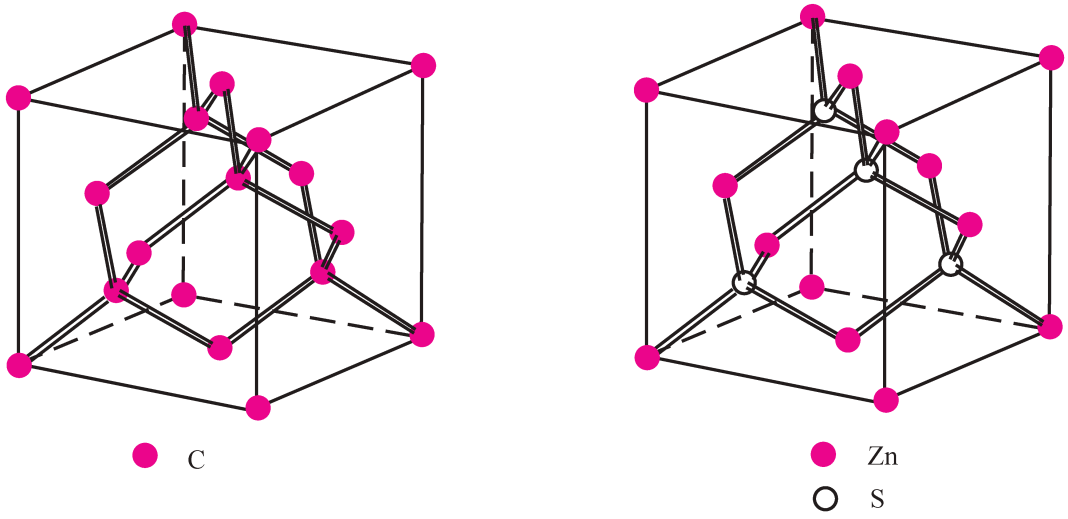

FIGURE 1.1 – Figure de gauche : structure cristalline de type diamant. Chaque atome du réseau a quatre proches voisins constituant un tétraèdre. Figure de droite : structure cristalline de type Zinc Blende. Tiré de la référence [Yu05].

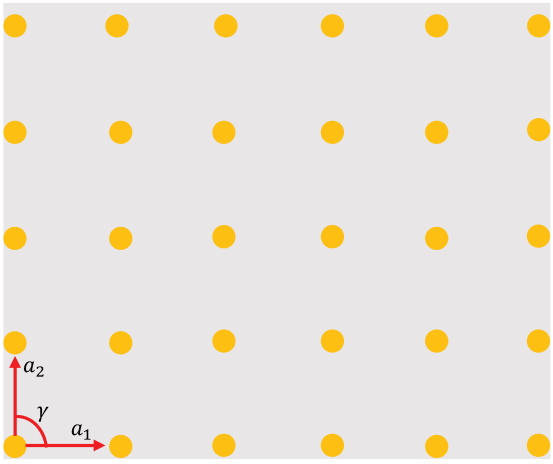

FIGURE 1.2 – Schéma d'un réseau cristallin bidimensionnel avec $a_1 = a_2$ et $\gamma = 90°$.

atomes est parallèle à la direction de propagation, on parle d'une polarisation longitudinale [Figure 1.3 (a)]. Si le déplacement est perpendiculaire à la direction de propagation, on parle d'une polarisation transverse [Figure 1.3 (b)]. Ces paquets d'ondes sont associés à des quanta d'énergie appelés phonons [Kit96]. Ils jouent un rôle crucial dans la détermination des propriétés thermiques des semi-conducteurs particulièrement, la chaleur spécifique et la conductivité thermique. Afin d'examiner les vibrations des atomes dans un réseau cristallin, on s'intéresse à la configuration de la chaîne linéaire avec un ou deux atomes par maille élémentaire.

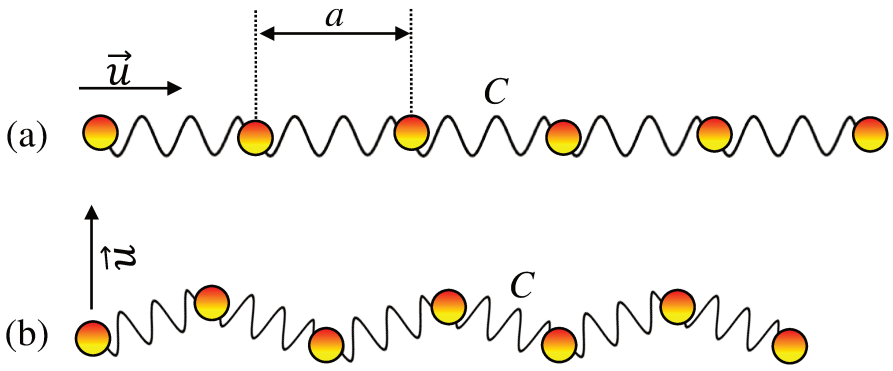

FIGURE 1.3 – Onde longitudinale (a) Onde transversale (b).

1.2.2 Réseau linéaire ayant un atome par maille élémentaire

On considère le cas le plus simple, il s'agit d'un réseau périodique unidimensionnel contenant N atomes identiques $(N > 1)$ de masse m [Figure 1.4]. Les atomes sont reliés

les uns aux autres par des ressorts traduisant les forces interatomiques qui résultent du potentiel d'interaction et en faisant l'hypothèse que chaque atome n'interagisse qu'avec ses proches voisins. On considère le cas d'un potentiel harmonique et on se limite aux interactions entre les premiers voisins $(s+1)$ et $(s-1)$ de l'atome s.

La force résultante agissant sur l'atome s est donnée par le principe fondamental de la

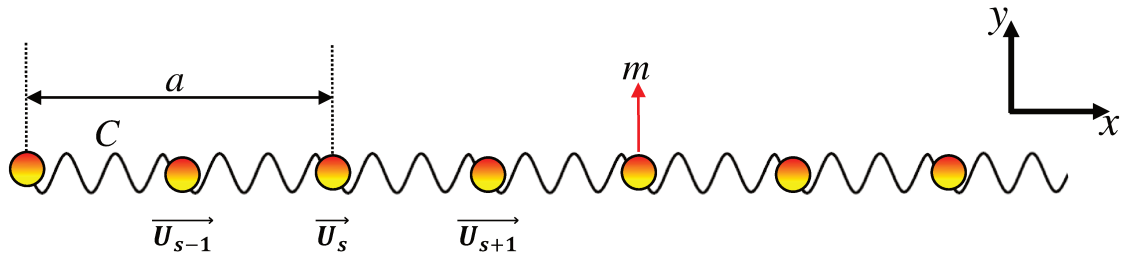

FIGURE 1.4 – Modèle représentatif de la chaîne linéaire monoatomique.

dynamique :

$$F = m\gamma = m\frac{d^2U_s}{dt^2}, \tag{1.1}$$

où U_s est le déplacement de l'atome s par rapport à sa position d'équilibre. D'après la loi de Hooke, nous avons $F = C\left[U_{s+1}(t) - U_s(t)\right] + C\left[U_{s-1}(t) - U_s(t)\right]$ avec C est la constante de rappel donnée par la dérivée seconde du potentiel d'interaction et que l'on suppose identique entre tous les atomes voisins $C = C_s = C_{s-1}$.

L'équation du mouvement de l'atome s est donnée par :

$$m\frac{d^2U_s(t)}{dt^2} = C\left[U_{s+1}(t) - U_s(t)\right] + C\left[U_{s-1}(t) - U_s(t)\right]. \tag{1.2}$$

Nous cherchons des solutions sous la forme d'ondes planes :

$$U_s(t) = U_s e^{i(ska-\omega t)}, \tag{1.3}$$

où ω est la fréquence angulaire, $k = 2\pi/\lambda$ est le vecteur d'onde, λ est la longueur d'onde et a est la distance interatomique.

En remplaçant (1.3) dans (1.2), on aura alors :

$$\omega^2 = \frac{2C}{m}\left(1 - \cos(ka)\right). \tag{1.4}$$

il vient :

$$\omega(k) = 2\sqrt{\frac{C}{m}}\left|\sin\left(\frac{1}{2}ka\right)\right|. \tag{1.5}$$

L'équation (1.5) représente la relation de dispersion des phonons pour une chaîne 1D dans le cadre de l'approximation harmonique entre premiers voisins. Un raisonnement analogue peut se faire en tenant compte simplement des autres voisins. Dans ce cas, l'équation (1.5) devient :

$$\omega^2(k) = \frac{4}{m}\sum_{s>0} C_s \sin^2\left(\frac{1}{2}ksa\right). \tag{1.6}$$

ω est linéaire en k, lorsque le vecteur d'onde k s'approche du centre de la première zone de Brillouin (PZB) qui représente l'intervalle $k \in [-\pi/a\ , +\pi/a]$.

$$\omega = a\sqrt{\frac{C}{m}}|k|. \tag{1.7}$$

Cette équation décrit le comportement d'une onde élastique qui se propage au sein d'un milieu continu. La vitesse de phase v_{ph} et la vitesse de groupe v_g sont données par :

$$v_{ph} = \frac{2}{k}\sqrt{\frac{C}{m}}\sin\left(\frac{ka}{2}\right). \tag{1.8a}$$

$$v_g = \sqrt{\frac{Ca^2}{m}}\cos\left(\frac{ka}{2}\right). \tag{1.8b}$$

Lorsque k est petit devant π/a, ω devient linéaire en k comme on peut le voir sur la Figure 1.5, la vitesse de phase v_{ph} et la vitesse de groupe v_g sont égales. Au bord de la PZB $k = \pi/a$, la vitesse de groupe s'annule, l'onde ne se propage plus (onde stationnaire).
La vitesse du son v_s est définie comme la vitesse de groupe v_g quand $k \to 0$, ce qui donne

$$v_s = \sqrt{\frac{Ca^2}{m}}. \tag{1.9}$$

L'équation (1.9) décrit la vitesse de propagation du son dans un matériau solide cristallin. C'est pourquoi les modes de grandes longueurs d'onde sont appelés les modes acoustiques.

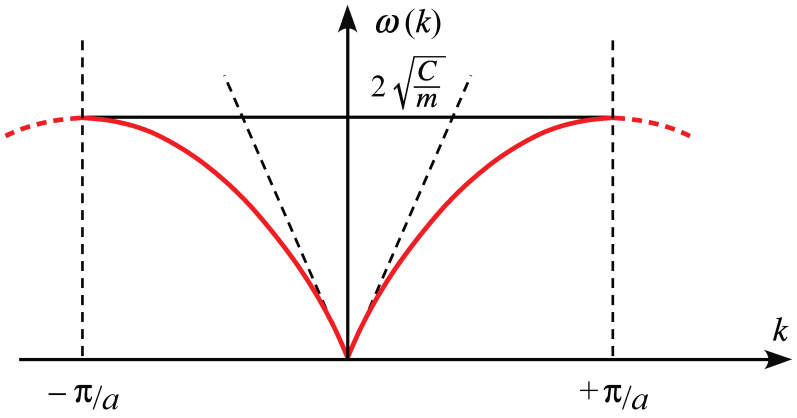

FIGURE 1.5 – Courbe de dispersion des vibrations pour une chaîne linéaire monoatomique en tenant compte seulement des interactions avec les premiers proches voisins. On se limite à la PZB $k \in [-\pi/a\,, +\pi/a]$.

1.2.3 Réseau linéaire ayant deux atomes par maille élémentaire

Dans ce paragraphe, nous allons calculer la relation de dispersion pour un cristal ayant deux atomes différents dans la cellule primitive. C'est le cas des cristaux ioniques, par exemple, NaCl, CsCl, ZnS, etc. Nous considérons le cas simple d'un réseau unidimensionnel a deux types d'atomes de masses M et m avec $m < M$ séparés à l'équilibre par la distance $a/2$ [Figure 1.6]. Pour simplifier les calculs, nous supposons que chaque

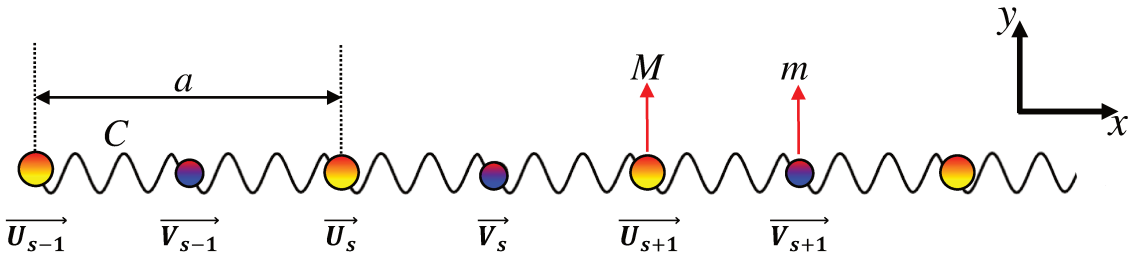

FIGURE 1.6 – Modèle représentatif de la chaîne linéaire diatomique.

atome n'interagit qu'avec ses premiers proches voisins. Notons C est la constante de rappel entre les atomes voisins et que l'on suppose être la même tout au long de la chaîne. Comme dans le cas d'une chaîne monoatomique, le principe fondamental de la dynamique appliqué aux deux atomes s et $s+1$ donne :

$$M\frac{d^2U_s}{dt^2} = C\left[V_s + V_{s-1} - 2U_s\right]. \tag{1.10a}$$

$$m\frac{d^2V_s}{dt^2} = C\left[U_{s+1} + U_s - 2V_s\right]. \tag{1.10b}$$

Nous cherchons des solutions sous forme d'onde planes :

$$U_s = Ue^{i(ska-\omega t)}. \tag{1.11a}$$

$$V_s = Ve^{i(ska-\omega t)}. \tag{1.11b}$$

En substituant les expressions (1.11a) et (1.11b) dans les équations du mouvement (1.10a) et (1.10b), on obtient :

$$-\omega^2 MU = CV\left(1+e^{-ika}\right) - 2CU. \tag{1.12a}$$

$$-\omega^2 mV = CU\left(1+e^{ika}\right) - 2CV. \tag{1.12b}$$

Ce système d'équations n'admet une solution non triviale que si le déterminant est nul, soit :

$$mM\omega^4 - 2C\left(m+M\right)\omega^2 + 2C^2\left(1-\cos\left(ka\right)\right) = 0. \tag{1.13}$$

Les deux solutions de (1.13) sont données par :

$$\omega^2 = \frac{C\left(m+M\right) \pm \sqrt{C^2\left(m+M\right)^2 - 2mMC^2\left(1-\cos\left(ka\right)\right)}}{mM}. \tag{1.14}$$

On remarque que pour une chaîne linéaire diatomique, il y a l'apparition de deux branches distinctes écartées par une bande interdite en fréquence [Figure 1.7]. La branche inférieure, dite acoustique, a la même forme que celle calculée pour une chaîne monoatomique. ω varie linéairement avec k pour des k petits, et la dérivée de ω par rapport à k s'annule aux bords de la PZB. La branche supérieure atteint sa valeur maximale $\omega = \sqrt{2C\left(m+M\right)/mM}$ en $k = 0$, puis décroît quand k augmente, jusqu'à $\omega = \sqrt{2C/m}$ en $k = \pi/a$. Cette branche est dite optique parce qu'elle peut interagir avec un champ électrique d'une onde électromagnétique, ce qui est le cas pour les cristaux ioniques [Ash12]. Le nombre de branches va dépendre du nombre d'atomes dans la maille primitive. Si la maille contient N atomes, alors, il y aura 3 branches acoustiques et $3(N-1)$ branches optiques.

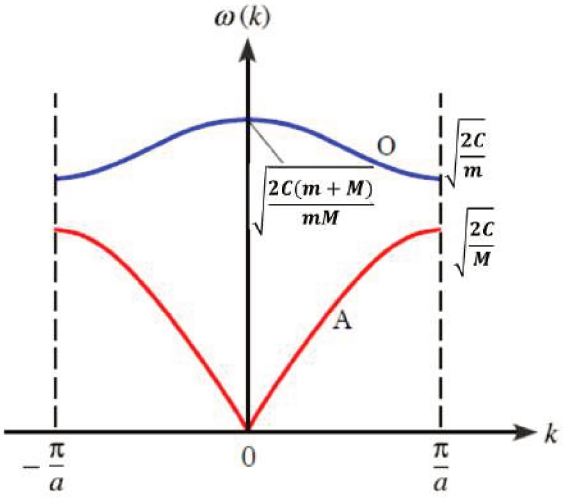

FIGURE 1.7 – Courbe de dispersion pour une chaîne linéaire diatomique. La branche supérieure est la branche optique. La branche inférieure est dite acoustique, elle possède la même forme que celle du cas monoatomique.

Prés du centre de la PZB $(ka \to 0)$, les deux solutions de (1.12) prennent la forme :

$$\omega^2 = 2C\left(\frac{m+M}{mM}\right). \qquad \text{Branche optique} \tag{1.15a}$$

$$\omega^2 = \frac{C}{2\,(m+M)}k^2a^2. \qquad \text{Branche acoustique} \tag{1.15b}$$

Au bord de la zone $k = \pm\frac{\pi}{a}$, on obtient :

$$\omega_1^2 = \frac{2C}{m} \qquad \omega_2^2 = \frac{2C}{M}. \tag{1.16}$$

Si on remplace (1.15a) dans (1.12a), on trouve $U/V = -m/M < 0$. Cela signifie que

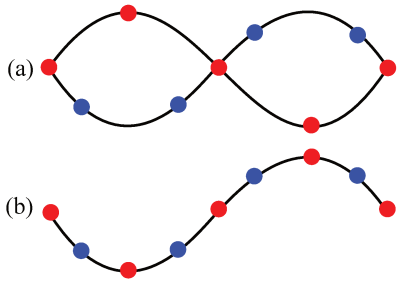

FIGURE 1.8 – Ondes transverses optique (a) et acoustique (b) dans un réseau linéaire diatomique, illustrant les déplacements des atomes dans les deux modes pour la même longueur d'onde.

tous les atomes oscillent dans des sens opposés [Figure 1.8 (a)], amenant à la création des

dipôles électriques qui peuvent interagir avec les ondes électromagnétiques. C'est pourquoi cette branche est appelée "optique" [Kit96]. La deuxième branche est dite acoustique, dans ce cas $U/V = 1$ et tous les atomes oscillent dans le même sens [Figure 1.8 (b)].

1.2.4 Réseau cristallin à trois dimensions

Nous avons vu dans le cas à une dimension qu'il y a seulement le comportement des fréquences qui est en mesure pour examiner les vibrations atomiques dans un réseau cristallin. Par contre, dans le cas tridimensionnel, il faut aussi prendre en compte l'orientation du vecteur polarisation. Le nombre de branches par polarisation dépend de la maille primitive. Si cette dernière contient N atomes, il apparaît 3 branches acoustiques et $3(N-1)$ branches optiques [Kit96]. Il est possible de mesurer ces branches en utilisant soit la technique de la diffusion des rayons X, soit la méthode de diffusion de neutrons [Ash12]. A titre d'exemple nous donnons dans la Figure 1.9 la courbe de dispersion obtenue dans le cas du silicium et du germanium. Ces spectres de dispersion ont été mesurés à l'aide de la technique de diffusion inélastique de neutrons [Dol63]. On remarque que les deux branches optiques transversales (TO) sont dégénérées, de même que les deux branches acoustiques transversales (TA).

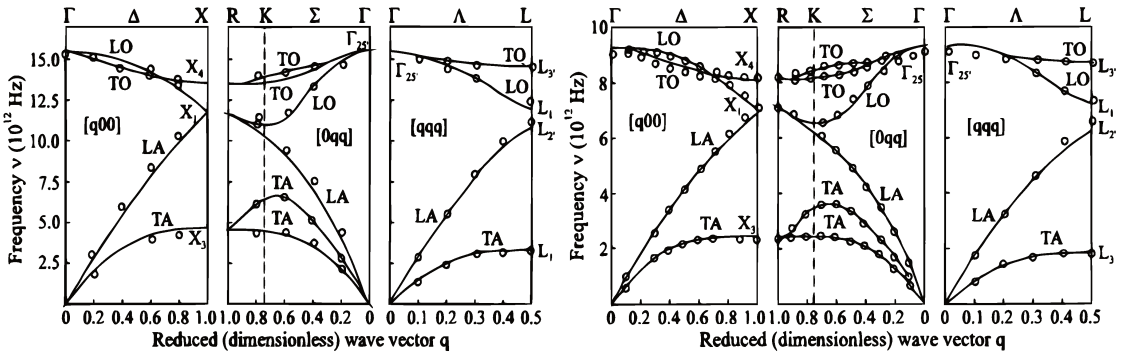

FIGURE 1.9 – Courbe de dispersion expérimentale pour le silicium (gauche) et le germanium (droite). Tiré de la référence [Dol63].

1.3 Propriétés thermiques en relation avec les phonons

Nous avons examiné dans la section précédente les vibrations du réseau linéaire dans l'approximation du cristal harmonique. Dans cette section, on s'intéresse aux propriétés

thermiques des solides cristallins, et plus particulièrement la chaleur spécifique et la conductivité thermique. Nous discutons le comportement de ces deux propriétés thermiques en fonction de la température.

1.3.1 Chaleur spécifique d'un cristal classique : La loi de Dulong et Petit

La chaleur spécifique, dite aussi la chaleur massique, est la capacité d'un matériau à stocker l'énergie sous forme de chaleur, pour une massé donnée, lorsque sa température augmente. Cette propriété thermique est mesurable à pression constante, ou à volume constant. Pour le cas des solides, il n'y a pas de différence significative entre les deux cas [Kit96 ; Ash12]. Ici, nous nous intéressons à la chaleur spécifique à volume constant qui est définie par

$$C_v = \left(\frac{\partial u}{\partial T}\right)_v, \tag{1.17}$$

où u désigne la densité d'énergie interne associée aux vibrations du réseau, C_v est la chaleur spécifique à volume constant associée aux phonons et T est la température absolue. La densité d'énergie d'un cristal classique est donnée par [Kit96] :

$$u = u^{\text{eq}} + 3nk_BT, \tag{1.18}$$

où k_B est la constante de Boltzmann et $n = N/V$ est le nombre d'atomes (ions) par unité de volume.

On remarque que $u = u^{\text{eq}}$ quand $T = 0$, ce qui correspond à l'énergie statique. Pour des températures non nulles, le terme $3nk_BT$ représente simplement une correction par rapport à l'énergie statique. La chaleur spécifique se déduit de (1.18) :

$$C_v = 3nk_B. \tag{1.19}$$

Cette relation est connue sous le nom de la loi de Dulong et Petit. Elle montre que la chaleur spécifique est indépendante de la température. La Figure 1.10 montre le comportement de la chaleur spécifique molaire à pression constante mesurée du Potassium, de l'étain et du cuivre. A haute température (typiquement T est de l'ordre de 300 K), les valeurs de la chaleur spécifique molaire mesurées sont très proches de la valeur de Dulong et Petit. Lorsque la température diminue, la chaleur spécifique molaire décroît

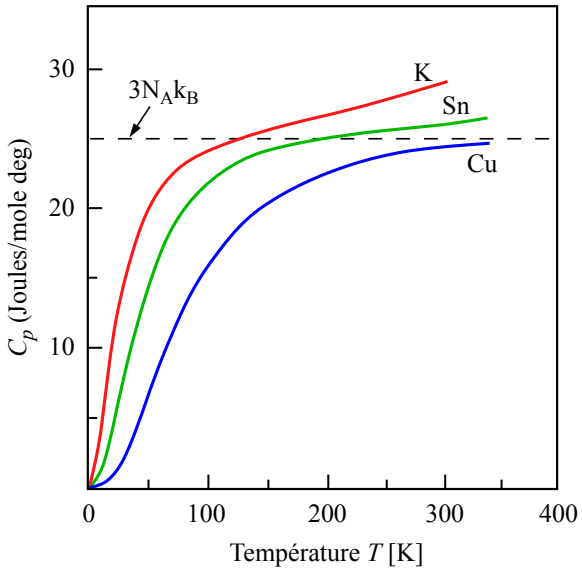

FIGURE 1.10 – Comportement de la chaleur spécifique molaire à pression constante en fonction de la température pour trois matériaux différents, K, Sn et Cu. La ligne en trait discontinu correspond à la loi classique de Dulong et Petit. Tiré de la référence [Kit96].

et tend vers zéro pour des températures nulles. Même pour des températures très élevées, il est clair que la chaleur spécifique n'est pas constante. Cela peut s'expliquer par le fait qu'aux hautes températures, les effets anharmoniques dans le potentiel interatomique deviennent très importants. Le comportement de la chaleur spécifique lorsque la température s'approche de zéro ne s'explique que dans le cadre de la théorie quantique appliquée aux vibrations du réseau.

1.3.2 Chaleur spécifique dans le cadre de la théorie quantique

La chaleur spécifique est calculée à partir de la dérivée de l'énergie interne par rapport à la température (1.17). Le calcul de l'énergie interne est donné par la statistique de Bose-Einstein en considérant $3N$ oscillateurs indépendants :

$$u = u^{\text{eq}} + \sum_{k,j} \left(\frac{1}{2}\hbar\omega_j(k) + \frac{\hbar\omega_j(k)}{\exp\left(\frac{\hbar\omega_j(k)}{k_B T}\right) - 1} \right). \tag{1.20}$$

où j le vecteur polarisation et k le vecteur d'onde. Le second terme de (1.20) est associé à l'énergie de point zéro. Ce terme peut être négligé pour calculer la chaleur spécifique, car il ne dépend pas de la température. Le troisième terme de (1.20) dépend de la température. Il tend vers zéro quand $T \to 0$. Contrairement à la théorie classique, la chaleur

spécifique n'est plus constante, mais dépend de la température :

$$C_v = \sum_{k,j} \frac{\partial}{\partial T} \frac{\hbar\omega_j(k)}{\exp\left(\frac{\hbar\omega_j(k)}{k_B T}\right) - 1}. \tag{1.21}$$

Pour un cristal de grande taille, les écarts d'énergie entre les oscillateurs sont très denses. Par conséquent, on peut remplacer la somme par une intégrale sur la PZB, en exprimant (1.21) sous la forme :

$$C_v = \frac{\partial}{\partial T} \sum_j \int_{\text{PZB}} \frac{dk}{(2\pi)^3} \frac{\hbar\omega_j(k)}{\exp\left(\frac{\hbar\omega_j(k)}{k_B T}\right) - 1}, \tag{1.22}$$

Afin de simplifier l'expression (1.22), nous admettons les hypothèses suivantes :

− La loi de dispersion $\omega_j(k)$ sera remplacée par une relation linéaire $\omega(k) = v_s k$ (approximation de Debye), où v_s est la vitesse du son.

− Aux très basses températures, les branches optiques ne sont pas excitées et seules les branches acoustiques seront en mesure de contribuer à l'énergie interne.

− La limite infinie est une conséquence du fait que la température est très basse. La relation (1.23) s'obtient en opérant le changement de variable $x_D = \hbar\omega / k_B T$, la borne supérieure de l'intégrale devient alors θ_D / T où θ_D est la température de Debye du matériau ($\theta_D = 640$K pour le silicium [Kit96]). Donc si $T \to 0$, la borne supérieure de l'intégral tend vers l'infini.

− On suppose que la vitesse des phonons est indépendante de la polarisation, on multiple donc (1.22) par un facteur 3. Par conséquent, (1.22) se simplifie à :

$$C_v = \frac{\partial}{\partial T} \frac{(k_B T)^4}{(\hbar v_s)^3} \frac{3}{2\pi^2} \int_0^\infty \frac{x^3 dx}{e^x - 1}. \tag{1.23}$$

il vient,

$$C_v = \frac{2\pi^2}{5} \frac{k_B^4 T^3}{\hbar^3 v_s^3}. \tag{1.24}$$

Ce résultat est en très bon accord avec les mesures expérimentales. Dans le cadre du modèle de Debye, la chaleur spécifique est donnée à toute température par :

$$C_v = \frac{3}{2\pi^2} \frac{k_B^4 T^3}{\hbar^3 v_s^3} \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^4 e^x dx}{(e^x - 1)^2}, \tag{1.25}$$

où encore

$$C_v = 9nk_B \left(\frac{T}{\theta_D}\right)^3 \int_0^{\theta_D/T} \frac{x^4 e^x}{(e^x-1)^2} dx. \tag{1.26}$$

Aux basses températures, la chaleur spécifique augmente avec la température suivant une loi en T^3. Pour plus de détails, le lecteur peut consulter les livres de référence en physique des solides [Ash12 ; Kit96].

Aux hautes températures ($T \gg \theta$), la chaleur spécifique tend vers la valeur classique de Dulong et Petit ($C_v = 3nk_B$).

1.3.3 Conductivité thermique des milieux massifs

Selon la composition du matériau solide cristallin, la conduction de chaleur résulte de la compétition entre différents mécanismes, et plusieurs processus interviennent pour limiter la contribution de chaque mécanisme. A l'échelle microscopique, les porteurs de chaleur sont les électrons et les phonons. Les premiers prédominent dans les métaux, alors que les seconds dans les semi-conducteurs et les isolants. Dans le cadre de ce travail de thèse, nous nous intéressons au transport de chaleur dans les semi-conducteurs dans lesquels les phonons sont les porteurs majoritaires. La conductivité thermique est limitée par le taux de diffusion des phonons [Zim60]. Il existe deux types de processus de diffusion des phonons : les processus intrinsèques et les processus extrinsèques. Les premiers sont dûs aux effets anharmoniques des forces inter-atomiques, tandis que les seconds sont dûs aux imperfections du cristal (défauts, dislocation, impureté, lacune...) ou encore les effets de surfaces. Les processus intrinsèques sont très importants et correspondent à des transitions qui peuvent faire intervenir 3 ou 4 phonons [Zim60]. On distingue deux types de processus : Les processus Normaux (dits processus N) et les processus Umklapp (dits processus U). On se limite ici au cas des processus à 3 phonons. Le processus N peut donner naissance à un phonon de vecteur d'onde $\overrightarrow{k_1}$ à partir de la combinaison de deux phonons de vecteur d'onde $\overrightarrow{k_2}$ et $\overrightarrow{k_3}$, mais aussi en décomposant un phonon de vecteur $\overrightarrow{k_1}$ en deux phonons de vecteur $\overrightarrow{k_2}$ et $\overrightarrow{k_3}$, comme schématisé à la Figure 1.11 (a). Ce processus entraîne une conservation d'énergie et de vecteur d'onde après l'interaction. Par contre, dans le processus Umklapp seule l'énergie est conservée après interaction, la quantité de mouvement n'est pas conservée [Kit96] [Figure 1.11 (b)]. Le Libre Parcours Moyen (LPM) des phonons correspond à la distance parcourue par

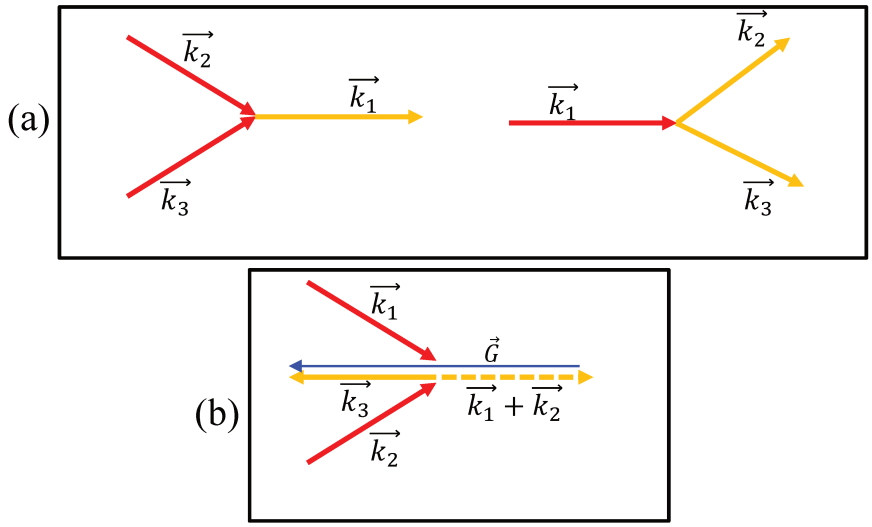

FIGURE 1.11 – Schéma représentatif des différents processus de collision intrinsèques à 3 phonons. Processus Normaux (a) et Processus Umklapp (b).

un phonon entre deux collisions. Il est déterminé par l'interaction entre les différents mécanismes de diffusion [Hol63]. Lorsque le LPM des phonons est plus petit que les dimensions du matériau, l'énergie thermique diffuse dans le solide cristallin et la densité du flux thermique est contrôlé par la loi de Fourier [Inc90] :

$$\overrightarrow{q} = -\kappa . \overrightarrow{\nabla} T, \tag{1.27}$$

où q représente la densité du flux d'énergie thermique au sein d'un solide, $\overrightarrow{\nabla} T$ est le gradient de température imposé et κ est la conductivité thermique. La détermination exacte de la conductivité thermique n'est pas si simple, mais plusieurs modèles théoriques ont été proposés afin d'étudier l'impact des différents processus de diffusion sur la conductivité thermique en fonction de la température. Une théorie plus sophistiquée repose sur la résolution de l'équation intégrale de Boltzmann en prenant en compte toutes les branches de dispersion des phonons dans le solide [Zim60]. Callaway [Cal59] et Holland [Hol63] ont suggéré une méthode pour déterminer la conductivité thermique à partir de la résolution de l'équation de Boltzmann dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation. Une autre approche pour le calcul de la conductivité thermique consiste à utiliser la méthode de Green-Kubo [Sri90] développée dans le cadre de la statistique quantique. Une définition très simple de la conductivité thermique est celle obtenue à

partir de la théorie cinétique des gaz appliquée aux phonons à une température donnée :

$$\kappa = \frac{1}{3} C_V v l = \frac{1}{3} C_V v^2 \tau, \tag{1.28}$$

où C_V est la chaleur spécifique, v est la vitesse moyenne de groupe des phonons, l est le LPM et τ est le temps moyen entre deux collisions, appelé aussi durée de vie ou temps de relaxation du phonon [Kit96].
La démonstration de ce résultat est reportée dans l'annexe A.

La validité de l'équation (1.28) trouve plus de justification à basses températures. Dans cette gamme de température, la dispersion du spectre des phonons peut être négligée. Stoner et Maris [Sto93b] ont suggéré une amélioration du modèle cinétique en prenant en compte l'effet de dispersion qui se manifeste aux hautes températures. En tenant compte des effets liés à la polarisation et à la température, la relation (1.29) donne la formule générale de la conductivité thermique [Zim60] :

$$\kappa = \frac{\hbar}{8\pi^3} \sum_j \int \omega_j(k) v_j^2(k) \tau_j(k) \left(\frac{\partial f\left(\omega_j(k)\right)}{\partial T} \right) dk^3, \tag{1.29}$$

où $v_j(k)$ est la vitesse de groupe du phonon de polarisation j et de vecteur d'onde k, $\omega_j(k)$ est sa fréquence, $\tau_j(k)$ est sa durée de vie et $f\left(\omega_j(k)\right)$ est la fonction de distribution des phonons.
La mesure de la conductivité thermique en fonction de la température permet d'identifier le mécanisme de diffusion dominant, comme l'illustre la Figure 1.12. D'après cette figure, nous constatons qu'il y a trois différents régimes du mécanisme de diffusion dominant selon la température dans le matériau. La dépendance du mécanisme de diffusion des phonons dominants en température peut s'expliquer par la densité spectrale des phonons et par la loi du déplacement de Wien du rayonnement du corps noir appliquée aux phonons [CLT98]. D'après cette loi, la longueur d'onde des phonons dominants diminue quand la température augmente et peut s'exprimer par la formule [CLT98] :

$$\lambda_{Dom}(T) = a \frac{\theta_D}{T}, \tag{1.30}$$

où a est le paramètre de maille du réseau cristallin. Aux basses températures, la longueur

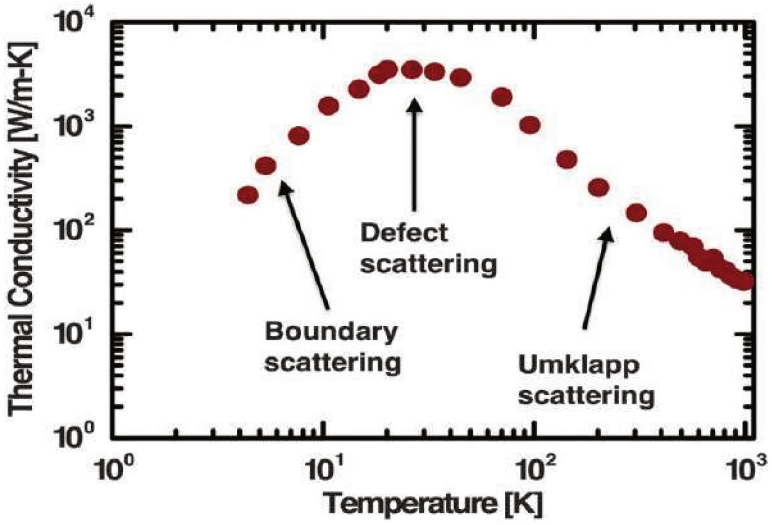

FIGURE 1.12 – La variation de la conductivité thermique en fonction de la température dépend du comportement du mécanisme de diffusion dominant selon la température dans un cristal de Silicium. Tiré de la référence [Kim15].

d'onde des phonons dominants est très grande, alors la diffusion est dominée par les effets d'interfaces. Lorsque la température commence à croître, la longueur d'onde des phonons dominants diminue et le processus de diffusion des phonons par les défauts du cristal devient important. Pour des températures très élevées, proches de la température de Debye, la longueur d'onde des phonons est très faible et tous les modes sont excités. Alors, les processus anharmoniques Umklapp deviennent les plus dominants.

La Figure 1.12 montre le comportement de la conductivité thermique en fonction de la température. La théorie cinétique (1.28) ne peut pas expliquer le comportement de la conductivité thermique en fonction du mécanisme de diffusion dominant suivant la gamme de température. A très basse température, la conductivité thermique est dominée par les effets d'interfaces et augmente avec la température proportionnellement à C, donc varie en T^3 [Che05a]. Lorsque la température augmente, les effets des imperfections du cristal (défauts) deviennent de même ordre que les effets d'interfaces et la conductivité thermique passe par un maximum dont l'amplitude et la position dépendent des dimensions et des défauts du cristal. De plus, pour des températures proches ou supérieures à la température de Debye, les processus Umklapp dont leur probabilité augmente exponentiellement avec la température, deviennent les plus dominants et la conductivité thermique passe d'une loi exponentielle à une loi en T^{-1}. A chacun de ces mécanismes de diffusion mentionnés ci-dessus est associé un temps de

relaxation individuel. En tenant compte des différents mécanismes tout en supposant qu'ils sont indépendants les uns des autres, on peut définir un temps de relaxation total à l'aide de la règle de Matthiessen [Dam04] :

$$\tau\left(\omega,s,T\right)^{-1}=\tau_{F,s}(\omega)^{-1}+\tau_{I}(\omega)^{-1}+\tau_{\mathrm{N}}\left(\omega,s,T\right)^{-1}+\tau_{\mathrm{U}}\left(\omega,s,T\right)^{-1}, \tag{1.31}$$

où $\tau_{F,s}(\omega)$, $\tau_{I}(\omega)$, $\tau_{\mathrm{N}}\left(\omega,s,T\right)$ et $\tau_{\mathrm{U}}\left(\omega,s,T\right)$ sont respectivement les temps de relaxation associés aux collisions avec les bords, avec les impuretés, avec les processus Normaux et avec les processus Umklapp. Il est important de noter que la chaleur spécifique C_V est constante à des températures très élevées (typiquement supérieures à θ_D). En effet, en hautes températures, la conductivité thermique est influencée seulement par le temps de relaxation τ [Hol63].

1.4 Réduction de la conductivité thermique

1.4.1 Les couches minces

La compréhension des propriétés thermiques des solides cristallins à basse dimensionnalité préoccupe plusieurs équipes de recherches depuis des décennies. La question qui se pose est : que se passe t-il dans les milieux nanostructurés ? Nous avons vu dans la section précédente que lorsque les dimensions du système sont beaucoup plus grandes que le LPM des phonons ($L \gg l$), la loi de Fourier est valide pour décrire la conduction thermique. L'énergie thermique est véhiculée de la région chaude vers la région froide via les phonons (dans le cas des semi-conducteurs). Durant ce processus de conduction, les phonons subissent beaucoup de collisions, notamment entre eux, ce régime est dit diffusif [Figure 1.13 (a)]. Par contre dans le cas où le LPM est très supérieur à la dimension caractéristique du système ($L \ll l$), les collisions entre les phonons sont très rares et les collisions avec les bords deviennent plus dominantes. Les phonons transportent la chaleurs par des sauts balistiques de la zone chaude à la zone froide. Dans ce cas, on ne peut parler de conduction et la loi de Fourier n'est, par conséquent, plus applicable, comme le montre la Figure 1.13 (b). Dans cette situation, la densité du flux de chaleur

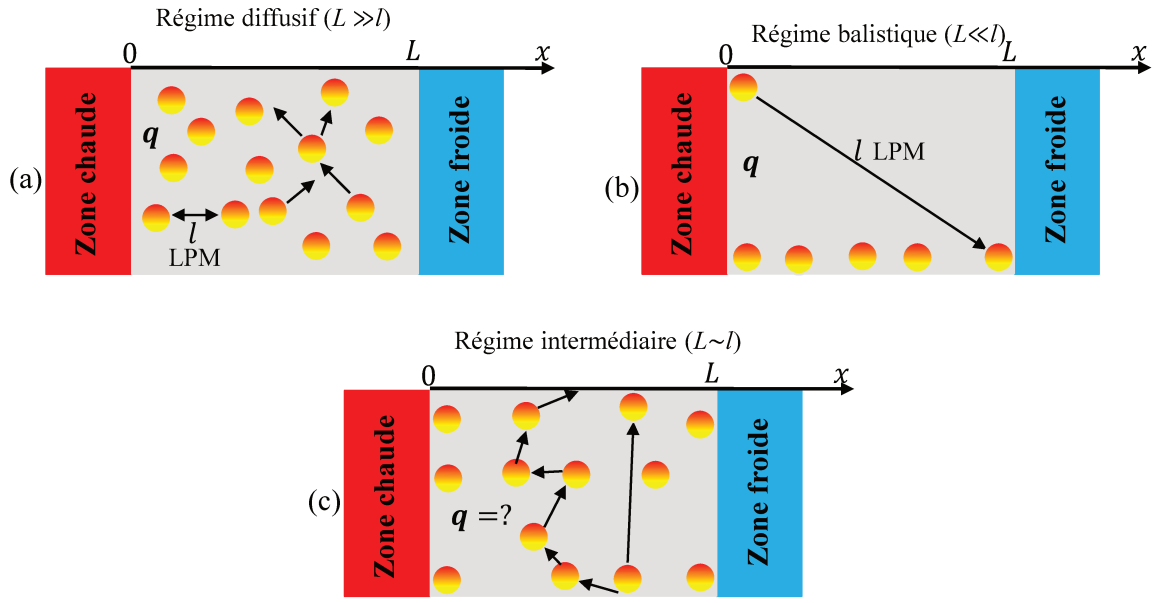

FIGURE 1.13 – Schéma d'un régime de transport diffusif (a), balistique (b) et intermédiaire (c) des porteurs de chaleur. Dans le régime diffusif, les porteurs de chaleur subissent des collisions avant de traverser le système. Par contre dans le régime balistique, les collions des porteurs se font essentiellement avec les bords du système. Les flèches noires représentent les trajectoires des phonons après leurs collisions avec les autres phonons ou avec les interfaces.

peut être calculé à partir de la loi de Stefan-Boltzmann [Swa89 ; Ash12] :

$$q = \sigma(T_1^4 - T_2^4), \tag{1.32}$$

où σ désigne l'analogue de la constante de Stefan-Boltzmann pour les phonons.

Etant donné que le LPM des phonons peut aller de quelques nanomètres aux dizaines de microns à température ambiante pour différents matériaux semi-conducteurs [voir tableau 1.1], le flux thermique est déterminé par une combinaison du régime diffusif et du régime balistique, comme illustré sur la Figure 1.13 (c). L'équation de transport de Boltzmann (ETB) sera alors appliquée pour traiter le transport des phonons dans les systèmes nanométriques [Che05a ; Che97]. Cette équation sera traitée en détail dans la dernière section de ce chapitre. La Figure 1.13 montre les trois régimes de transport des phonons en fonction de l'épaisseur du système et du LPM des phonons.

En outre, lorsque les dimensions du système sont du même ordre de grandeur ou inférieures au LPM des phonons, la conductivité thermique n'est plus une propriété intrinsèque du solide mais dépend fortement de ses dimensions caractéristiques [Figure 1.14]. En 1930, Casimir fut le premier à expliquer les effets de taille de l'échantillon sur la

TABLEAU 1.1 – Valeurs du LPM des phonons à température ambiante [Che98].

Semi-conducteur	Modèle	l (nm)
Si	Debye	40.9
	Dispersion	260.4
Ge	Debye	27.5
	Dispersion	198.6
GaAs	Debye	20.8
	Dispersion	145.3
AlAs	Debye	37.7
	Dispersion	236.4

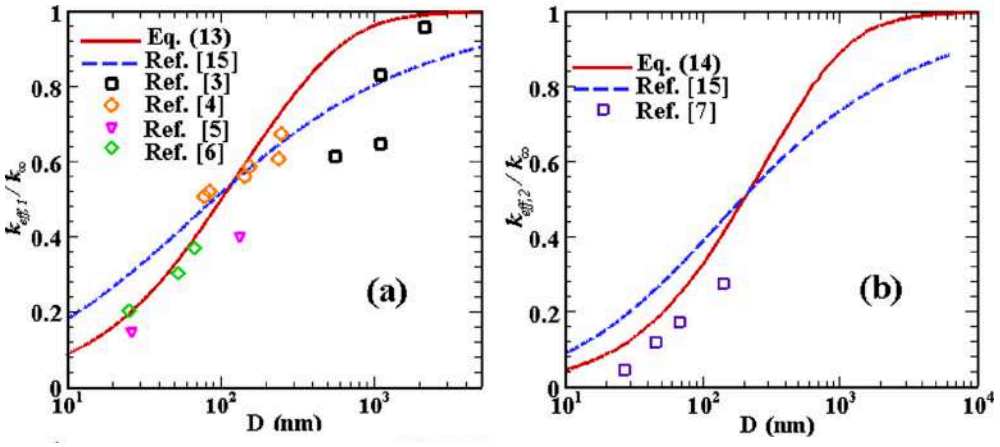

FIGURE 1.14 – La variation de la conductivité thermique des films (a) et nanofils (b) de Si en fonction de leur dimension caractéristique (épaisseur des films et diamètre des fils). La conductivité thermique est normalisée par celle de Si massif (κ_{bulk}=130 W/m.K). Tiré de la référence [Ma12].

conductivité thermique. Dans les systèmes de petite taille, seule la diffusion des phonons par les bords est en mesure de limiter le transport thermique, amenant à une conductivité thermique très faible [Cah02], notamment dans le régime balistique. Cela peut s'expliquer par le fait que dans le régime balistique, les phonons subissent très peu d'interactions afin de traverser directement de la zone chaude vers la zone froide [Figure 1.13 (b)]. En plus de l'effet de taille, différents mécanismes de diffusion des phonons (impureté, dislocation, imperfection) peuvent intervenir pour influencer de manière remarquable la conductivité thermique. La compréhension précise et quantitative de l'impact de tel ou tel mécanisme sur la conductivité thermique est une tache difficile [Cah03].

1.4.2 Les multi-couches et les super-réseaux semi-conducteurs

Un super-réseau est un empilement périodique formé par la répétition de deux matériaux différents constituant une série de bicouches. On peut aussi avoir des super-réseaux avec le même matériau, mais deux dopages différents. Ces bicouches sont caractérisées par une période qui peut aller de quelques nanomètres à quelques micromètres [Yu05]. Les technologies de fabrication (MBE, LPE,MOCVD) permettent de bien contrôler ce type de structure qui a des propriétés thermiques totalement différentes de celles des milieux massifs. Ces systèmes nanostructurés ont été largement utilisés dans différents domaines d'applications, notamment en microélectronique, photonique, télécommunications et thermoélectricité [Cah14 ; Cah02].

La recherche d'amélioration de la performance des modules thermoélectriques exige des matériaux de faible conductivité thermique. Dans les matériaux massifs, la plus faible conductivité thermique est celle des alliages, où la diffusion des phonons par les défauts devient dominante. Le transport de chaleur dans des matériaux de basse dimensionnalité permet de dominer cette barrière de l'alliage pour atteindre des valeurs de conductivité thermique encore plus basses et plus adéquates pour les applications microélectroniques. La performance thermoélectrique est quantifiée via le facteur de mérite $ZT = S^2\sigma T/\kappa$, où S est le coefficient de Seebeck et σ est la conductivité électrique. Plus ZT est grand, plus la performance thermoélectrique est meilleure. Actuellement, les super-réseaux à base de semi-conducteurs permettent d'avoir des valeurs élevées du facteur de mérite ZT. Par exemple, un facteur de mérite de 2.4 a été mesuré à température ambiante pour des super-réseaux de type p Bi_2Te_3/Sb_2Te_3 [Ven01] [Figure 1.15]. Ce résultat est deux fois et demi plus grand que celui du Bi_2Te_3 massif. Cette augmentation du facteur de mérite pour les super-réseaux est due essentiellement à la réduction de la conductivité thermique. L'étude de la réduction de la conductivité thermique dans différents types de super-réseaux a fait l'objet de plusieurs travaux de recherche. [Ven00 ; Yao87 ; Hux02b ; Lee97b ; BT99]. De grandes avancées on été réalisées dans la compréhension et l'explication de l'origine liée à cette réduction, néanmoins, beaucoup de travail reste à faire afin de tout comprendre de façon claire et pércise.

Dans ces structures, on parle d'une conductivité thermique effective en tenant compte des effets d'interfaces, de l'aspect ondulatoire des phonons et du repliement du spectre

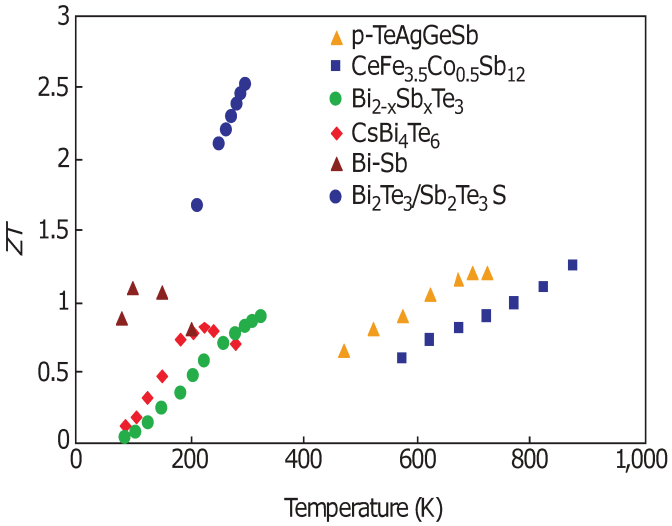

FIGURE 1.15 – Comportement du facteur de mérite ZT en fonction de la température pour différents super-réseaux. Tiré de la référence [Ven01].

de dispersion [Che98]. L'un des effets les plus importants affectant la conductivité thermique est la présence de résistance thermique d'interface. Cette résistance joue le rôle d'une barrière thermique qui résiste au transfert du flux de chaleur à travers une interface. La compréhension de cette résistance d'interface est indispensable. Une étude détaillée sur la résistance d'interface sera présentée dans la section suivante.

1.5 Résistance thermique d'interface

Cette section a pour objectif de faire un rappel sur le transport de chaleur à l'interface solide/solide, et en particulier sur la résistance d'interface. Nous commençons tout d'abord cette partie par un bref historique, puis nous présentons en détail les hypothèses des deux principaux modèles théoriques AMM (Acoustic Mismatch Model : selon son acronyme en anglais) ou modèle de la désadaptation acoutisque et DMM (Diffuse Mismatch Model : selon son acronyme en anglais) ou modèle de la désadaptation diffuse estimant la probabilité de transmission des phonons à travers une interface. Ces deux modèles permettent de prédire la valeur de cette résistance d'interface. Nous discutons ensuite les limites des deux modèles AMM et DMM. Enfin nous terminons cette section par introduire quelques techniques de mesure de la résistance d'interface.

Lorsque deux matériaux 1 et 2 sont mis en contact, la chaleur diffusant à l'interface

rencontre une barrière thermique, appelée résistance thermique d'interface (RTI).
Cette résistance s'exprime en fonction de la différence de température entre les deux cotés de l'interface et du flux de chaleur traversant celle-ci. Ceci se traduit mathématiquement par la relation :

$$R = \frac{\Delta T}{q} = \frac{1}{G}, \tag{1.33}$$

où q désigne la densité du flux thermique traversant l'interface, ΔT est la différence de température entre les deux cotés de l'interface et G est la conductance thermique d'interface.
La résistance thermique interfaciale entre un solide et l'hélium fluide a été observée pour la première fois par le physicien Piotr Kapitza en 1941 [Kap41]. Ce phénomène est issu de la discontinuité de la température à l'interface, comme le montre la Figure 1.16.
En 1952, Khalatnikov [Kha52] a développé une théorie de désadaptation acoustique

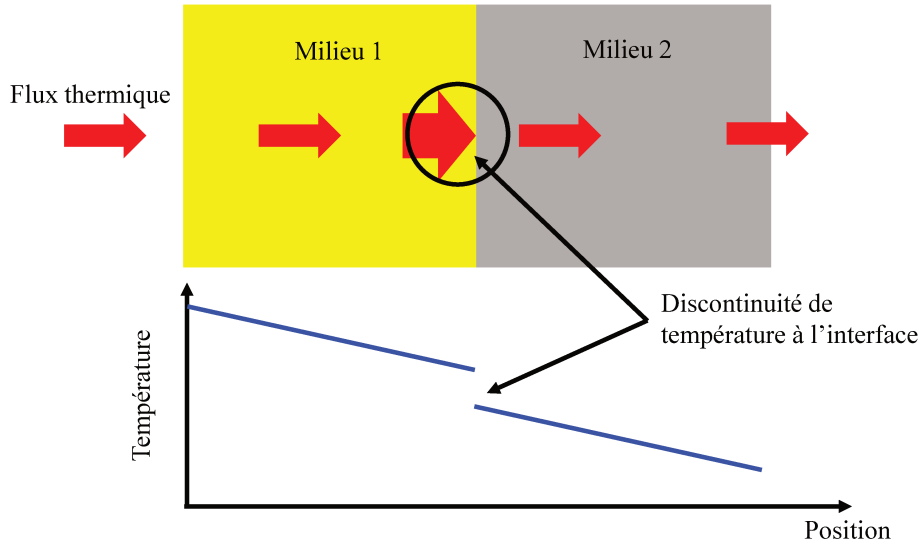

FIGURE 1.16 – Représentation schématique de deux milieux qui sont mis en contact ainsi que les sauts de température qui se produisent au niveau de l'interface.

(AMM) à partir du modèle de Debye et des résultats d'élasticité classique. Dans cette théorie, les phonons sont traités comme des ondes planes qui se propagent au sein d'un milieu sans tenir compte de sa structure atomique. Cette hypothèse est valide seulement pour des phonons ayant des longueurs d'onde supérieures à la distance interatomique. L'impédance acoustique ($Z = \rho c v$) de chacun des milieux a été prise en considération. Par ailleurs, l'hélium a une faible impédance acoustique par rapport aux milieux solides, les phonons provenant de l'hélium sont réfléchis pour des angles supérieurs à 10°

et transmis pour des angles inférieurs. Par conséquent, seule une portion de phonons incidents est transmise, conduisant à une barrière thermique. Cette barrière est appelée résistance de Kapitza pour une interface fluide-solide [Kap41].
En 1959, Little [Lit59] a généralisé le modèle AMM pour des interfaces solide-solide en prenant en compte la présence des ondes transverses dans les deux milieux solides. Ce modèle suppose implicitement que le processus de diffusion acoustique ne se produit pas à l'interface. En 1987, Swartz et al. [Swa87] ont mesuré la RTI entre des films métalliques et des substrats diélectriques pour des températures comprises entre 0.6 et 200 K. Les valeurs de la RTI calculées à partir du modèle AMM sont en bon accord avec les résultats expérimentaux pour des températures inférieures à 30 K et pour des interfaces planes. Dans le cas où les interfaces sont rugueuses, les phonons sont dispersés d'une façon diffuse à l'interface. Swartz et Pohl [Swa89] ont proposé un modèle de dispersion par diffusion (DMM) afin d'étudier l'influence de la rugosité d'interface sur la RTI.
Ces deux modèles font figures de références jusqu'à aujourd'hui. Dans les deux modèles, le flux thermique transmis à travers l'interface s'exprime sous la même forme. La différence majeure entre ces deux modèles est que dans le AMM, la direction de propagation du phonon incident est contrôlée par des lois similaires à celles de Snell-Descartes pour les ondes électromagnétiques en optique géométrique tandis que dans le DMM, le phonon incident perd la mémoire de ses caractéristiques initiales (polarisation, mode, vecteur d'onde, fréquence et direction de propagation) au niveau de l'interface. Cela signifie que la probabilité de transmission à travers l'interface s'écrit différemment dans les deux modèles.

1.5.1 Prédiction théorique de la RTI

Modéle AMM

Lorsqu'un phonon entre en choc avec l'interface, il peut être transmis ou réfléchi de façon spéculaire ou diffuse selon la qualité de l'interface (lisse ou rugueuse). D'un point de vue statistique, une partie de l'énergie des phonons est transmise d'un milieu à l'autre ; le coefficient de transmission du phonon est noté $t_{1\to2}$. En général ; ce coefficient de transmission dépend de la température, du mode du phonon j, de son vecteur d'onde k ainsi que de sa fréquence ω. Le calcul de $t_{1\to2}$ à travers une interface n'est pas toujours

un problème facile. Pour simplifier, on suppose que les deux cotés de l'interface sont isotropes et le coefficient de transmission devrait être indépendant de la température. Dans le cadre de l'approximation de Debye (vitesse de groupe constante pour chaque polarisation), le modèle AMM donne un coefficient de transmission tel que [Lit59 ; Phe98] :

$$t_{12} = \frac{4\rho_1\rho_2 v_{l1}^2 cos\theta_1 cos\theta_2}{(\rho_1 v_{l1} cos\theta_2 + \rho_2 v_{l2} cos\theta_1)^2}, \tag{1.34a}$$

$$t_{21} = \frac{4\rho_1\rho_2 v_{l2}^2 cos\theta_1 cos\theta_2}{(\rho_1 v_{l1} cos\theta_2 + \rho_2 v_{l2} cos\theta_1)^2}, \tag{1.34b}$$

où les indices 1 et 2 représentent les milieux 1 et 2 respectivement, ρ est la densité, v_l est la vitesse longitudinale des phonons et θ est l'angle polaire d'incidence des deux côtés de l'interface comme illustré sur la Figure 1.17. La diffusion est supposée élastique une fois que la fréquence des phonons est conservée. Il est donc possible d'exprimer une relation similaire à celle de Snell-Descartes pour l'optique géométrique, les indices optiques seront remplacés par l'inverse des vitesses de propagation des phonons longitudinaux dans les deux milieux, on a alors :

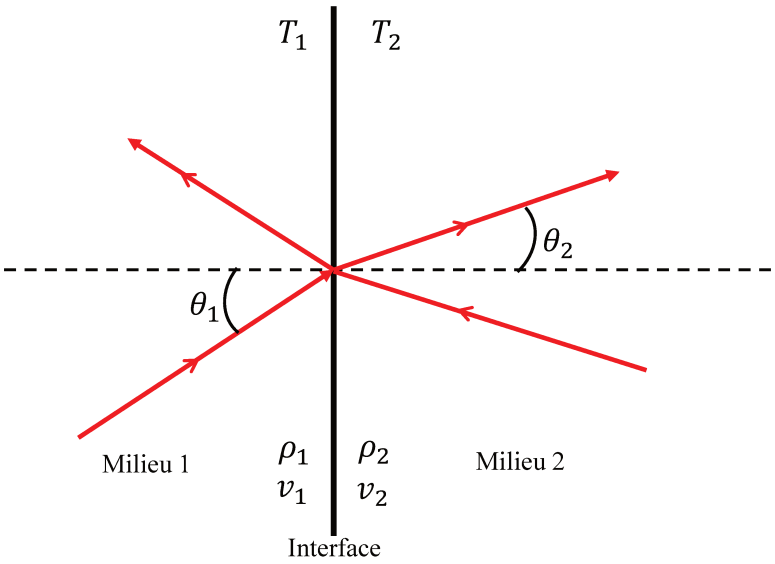

FIGURE 1.17 – Schéma de transmission d'un phonon sur une interface entre deux milieux semi-infinis ayant des propriétés différentes.

$$\frac{1}{v_{l1}} sin\theta_1 = \frac{1}{v_{l2}} sin\theta_2, \tag{1.35}$$

où θ_1 est l'angle d'incidence par rapport à la normale à l'interface et θ_2 l'angle de transmission. Comme dans le cas des ondes électromagnétiques, un angle critique peut exister en fonction du rapport des vitesses de propagation $\theta_c = sin^{-1}(v_{l2}/v_{l1})$, conduisant à une réflexion totale. Si on suppose que les phonons dans chaque milieu sont à l'équilibre thermodynamique, le flux thermique incident du milieu 1 vers le milieu 2 peut s'exprimer sous la forme [Swa89] :

$$Q_{1\to2} = \frac{1}{4\pi}\int_0^{\omega_m}\int_0^{2\pi}\int_0^{\pi/2} \hbar\omega v_{l1} f_1(\omega, T_1) t_{12} D(\omega) cos\theta_1 sin\theta_1 d\theta_1 d\phi_1 d\omega. \tag{1.36}$$

Si le milieu est isotope, on a :

$$Q_{1\to2} = \frac{1}{4}\frac{\Gamma_{12}^{\mathrm{AMM}}}{v_{l1}^2}\int_0^{\omega_m} \hbar\omega v_{l1}^3 f_1(\omega, T_1) D(\omega) d\omega, \tag{1.37}$$

où

$$\Gamma_{12}^{\mathrm{AMM}} = \frac{1}{\pi}\int_0^{2\pi}\int_0^{\pi/2} t_{12} cos\theta_1 sin\theta_1 d\theta_1 d\phi = 2\int_0^{\pi/2} t_{12} cos\theta_1 sin\theta_1 d\theta_1, \tag{1.38}$$

soit

$$\frac{\Gamma_{21}^{\mathrm{AMM}}}{v_{l2}^2} = 2\int_0^{\theta_c} \frac{t_{21}}{v_{l2}^2} cos\theta_2 sin\theta_2 d\theta_2 = \frac{\Gamma_{12}^{\mathrm{AMM}}}{v_{l1}^2}. \tag{1.39}$$

Selon le modèle de Debye, la densité d'états est donnée par la relation :

$$\frac{1}{4\pi} v_l \hbar\omega f(\omega, T) D(\omega) = \frac{\hbar\omega^3}{8\pi^3 v_l^2 (e^{\hbar\omega/k_B T} - 1)}. \tag{1.40}$$

Par conséquent, le flux thermique net qui traverse l'interface est donné par :

$$Q_x = Q_{1\to2} - Q_{2\to1} = \frac{1}{4}\frac{\Gamma_{12}^{\mathrm{AMM}}}{v_{l1}^2}\int_0^{\omega_m} \hbar\omega \left[v_{l1}^3 f_1(\omega, T_1) - v_{l2}^3 f_2(\omega, T_2)\right] D(\omega) d\omega. \tag{1.41}$$

il vient :

$$Q_x = \frac{\Gamma_{12}^{\mathrm{AMM}}}{v_{l1}^2}\frac{k_B^4}{8\pi^2\hbar^3}\left(T_1^4\int_0^{x_{m1}} \frac{x^3 dx}{e^x - 1} - T_2^4\int_0^{x_{m2}} \frac{x^3 dx}{e^x - 1}\right), \tag{1.42}$$

où $x_{mi} = \hbar\omega/k_B T_i$. A basse température, on obtient

$$Q_x = \frac{\Gamma_{12}^{\mathrm{AMM}}}{v_{l1}^2}\frac{\pi^2 k_B^4}{120\hbar^3}(T_1^4 - T_2^4). \tag{1.43}$$

Après avoir remplacé v_{l1}^{-2} par $\sum_j v_{j1}^{-2} = v_{l1}^{-2} + 2v_{t1}^{-2}$, en tenant compte d'un mode longitudinal et 2 modes transversaux, soit :

$$Q_x = \frac{\pi^2 k_B^4}{120\hbar^3}(T_1^4 - T_2^4)\Gamma_{12}^{\mathrm{AMM}} \sum_j v_{j1}^{-2}. \tag{1.44}$$

A l'équilibre thermique $T_1 = T_2$ et en supposant que $T_1 - T_2 \to 0$, la RTI est définie par la formule :

$$R_{\mathrm{AMM}} = \frac{T_1 - T_2}{Q_x} = \frac{30\hbar^3 T^{-3}}{\pi^2 k_B^4 \Gamma_{12}^{\mathrm{AMM}} \sum_j v_{j1}^{-2}}. \tag{1.45}$$

Modéle DMM

Ce modèle suppose que tous les phonons qui entrent en interaction avec l'interface perdent la mémoire de leurs caractéristiques initiales (fréquence, mode, vecteur d'onde), ce qui est le cas pour les interfaces rugueuses. La probabilité de transmission est indépendante de l'angle d'incidence et les lois de Snell-Descartes ne sont plus valides. Par application du principe de la balance détaillée (detailled balance principle [Swa89]), les probabilités de transmission Γ_{12} et Γ_{21} sont données par :

$$\Gamma_{12}^{\mathrm{DMM}} + \Gamma_{21}^{\mathrm{DMM}} = 1. \tag{1.46}$$

A partir de l'équation (1.39) et en prenant en compte les trois modes de polarisation, on a :

$$\Gamma_{12}^{\mathrm{DMM}} \sum_j v_{j1}^{-2} = \Gamma_{21}^{\mathrm{DMM}} \sum_j v_{j2}^{-2}. \tag{1.47}$$

La solution des équations (1.46) et (1.47) donne :

$$\Gamma_{12}^{\mathrm{DMM}} = \frac{\sum_j v_{j2}^{-2}}{\sum_j v_{j1}^{-2} + \sum_j v_{j2}^{-2}}. \tag{1.48}$$

Donc, le flux de chaleur net qui traverse l'interface est donné par :

$$Q_x = \frac{k_B^4}{8\pi^2\hbar^3}\left(T_1^4 \int_0^{x_{m1}} \frac{x^3 dx}{e^x - 1} - T_2^4 \int_0^{x_{m2}} \frac{x^3 dx}{e^x - 1}\right) \Gamma_{12}^{\mathrm{DMM}} \sum_j v_{j1}^{-2}. \tag{1.49}$$

Dans la limite où la différence $T_1 - T_2 \to 0$, l'équation (1.49) prend la forme suivante :

$$R_{\mathrm{DMM}} = \frac{T_1 - T_2}{Q_x} = \frac{60\hbar^3 T^{-3}}{\pi^2 k_B^4 \Gamma_{12}^{\mathrm{DMM}} \sum_j v_{j1}^{-2}}. \tag{1.50}$$

Il est important de noter que l'équation (1.50) est valide uniquement pour des petites variations de température ($\Delta T = T_1 - T_2 \to 0$) et le coefficient de transmission devient indépendant de la fréquence. A l'inverse, lorsque les variations de température sont très importantes, la dépendance fréquentielle doit être prise en compte et l'équation (1.50) ne peut pas s'appliquer. Les deux modèles AMM et DMM prédisent une résistance d'interface qui suit une loi en T^{-3} ((1.45) et (1.50)). Le choix du meilleur modèle est basé sur le rapport λ_{Dom}/Λ entre la longueur d'onde dominante du phonon λ_{Dom} et le paramètre de la rugosité Λ d'interface [Phe98]. Lorsque $\lambda_{Dom} \gg \Lambda$, le modèle AMM est appliqué pour calculer la probabilité de transmission. Au contraire, dans le cas où $\lambda_{Dom} \ll \Lambda$, le choix se porte sur le modèle DMM. La longueur d'onde dominante du phonon est donnée par l'équation (1.30).

1.5.2 Les limites des modèles AMM et DMM

Les deux modèles AMM et DMM ont été largement utilisés pour modéliser la RTI à très basse température. Dans ce régime de température, les phonons de faible fréquence sont fortement présents. On peut donc supposer que la relation de dispersion des phonons est presque linéaire (approximation de Debye). Swartz [Swa89] a calculé la RTI de nombreuses interfaces en se basant sur les deux théories AMM et DMM dans le cadre de l'approximation de Debye. Il a trouvé que pour les interfaces hélium/solide, les deux théories donnent des valeurs différentes de RTI. Le modèle AMM donne une limite supérieure, tandis que le DMM donne une limite inférieure [Figure 1.18]. Pour les interfaces solide/solide, les valeurs de la RTI obtenues en utilisant l'AMM sont en bon accord avec ceux du DMM et le pourcentage d'erreur entre eux ne dépasse pas 30% [Figure 1.19]. Généralement, les résultats des deux modèles ne sont pas éloignés des valeurs expérimentales [Swa89]. Ces deux modèles supposent que le transport de chaleur est dû principalement aux phonons, qui est valable seulement pour les interfaces diélectrique/diélectrique. Par contre dans le cas où les interfaces sont de type métal/diélectrique, le couplage électron-phonon [Sto93a ; Maj04 ; Lye06] doit être pris en

compte pour expliquer les résultats expérimentaux. En plus de l'effet du couplage électron-phonon, la nature du régime de transport (diffusif ou balistique) doit être prise en considération. Les deux modèles AMM et DMM considèrent que la RTI est une propriété intrinsèque à l'interface. Cela est en désaccord souvent avec les résultats obtenus par dynamique moléculaire [Yan15] qui montrent que la RTI n'est plus une propriété intrinsèque à l'interface, mais dépend à la fois du couplage électron-phonon et de la taille (régime du transport). Gang Chen [Che98] a amélioré les deux modèles AMM et DMM à partir de l'ETB en prenant en compte l'impact du régime de transport des phonons dans les super-réseaux. L'AMM et le DMM constituent deux théories assez simplistes qui ne rendent pas compte de toute la physique au niveau de l'interface et par conséquent, ne prennent pas en considération les différents facteurs pouvant intervenir dans la RTI (rugosité, température, régime de transport des phonon, couplage électron-phonon). La RTI représente en effet un réel défi scientifique encore non complètement résolu. Dans

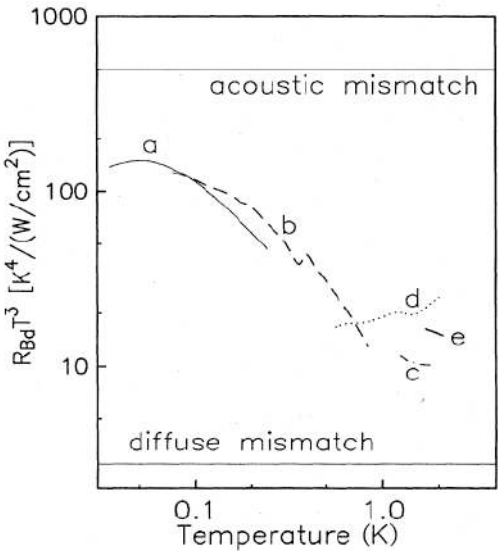

FIGURE 1.18 – Mesures de la RTI entre le cuivre et l'hélium-4 superfluide multipliée par T^3. Tiré de la référence [Swa89].

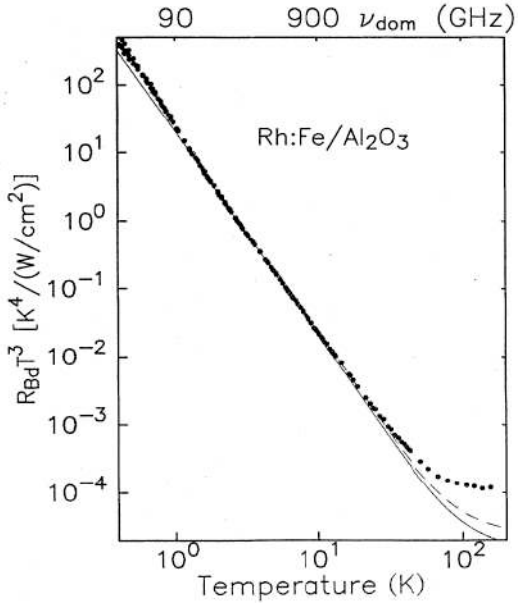

FIGURE 1.19 – Résistance thermique d'interface entre Rh :Fe et Al_2O_3 multipliée par T^3. Les points correspondent aux mesures expérimentales. La courbe continue est obtenue par le modèle AMM et la courbe en pointillé est obtenue par le modèle DMM. Tiré de la référence [Swa89].

le cadre de cette thèse, nous développons une approche pour le calcul indirect de la RTI en régime stationnaire et dynamique en se basant sur la solution analytique de l'ETB, puis nous étudions l'effet du régime de transport des phonons ainsi que la fréquence de

modulation sur la RTI. Pour plus de détails, le lecteur est invité à consulter les chapitres 2 et 3 de ce présent travail.

1.5.3 Techniques photothermiques

Malgré les progrès rapides effectués dans le domaine de caractérisation et de simulation des transferts thermiques aux petites échelles, les valeurs théoriques de la conductivité thermique et de la RTI dans différentes configurations présentent des écarts par rapport aux résultats expérimentaux. Comme nous l'avons mentionné dans la section 1.5, plusieurs paramètres interviennent pour limiter le transfert thermique à l'interface et qui ne sont pas encore complètement expliqués.
Ainsi, pour une interface métal/diélectrique les couplages électron-phonon, phonon-phonon ainsi que l'impact de l'état des surfaces (aspérité, rugosité, interdiffusion) sont très importants, mais l'intégration de l'ensemble de ces paramètres dans les modélisations est difficile. Il est nécessaire de prendre en considération le couplage électron-phonon ainsi que l'estimation de leur état de surface afin d'étudier la résistance interfaciale. Il existe plusieurs techniques expérimentales pour la caractérisation des interfaces. La technique la plus utilisée est la thermoréflectance résolue en temps [Cah03 ; Cah02 ; Sto93a ; Sch08], mais d'autres méthodes sont aussi adaptées comme la radiométrie photothermique infrarouge [Dje08 ; Fis98 ; Bod05], la spectroscopie photoacoustique [Hu08 ; Wan01], la thermoréflectance résolue en fréquence [Zhu10 ; Xu07] ou encore la technique 3ω [Cah87 ; Koh09]. Dans ce manuscrit, on s'intéresse à quatre techniques de caractérisation à savoir la méthode 3ω, la thermoréflectance résolue en temps, la radiométrie photothermique et la spectroscopie photoacoustique.

Technique 3ω

En 1990, Cahill [Cah90] a introduit la méthode 3ω pour mesurer la conductivité thermique des films minces diélectriques [Lee97a ; Cah94]. Cette technique a été utilisée également pour déterminer la conductivité thermique des super-réseaux Si_n/Ge_m [Lee97b ; BT00 ; Cha03] ainsi que les super-réseaux Si/SiGe [Hux02b ; Hux02a]. Cette technique repose sur l'utilisation d'une couche fine métallique (platine ou argent) afin d'exciter et de mesurer la variation de température à la surface de l'échantillon. Cette couche métallique sert à soumettre l'échantillon à une excitation thermique et de détecter les variations de

température sur un certain domaine de la surface du système diélectrique [Figure 1.20]. Un courant sinusoïdal de fréquence ω est injecté dans la bande métallique, ce qui pro-

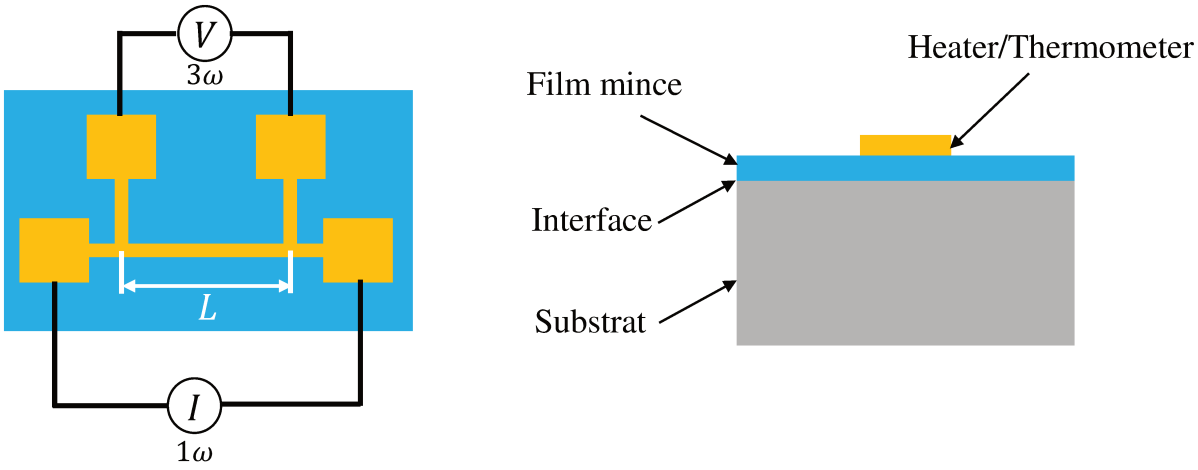

FIGURE 1.20 – Schéma de principe du montage expérimental de la technique 3ω.

voque par effet de Joule une source de chaleur à la fréquence 2ω. Il est généralement reconnu que l'évolution de la résistivité électrique en fonction de la température suit une loi linéaire dans le cas des métaux. Dans la technique 3ω, les changements de température présentent des oscillations, les variations de la résistance du corps métallique seront aussi oscillatoires. Par conséquent, la tension aux bornes de la résistance présente une composante oscillante avec une fréquence 3ω (d'où le nom de la technique) et dont la mesure via une détection synchrone permet de déterminer les variations de température. La comparaison des variations de température mesurées avec les prédictions théoriques donne accès aux propriétés thermiques du système étudié, particulièrement sa conductivité thermique et la RTI au niveau de l'interface métal/échantillon diélectrique. Pour plus de détails sur cette technique de caractérisation, le lecteur est invité à consulter les travaux de thèse de S. Gauthier [Gau12].

Thermoréflectance résolue en temps

La thermoréflectance ou la réflectométrie résolue en temps est une technique optique sans contact. Cette technique initialement utilisée par C.A. Paddock et G.L. Eesley [Pad86], fut la principale méthode de mesure de la diffusivité thermique des films métalliques minces. Cette méthode permet d'étudier la réponse d'un échantillon lorsque la surface de celui-ci est soumise à une perturbation ultra brève (0.1 ps) en mesurant les changements de sa réflectivité induits par le chauffage. Dans le cadre d'une mesure en

thermoréflectance, le changement de la réflectivité est supposé proportionnel au changement de la température à la surface de l'échantillon. Le principe de la technique thermoréflectance résolue en temps est schématisé sur la Figure. 1.21. Un laser (Ti-saphir) génère une impulsion laser de 0.15 ps à une longueur d'onde 800 nm avec une fréquence de répétition de 80 MHz [Xia17]. L'intensité par impulsion est approximativement 15-20

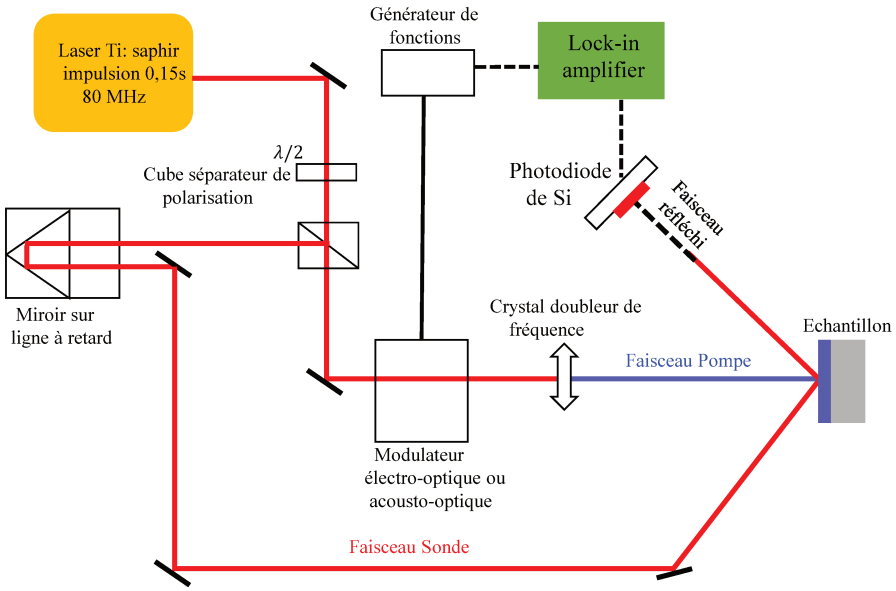

FIGURE 1.21 – Schéma de principe du montage expérimental de la méthode de thermoréflectance résolue en temps.

nJ. Le faisceau laser est séparé en deux parties : Le premier dit "pompe" passe dans un modulateur électro-optique ou acousto-optique et un cristal doubleur de fréquence pour doubler sa fréquence, afin de le distinguer du faisceau sonde. Un deuxième faisceau dit "sonde", non modulé, est retardé par rapport au faisceau pompe par une ligne à retard, et sera réfléchi par la surface de l'échantillon puis renvoyé vers une photodiode pour mesurer le changement relatif de réflectivité. Lorsqu'il s'agit d'un échantillon diélectrique, ce dernier est couvert par une fine couche métallique qui joue le rôle d'un transducteur au niveau duquel se produit l'absorption du faisceau de pompe et la génération de la chaleur qui est transmise par la suite à la couche sous-jacente de l'échantillon diélectrique à étudier. Dans ce cas, la technique de thermoreflectance résolue en temps permet d'avoir accès à la conductivité thermique de l'échantillon diélectrique ainsi que la RTI au niveau de l'interface avec le transducteur métallique [Cah14].

Dans le cadre de cette thèse, nous avons développé des méthodes théoriques pour la détermination des propriétés thermiques des matériaux semi-conducteurs et diélectriques

en se basant sur la résolution analytique de l'ETB ainsi que sur l'équation de la chaleur de Fourier. Ces propriétés peuvent être extraites par une simple comparaison entre les résultats théoriques et les mesures expérimentales.

Radiométrie photothermique

La radiométrie photothermique est une technique non destructive et sans contact. Cette méthode initialement utilisée par Cowan [Cow61] et pleinement développée par Nordal en 1979 [Nor79] pour mesurer la diffusivité thermique à la surface d'un film mince. Dans cette technique, la surface du matériau est irradiée à l'aide d'un faisceau laser, ce qui génère une élévation locale de température au voisinage du point de contact laser, puis l'analyse du rayonnement infrarouge émis par la surface de l'échantillon se fait à l'aide d'un détecteur infrarouge [Figure 1.22]. La réponse photothermique ainsi obtenue dépend des propriétés thermophysiques de l'échantillon (conductivité thermique, diffusivité thermique...), ce qui permet de les caractériser en ajustant les données expérimentales aux résultats théoriques [BL96 ; BL01 ; PJ86 ; BL03 ; Dep05]. L'analyse d'ampli-

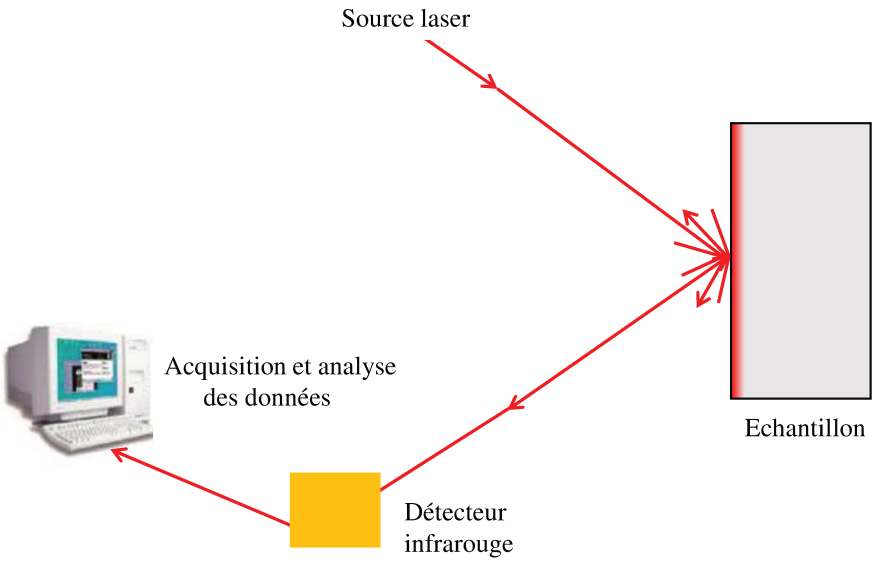

FIGURE 1.22 – Schéma de principe du montage expérimental de radiométrie photothermique infrarouge.

tude et de phase par rapport au signal de la source d'excitation permet de déterminer les propriétés thermique ainsi que l'épaisseur de l'échantillon [Dje08].

Technique photoacoustique

Le terme « photoacoustique » se réfère à l'échauffement d'un gaz avec un rayonnement optique modulé en intensité (à la longueur d'onde d'absorption de ce gaz), il y a création des ondes acoustiques détectées par le microphone. Cette méthode photoacoustique a été largement utilisée pour la caractérisation de la diffusivité thermique des échantillons [Per87 ; AG94], leur application au calcul de la conductivité thermique [Ast10 ; Man91] et du coefficient de dilatation thermique [Bed15] augmente, puisque cette technique est non destructive et simple par rapport aux autres méthodes transitoires [Wan13 ; Šoš16]. Rosencwaig et Gersho ont introduit pour la première fois le phénomène photoacoustique via un modèle mathématique connue sous le nom de Modèle RG [Ros76]. Hu et al. et Wang et al. ont développé des modèles mathématiques pour l'effet photoacoustique en considérant la RTI entre les couches ainsi que l'absorption de la lumière dans les structures multicouches [Hu08 ; Wan01]. La Figure 1.23 représente un schéma explicatif du montage expérimental. Une source laser d'intensité modulée

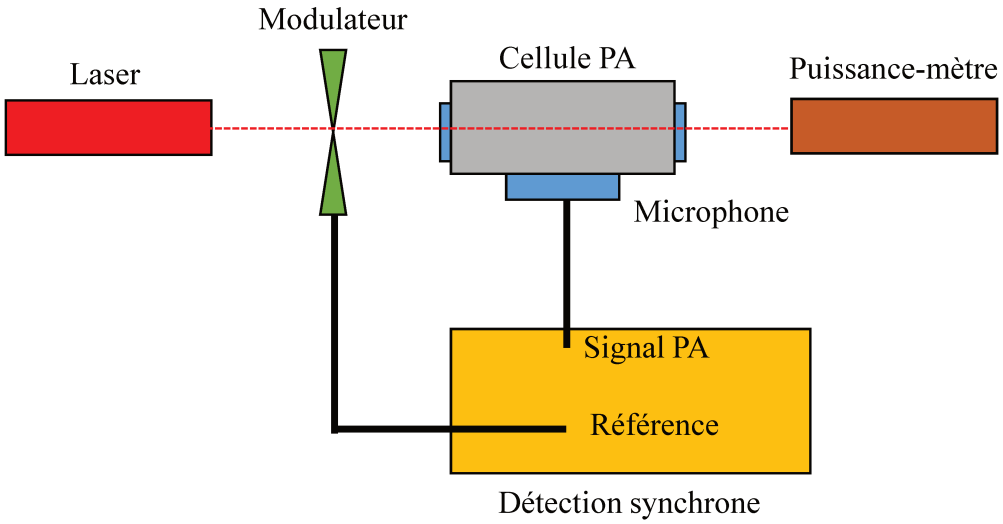

FIGURE 1.23 – Schéma de principe du montage expérimental de spectroscopie photoacoustique (PA).

permet d'irradier les molécules de gaz présentes dans la cellule photoacoustique (PA). Le signal détecté par le microphone est amplifié et synchronisé à la fréquence de modulation du laser via l'amplificateur à détection synchrone. Un puissance-mètre est alors

utilisé pour mesurer la puissance optique moyenne de la source laser. Le principal avantage de cette technique par rapport aux autres méthodes étant de générer le signal photoacoustique lorsque le laser interagit avec les molécules de gaz. En absence de gaz, le phénomène d'absorption ne peut pas avoir lieu, et donc pas de génération d'onde de pression détectée par le microphone. Pour plus de détails sur cette technique de caractérisation, le lecteur est invité à consulter les travaux de thèse de J. Rouxel [Rou15].

1.6 Equation de transport de Boltzmann

Les lois macroscopiques décrivant le transfert de chaleur ne peuvent pas s'appliquer aux petites échelles d'espace et de temps [Maz01]. Dans de tels cas, la loi conventionnelle de Fourier devient difficilement justifiable puisque la relation de proportionnalité entre la densité du flux de chaleur et le gradient de température devient non valide. Le transport d'énergie thermique se réalise à travers des paquets d'ondes phononiques et la modélisation du transfert de chaleur à l'échelle microscopique revient à modéliser des paquets d'onde de phonons en déplacement [PG10]. Les effets ondulatoires peuvent être négligés dans le cas où la longueur d'onde dominante des phonons est inférieure ou du même ordre que le paramètre de maille du solide cristallin. Cette hypothèse est supposée généralement vérifiée puisqu'elle constitue l'hypothèse de base justifiant de pouvoir traiter les phonons comme des quasi-particules [Ash12 ; Zim60]. La description du transport de chaleur peut être réalisée à partir de l'ETB [Che98]. Cette équation a été utilisée pour la première fois pour traiter le comportement d'un gaz de particules diluées [Che05a]. Toutefois, de nombreuses études ont montré que l'ETB est valide pour différent types de particules tel que les électrons, les ions, les phonons, etc. Même à l'échelle microscopique l'ETB continue d'être valide. Cette équation généralise les lois macroscopiques décrivant les phénomènes de transport comme la loi d'Ohm, la loi de Fourier et la loi de Fick. Dans la limite macroscopique, l'ETB reproduit ces lois macroscopiques [Maj93].

L'ETB fait intervenir la fonction de distribution $f(r, p, t)$ (nombre de particules par unité de volume) hors équilibre. Avec r est la position, p est la quantité de mouvement du porteur d'énergie ($p = mv$, où m est la masse et v est la vitesse de la particule à l'instant t). La fonction de distribution $f(r, p, t)$ dépend de sept variables : trois pour la position, trois

pour la quantité de mouvement, et un pour le temps. l'ETB décrit l'évolution temporelle de $f(r,p,t)$ d'un ensemble de particules initialement dans un état hors équilibre et qui tendent vers un état d'équilibre. La forme générale de l'ETB est donnée par l'expression :

$$\frac{\partial f_{\omega,p}(t,r)}{\partial t} + v_g \cdot \nabla_r f_{\omega,p}(t,r) + F \cdot \nabla_j f_{\omega,p}(t,r) = \left(\frac{\partial f_{\omega,p}(t,r)}{\partial t}\right)_{\text{collisions}}, \tag{1.51}$$

Avec :

$-\partial f_{\omega,p}(t,r)/\partial t$ représente la variation temporelle de la fonction de distribution $f_{\omega,p}(t,r)$.

$-v_g \cdot \nabla_r f_{\omega,p}(t,r)$ est un terme dit advectif qui décrit le transport des particules dans le système.

$-F \cdot \nabla_j f_{\omega,p}(t,r)$ représente la force exercée sur les particules résultant d'une excitation extérieure. Ce terme est nul lorsqu'il s'agit de phonons.

– Le terme de droite de l'équation (1.51) est appelé terme de collision qui décrit tous les mécanismes pouvant influencer et modifier la fonction de distribution. Pour les phonons, ce terme prend en compte tous les mécanismes de diffusion/collision, comme les défauts, les impuretés, les interfaces, le couplage électron-phonon, et tous les autres processus de collisions impliquant un phonon, en particulier les collisions phonon−phonon. Ce dernier type de collision domine les autres processus dans le cas des semi-conducteurs d'une manière générale à température ambiante [Che05b]. Le terme de collision est généralement difficile à exprimer. La résolution exacte de l'ETB n'existe pas, et représente un grand défi mathématique encore non résolu [Des10].

1.6.1 Résolution de l'ETB pour les phonons

La difficulté majeure dans la résolution de l'ETB provient du fait que le terme de collision n'est pas linéaire [Ash12]. La solution analytique de l'ETB reste très approximative et majoritairement implicite pour certains cas particuliers. Ainsi, de nombreuses méthodes numériques ont été développées tout au long des années pour trouver les solutions adaptées au transfert de phonons et pour extraire, après un traitement spécifique, des informations sur les propriétés thermiques des matériaux.

1.6.2 Méthodes de résolution

Le modèle cinétique a été défini dans la section 1.3.3. Ce modèle, qui est assez précis dans le cas de milieux massifs, sert à identifier le temps collisionnel effectif des porteurs d'énergie. Ce temps collisionnel dépend des collisions considérées dans la structure (interaction phonon-phonon, phonon-défauts etc). Ce modèle date depuis les années 50 avec les travaux de Klemens [Kle58] Herring [Her54], Callaway [Cal59] et Holland [Hol64 ; Hol63]. A partir des travaux menées par Asen-Palmer et al. [AP97], Morelli [Mor02], Terris [Ter09b], Chantrenne [Cha05], Maldovan [Mal11] ainsi que par Ezzahri et Joulain [Ezz12], le modèle cinétique a été amélioré. Ces modèles sont semi-analytiques et sont très difficiles à appliquer sur des configurations complexes. Avec le développement des outils informatiques, l'ETB a été résolue numériquement pour les phonons [Lac05 ; Jac88 ; Pér14]. Dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation, l'ETB se réduit en une équation différentielle linéaire aux dérivées partielles. Dans la littérature, il existe deux approches pour la résolution de l'ETB, l'une déterministe, l'autre statistique. Dans la première approche, l'ETB peut s'écrire sous une forme équivalente à celle de l'équation du transfert radiatif (ETR). Le passage de l'ETB à l'ETR est basé sur le changement de variable qui permet de passer de la résolution de la fonction de distribution à l'intensité des phonons. En transfert radiatif, l'ETR a été résolue en utilisant les techniques classiques telles que la méthode des ordonnées discrètes (MOD) ou la méthode des volumes finies (MVF). En 1993, Majumdar [Maj93] a résolu l'ETR à l'aide de la MOD en supposant un milieu gris. En 2009, Teris [Ter09b] a utilisé également cette méthode afin d'étudier l'effet de dispersion sur la conductivité thermique. La seconde approche repose sur l'utilisation d'un grand nombre aléatoire des porteurs d'énergie pour évaluer le comportement d'un ensemble statistique, elle est dite de Monte Carlo. Peterson [Pet94] fut le premier à résoudre l'ETB dans le cadre de l'approximation de Debye en utilisant la méthode de Monte Carlo. En 2001, Mazumder et Majumdar [Maz01] ont étudié les effets des relations de dispersion complètes ainsi que les polarisations sur le transport des phonons dans un film de silicium. Lacroix [Lac05] et Chen [Che05b] ont pris en compte des temps de collision. En 2011, Wang [Won11] a développé une approche permettant de calculer la température et le flux de chaleur dans des structures de silicium avec génération de chaleur interne. La méthode Monte Carlo est donc très

utile pour décrire le transport de chaleur dans différentes géométries telles que nanofils [Lac05], nanofilms [Won11] ou encore les couplages électron-phonon dans le silicium massif [Mus03]. D'autres techniques, comme la dynamique moléculaire [Ter09a] ou les méthodes ab-initio [Cha13 ; Esf11 ; Ter09a] permettent aussi d'étudier le transport des phonons dans les systèmes nanostructurés. Ces approches numériques modélisent avec une bonne précision le transport thermique, mais exigent cependant un temps de calcul relativement long. Comme mentionné au début de cette section, l'ETB possède une solution analytique dans un nombre de cas limité. Plus récemment, Ordonez-Miranda et al [OM15] ont obtenu une solution analytique explicite de l'ETB dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation et du spectre gris à l'aide de la MOD. Cette solution reproduit les résultats numériques avec une excellente précision (99.9%). Pour plus de détails, le lecteur est invité à consulter la publication d'Ordonez-Miranda et al. [OM15]. Cette solution analytique est au cœur du présent travail.

1.6.3 Approximation du temps de relaxation

Une des approximations les plus utilisées pour résoudre l'ETB est de se mettre dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation [Car61]. Cette approximation sert à exprimer le membre de droite de (1.51) comme une petite variation de la fonction de distribution par rapport à son état d'équilibre pendant un temps moyen qui correspond au temps de relaxation effectif du système [Ash12]. Le terme de collision s'écrit dans ce cas sous la forme :

$$\left(\frac{\partial f_{\omega,p}(t,r)}{\partial t}\right)_{\text{collisions}} = \frac{f^0_{\omega,p}(T) - f_{\omega,p}(t,r)}{\tau(\omega,T)}, \tag{1.52}$$

où $f^0_{\omega,p}(T)$ représente la fonction de distribution à l'équilibre local et $\tau(\omega,T)$ est le temps de relaxation avec lequel le système retourne à son état d'équilibre.
L'ETB appliquée aux phonons prend la forme :

$$\frac{\partial f_{\omega,p}(t,r)}{\partial t} + v_g \cdot \nabla_r f_{\omega,p}(t,r) = \frac{f^0_{\omega,p}(T) - f_{\omega,p}(t,r)}{\tau(\omega,T)}, \tag{1.53}$$

Généralement, le temps de relaxation des phonons dépend de la fréquence et de la température. Afin de surmonter les difficultés mathématiques tout en préservant le contenu

physique du problème, nous supposons que le temps de relaxation est constant, cette hypothèse est appelée approximation du milieu gris. Le chapitre suivant présente la solution analytique de l'ETB en régime stationnaire dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation et du milieu gris afin de décrire la RTI entre deux couches diélectriques.

1.7 Conclusion

Dans ce chapitre de l'état de l'art, nous avons commencé par un rappel des outils de base de la physique des phonons qui permet de définir quelques concepts et de fournir le vocabulaire nécessaire à la compréhension du transport de chaleur dans les matériaux solides cristallins. Nous avons ensuite décrit le comportement du transfert thermique dans les milieux massifs, et en particulier dans les matériaux de basse dimensionnalité comme les films minces, les multicouches, et les super-réseaux. Nous avons discuté également les différents mécanismes susceptibles d'expliquer le comportement thermique de ces nanostructures, et la réduction de leur conductivité thermique en comparaison avec celle du milieu massif. Les principaux paramètres influençant cette propriété thermique ont été revus, en mettant particulièrement l'accent sur la RTI. Cette grandeur s'est avérée comme l'un des effets les plus importants affectant la conductivité thermique des systèmes nanostructurés. Nous avons introduit les deux principaux modèles AMM et DMM estimant la RTI. Nous avons discuté les limites de validité de chacun de ces deux modèles. Nous avons fait un bref rappel sur les techniques expérimentales permettant de mesurer les propriétés thermiques des matériaux, comme la conductivité thermique, la RTI et la diffusivité thermique. Nous avons enfin présenté l'ETB décrivant le transfert thermique dans les matériaux nanostructurés ainsi que ses méthodes de résolution.

Chapitre 2

Effet du régime du transport des phonons sur la résistance thermique d'interface

Sommaire

2.1 Introduction 47
2.2 Solution analytique de l'ETB dans l'approximation du temps de relaxation 47
2.2.1 Profil de température en régime stationnaire 56
2.2.2 Densité du flux de chaleur en régime stationnaire 59
2.3 Résistance thermique effective d'interface 60
2.3.1 Une couche déposée sur un substrat 60
2.3.2 Deux couches déposées sur un substrat 65
2.4 Conductivité thermique effective 70
2.4.1 Deux couches déposées sur un substrat 71
2.4.2 *N* couches déposées sur un substrat 76
2.5 Conclusion 79

2.1 Introduction

Nous avons vu dans le chapitre précédent que le transport de chaleur à l'interface suscite un grand intérêt au sein de la communauté scientifique[Che97; Cah03; Cah14; Tar16], et que de nombreuses études ont été menées afin de mieux comprendre la RTI. Cette grandeur est difficile à estimer et à contrôler en raison de plusieurs paramètres l'influençant (rugosité, pression, température, régime de transport, fréquence de modulation...) [Lit59; Swa87; Swa89; Che98; Xia18]. Nous nous intéressons ici à l'effet du régime de transport sur la RTI et sur la conductivité thermique en faisant appel à l'ETB appliquée aux phonons. Notre approche théorique sera basée sur la résolution analytique de l'ETB en régime stationnaire monodimensionnel. Nous présentons tout d'abord la solution analytique explicite de l'ETB pour le profil de température et pour le flux thermique dans un système multicouches, obtenue dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation et du spectre gris. Nous discutons ensuite les valeurs asymptotiques de la RTI dans les limites balistique et diffusive. Enfin, nous calculons la conductivité thermique effective d'un système multicouches en prenant en compte la RTI au niveau de l'interface entre deux couches adjacentes.

2.2 Solution analytique de l'ETB dans l'approximation du temps de relaxation

Ce chapitre reprend en partie l'article [Ala18a] pour l'aspect concernant la RTI en régime stationnaire. On considère un système diélectrique constitué de deux couches, où la couche d'épaisseur finie est réchauffée à la surface en $z = 0$ à l'aide d'un faisceau laser d'intensité modulée, comme illustré sur la Figure 2.1. Cette configuration représente l'un des systèmes les plus simples utilisés lors d'une expérience photothermique. La surface $z = 0$ est soumise à une excitation thermique de type :

$$q(z = 0, t) = q_0(1 + \cos(\omega t)) = q_0 \mathrm{Re}(1 + e^{j\omega t}), \tag{2.1}$$

où ω est la fréquence angulaire modulée, $2q_0$ est l'intensité moyenne du laser, t est le temps et $\mathrm{Re}(\xi)$ est la partie réelle de ξ. Lorsque la taille caractéristique du système est beaucoup plus grande que le LPM des phonons($L > l$), la loi de Fourier et l'équation de

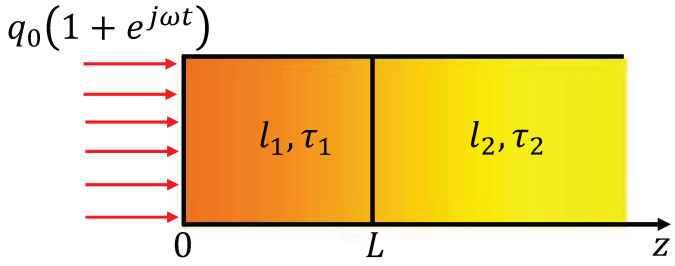

FIGURE 2.1 – Couche d'épaisseur L déposée sur un substrat semi-infini. l_i et τ_i $(i = 1, 2)$ désignent le LPM et le temps de relaxation de chaque couche, respectivement. L'excitation thermique est appliquée en $z = 0$.

conduction de la chaleur peuvent être utilisées pour modéliser la conduction thermique, ainsi que la conductivité thermique des milieux massifs [OM10b ; Zhu10]. Cependant, lorsque le LPM des phonons devient comparable ou supérieur à la taille caractéristique du système ($L < l$), les lois macroscopiques du transfert thermique ne peuvent pas s'appliquer [Che05a]. L'ETB est alors l'outil requis pour décrire le transport de phonons dans les matériaux solides diélectriques dès lors que ce transport devienne non-diffusif. De nombreux travaux ont été effectués dans le passé afin de résoudre cette équation pour le transport de phonons dans les micro/nanocouches diélectriques [Özı73 ; Maj93 ; Che98 ; Maz01 ; Che05a ; Hua15 ; OM15]. Toutefois, la résolution exacte reste très approximative et majoritairement implicite. Afin de résoudre l'ETB explicitement, nous supposons que le LPM et le temps de relaxation τ des phonons sont indépendants de la fréquence. Cette approximation, dite approximation du milieu gris, est valide lorsque le transport de phonons est majoritairement dominé par la diffusion des phonons sur les bords et sur les interfaces. Dans ce cas de figure, le processus de diffusion phonon-phonon est faiblement présent par rapport à la diffusion par les interfaces. Cela arrive quand les variations de la température sont très faibles ou lorsque les LPM et τ dépendent faiblement de la température [Özı73]. L'ETB peut s'écrire dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation en termes de l'intensité des phonons sous la forme [Maj93] :

$$I + \tau \frac{\partial I}{\partial t} + \mu l \frac{\partial I}{\partial z} = I_0, \tag{2.2}$$

où $\mu = cos(\theta)$ est le cosinus de l'angle entre la direction de propagation du phonon et l'axe $+z$, I est l'intensité totale du phonon et I_0 est l'intensité du phonon à l'équilibre. I_0

est définie comme la densité du flux de chaleur par unité d'angle solide [Maj93 ; Che98] :

$$I_0 = \frac{1}{4\pi}\int_0^{\nu_{max}} h\nu v f_0 D(\nu) d\nu, \tag{2.3}$$

où h est la constante de Planck, ν est la fréquence du phonon, v est la vitesse de groupe du phonon, f_0 est la distribution d'équilibre de Bose-Einstein et D est la densité d'états par unité de volume. L'intensité du phonon I est reliée à la fonction de distribution f via la relation (2.3) en faisant le changement $I_0 \to I$ et $f_0 \to f$. D'après le modèle de Debye, on peut facilement montrer que l'intensité I_0 est donnée par la formule [Che05a] :

$$I_0 = \frac{15\sigma T^4}{\pi^5}\int_0^{\Theta_D/T} \frac{x^3}{e^x - 1} dx, \tag{2.4}$$

où $\sigma = \pi^5 k_B^4 / \left(5h^3 v^2\right)$, k_B est la constante de Boltzmann, T est la température absolue et Θ_D désigne la température de Debye.

A basse température $(T \ll \Theta_D)$, l'expression (2.4) devient :

$$I_0 = \frac{\sigma}{\pi} T^4. \tag{2.5}$$

Cette expression a la même forme que celle de Stefan-Boltzmann pour le rayonnement électromagnétique.

A température suffisamment haute $T \gg \Theta_D$, l'équation (2.4) se simplifie à :

$$I_0 = \frac{15\sigma\Theta_D^4}{3\pi^5} T = \frac{\rho c v}{4\pi} T, \tag{2.6}$$

où ρ est la densité massique et c est la capacité calorifique à haute température. A partir des relations (2.5) et (2.6), on voit bien que l'intensité à l'équilibre I_0 est reliée au profil de température à haute température ou à basse température. Le calcul de l'intensité d'équilibre I_0 permet ainsi de déterminer directement le profil de température T. Comme mentionné ci-dessus, l'intensité I_0 est définie comme la densité du flux de chaleur par unité d'angle solide suivant une direction de propagation donnée même lorsque le système est hors équilibre thermodynamique local [Maj93]. Alors, le profil de température est bien défini non seulement dans le régime diffusif, mais aussi dans le régime balistique. Dans ce dernier régime, les phonons ne sont pas à l'équilibre thermodynamique

local. Ce nouveau concept de température sera utilisé par la suite. Une fois que l'ETB monodimensionnelle a été résolue pour l'intensité I ((2.2)), la densité du flux de chaleur q est donnée par [OM11] :

$$q(z,t) = 2\pi \int_{-1}^{+1} \mu I(z,t,\mu) d\mu. \tag{2.7}$$

D'après (2.1), la solution I de l'équation (2.2) peut s'écrire sous la forme suivante :

$$I(z,t,\mu) = I_s(z,\mu) + \mathrm{Re}[J(z,\mu)e^{j\omega t}], \tag{2.8}$$

où I_s et J sont les composantes stationnaire et modulée de I, respectivement. La composante stationnaire est due au premier terme de (2.1), tandis que la composante modulée est due au second terme de (2.1). Sachant que l'ETB (2.2) est une équation aux dérivées partielles linéaire, (2.8) exige que l'intensité à l'équilibre soit écrite sous la même forme que celle de I :

$$I_0(z,t) = I_{0s}(z) + \mathrm{Re}[J_0(z)e^{j\omega t}]. \tag{2.9}$$

D'après les équations (2.6) et (2.9), le profil de température est alors $T(z,t) = T(z) + \mathrm{Re}\left[\psi(z)e^{j\omega t}\right]$, avec $T(z)$ et $\psi(z)$ sont les composantes stationnaire et modulée de la température, respectivement.

En substituant les équations (2.8) et (2.9) dans (2.2), on obtient :

$$I_s + \mu \frac{\partial I_s}{\partial x} = I_{0s}, \tag{2.10a}$$

$$\chi J + \mu \frac{\partial J}{\partial x} = J_0, \tag{2.10b}$$

où $\chi = 1 + j\omega\tau$ et $x = z/l$ est la position adimensionnelle. A température ambiante, les valeurs typiques du temps de relaxation sont $\tau_i < 10^{-10}$ s pour un grand nombre de matériaux solides diélectriques [Che05a] d'une part ; d'autre part, les fréquences de modulation utilisées dans la pratique sont $\omega < 10^9$ rad/s [Cah14], ce qui conduit à $\omega\tau_i \ll 1$. Les profils de température et de la densité de flux de chaleur seront bien calculés en utilisant cette dernière condition. Dans ce chapitre, nous nous intéresserons seulement au transport thermique en régime stationnaire en résolvant (2.10a). La solution analytique de (2.10b) fait l'objet du chapitre 3.

La solution analytique de (2.10a) est donnée par :

$$I_s(x,\mu) = I_s(x_0,\mu)e^{(x_0-x)/\mu} + \frac{1}{\mu}\int_{\xi_1}^{\xi_2} I_{0s}(x')e^{(x'-x)/\mu}dx', \tag{2.11}$$

où x_0, ξ_1 et ξ_2 sont des constantes d'intégration. A cause de la rugosité de l'interface, le processus de diffusion des phonons par les interfaces prédomine les autres processus [Che05a] et nous limitons notre discussion à ce type de diffusion. Dans le cas de la diffusion diffuse à la surface et à l'interface, les intensités en $z = 0$ et $z = L$ sont uniformes et, par conséquent, les coefficients $I_s(x_0,\mu)$ devraient être indépendants de la direction μ.

Afin de simplifier l'écriture de conditions aux limites, il est nécessaire de décomposer (2.11) en deux parties, soit une pour chaque couche du système de la Figure 2.1. Alors, on peut écrire :

$$\begin{cases} I_{s1}^{+}(x,\mu) = \dfrac{A_1^{+}}{\pi}e^{-x/\mu} + \dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_0^x I_{0s1}(x')e^{(x'-x)/\mu}dx', & \text{(2.12a)} \\ I_{s1}^{-}(x,\mu) = \dfrac{A_1^{-}}{\pi}e^{(\lambda-x)/\mu} - \dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_x^{\lambda} I_{0s1}(x')e^{(x'-x)/\mu}dx', & \text{(2.12b)} \\ I_{s2}^{+}(x,\mu) = \dfrac{A_2^{+}}{\pi}e^{-x/\mu} + \dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_0^x I_{0s2}(x')e^{(x'-x)/\mu}dx', & \text{(2.12c)} \\ I_{s2}^{-}(x,\mu) = -\dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_x^{\infty} I_{0s2}(x')e^{(x'-x)/\mu}dx', & \text{(2.12d)} \end{cases}$$

où $\lambda = L/l_1$ et l'indice $+(-)$ correspond à $0 < \mu < 1(-1 < \mu < 0)$, comme illustré sur la Figure 2.2. Les constantes $A_n^{\pm}(A_2^{-} = 0)$ sont déterminées en écrivant les conditions aux limites. Le profil de température est calculé par application du principe de la conser-

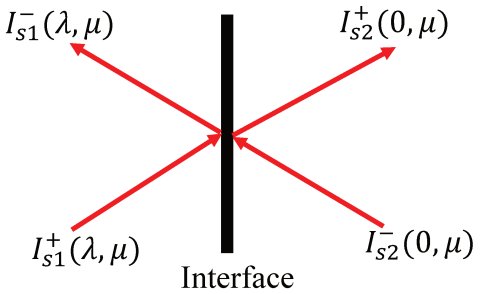

FIGURE 2.2 – Intensité de phonons réfléchie et transmise à l'interface $z_1 = L(z_2 = 0)$.

vation d'énergie. Ce principe peut s'exprimer en termes d'intensités de phonons I_0 et I,

comme suit [Maj93] :

$$2I_0 = \int_{-1}^{1} I d\mu. \tag{2.13}$$

Pour les composantes stationnaires des intensités I_0 et I, (2.13) s'écrit sous la forme :

$$2I_{0s}(x) = \int_0^1 \left[I_s^+(x,\mu) + I_s^-(x,-\mu) \right] d\mu. \tag{2.14}$$

En substituant (2.12a)−(2.12d) dans (2.14), on obtient :

$$I_{0s1}(x) = \frac{1}{2}\left(\frac{A_1^+}{\pi} E_2(x) + \frac{A_1^-}{\pi} E_2(\lambda - x) + \int_0^{\lambda} I_{0s1}(x') E_1|x - x'| dx' \right), \tag{2.15a}$$

$$I_{0s2}(x) = \frac{1}{2}\left(\frac{A_2^+}{\pi} E_2(x) + \int_0^{\infty} I_{0s2}(x') E_1|x - x'| dx' \right), \tag{2.15b}$$

où $E_n(x)$ est la fonction exponentielle intégrale d'ordre n définie par [Che98] :

$$E_n(t) = \int_0^1 \mu^{n-2} e^{-t/\mu} d\mu\,. \tag{2.16}$$

En tenant compte des équations (2.7) et (2.8), la densité de flux de chaleur en régime stationnaire est donnée par la formule suivante :

$$q(x,t) = 2\pi \int_0^1 \left(I_s^+(x,\mu) - I_s^-(x,-\mu) \right) \mu d\mu. \tag{2.17}$$

L'incorporation des équations (2.12a)−(2.12d) dans (2.17) donne la densité de flux de chaleur dans chaque couche de la Figure 2.1, on obtient :

$$q_1(x,t) = 2\left(A_1^+ E_3(x) - A_1^- E_3(\lambda - x) - \pi \frac{d}{dx} \int_0^{\lambda} I_{0s1}(x') E_3|x - x'| dx' \right), \tag{2.18a}$$

$$q_2(x,t) = 2\left(A_2^+ E_3(x) - \pi \frac{d}{dx} \int_0^{\infty} I_{0s2}(x') E_3|x - x'| dx' \right). \tag{2.18b}$$

Comme mentionné ci-dessus, les constantes $A_n^{\pm} (A_2^- = 0)$ sont calculées en imposant la condition de conservation d'énergie à l'interface. A partir de l'équation (2.7) et de la Figure 2.2, on peut facilement montrer que :

$$\int_0^1 I_{s1}^-(\lambda,-\mu)\mu d\mu = R_{12} \int_0^1 I_{s1}^+(\lambda,\mu)\mu d\mu + T_{21} \int_0^1 I_{s2}^-(0,-\mu)\mu d\mu, \tag{2.19a}$$

$$\int_0^1 I_{s2}^+(0,\mu)\mu d\mu = R_{21} \int_0^1 I_{s2}^-(0,-\mu)\mu d\mu + T_{12} \int_0^1 I_{s1}^+(\lambda,\mu)\mu d\mu, \tag{2.19b}$$

où R_{ij} et T_{ij} sont les coefficients de réflexion et de transmission des phonons venant de la i-ème couche vers la j-ème couche, respectivement. Pour les interfaces rugueuses, ce qui est le cas dans la plupart des cas pratiques [Lit59 ; Swa89], les phonons perdent la mémoire de leur provenance (direction de propagation, polarisation...) et ces deux coefficients deviennent indépendants de la direction de propagation, et peuvent être estimés par [Che98] :

$$T_{12} = R_{21} = 1 - T_{21} = \frac{\rho_2 c_2 v_2}{\rho_2 c_2 v_2 + \rho_1 c_1 v_1}. \tag{2.20}$$

En appliquant le principe de conservation de l'énergie à la surface éclairée $z = 0$, on écrit :

$$2\pi \int_0^1 I_{s1}^+(0,\mu)\mu d\mu = 2\pi \int_0^1 I_{s1}^-(0,-\mu)\mu d\mu + q_0. \tag{2.21}$$

Cette expression est un cas particulier de (2.17). La combinaison des équations (2.12a)−(2.12d), (2.19a)−(2.19b) avec (2.21), permet d'avoir :

$$\begin{cases} \dfrac{A_2^+}{T_{12}} = \dfrac{A_1^-}{R_{12}}, & \text{(2.22a)} \\ \dfrac{A_2^+}{2T_{12}} = A_1^+ E_3(\lambda) + \displaystyle\int_0^\lambda \pi I_{0s1}(x) E_2(\lambda - x)\, dx + \int_0^\infty \pi I_{0s2}(x) E_2(x) dx, & \text{(2.22b)} \\ A_1^+ = q_0 + 2A_1^- E_3(\lambda) + 2\displaystyle\int_0^\lambda \pi I_{0s1}(x) E_2(x)\, dx. & \text{(2.22c)} \end{cases}$$

D'après les équations (2.22a)−(2.22c), (2.15a)−(2.15b) et (2.18a)−(2.18b), on obtient via (2.4), les profils de température et de la densité de flux de chaleur monodimensionnel dans les deux couches de la Figure 2.1. Afin de faciliter l'écriture des relations (2.15a)−(2.15b) et (2.18a)−(2.18b), on peut les normaliser comme suit :

$$\begin{cases} 2U_1(x) = E_2(x) + \displaystyle\int_0^\lambda U_1(x') E_1(|x - x'|) dx', & \text{(2.23a)} \\ 2U_2(x) = E_2(x) + \displaystyle\int_0^\infty U_2(x') E_1(|x - x'|) dx', & \text{(2.23b)} \\ \dfrac{Q_{s1}}{2} = E_3(x) - \dfrac{d}{dx}\displaystyle\int_0^\lambda U_1(x') E_3(|x - x'|) dx', & \text{(2.23c)} \\ \dfrac{Q_{s2}}{2} = E_3(x) - \dfrac{d}{dx}\displaystyle\int_0^\infty U_2(x') E_3(|x - x'|) dx', & \text{(2.23d)} \end{cases}$$

où

$$U_n(x) = \frac{\pi I_{0sn}(x) - A_n^-}{A_n^+ - A_n^-}\,, \tag{2.24a}$$

$$Q_{sn}(x) = \frac{q_{sn}(x)}{A_n^+ - A_n^-}\,. \tag{2.24b}$$

Après avoir simplifié les calculs, on peut montrer que les densités des flux normalisés Q_1 et Q_2 sont constantes et indépendantes de la position x ($q_{s1} = q_{s2} = q_0$) [Figure 2.3]. Ce comportement est en bon accord avec le principe de conservation d'énergie. Dans ce qui suit, nous allons résoudre analytiquement les équations (2.23a) et (2.23b) afin de déterminer l'expression explicite pour le profil de température. En effet, au 1er ordre de

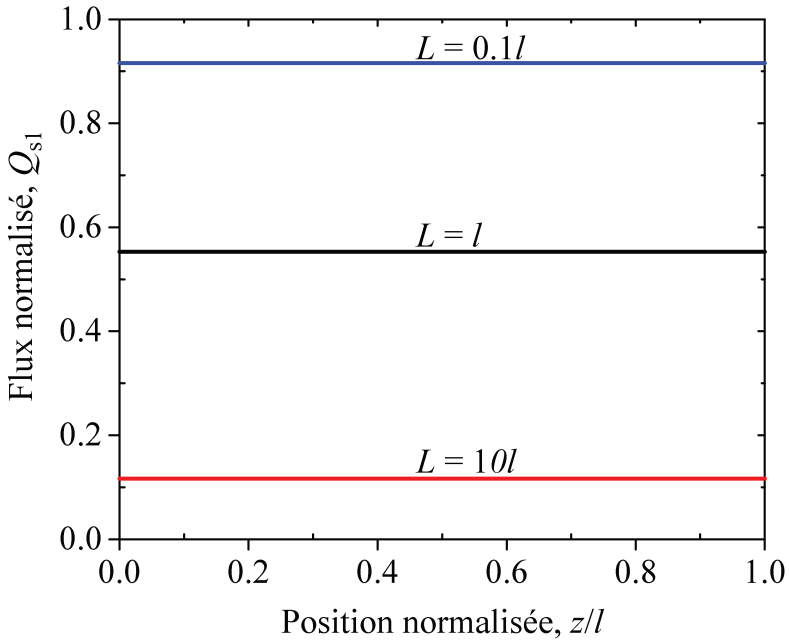

FIGURE 2.3 – Variation de la densité de flux normalisé Q_{s1} en fonction de la position normalisée $x = z/l$ pour trois épaisseurs différentes.

l'approximation, la solution analytique $U_n^{(1)}(x) = U_n(x)$ des équations (2.23a)– (2.23d) peut être écrite sous la forme :

$$U_1^{(1)}(x) = 1 - \alpha[x + \beta(\lambda) + \gamma(\lambda)(p(x) - p(\lambda - x))]\,, \tag{2.25a}$$

$$\alpha(\lambda) = \frac{3}{4}Q_{s1} = \frac{1}{\lambda + 2\beta(\lambda)}\,, \tag{2.25b}$$

$$U_2^{(1)} = 1 - \frac{3}{4}Q_{s2}(x + p(x))\,, \tag{2.25c}$$

où β et γ sont deux paramètres que l'on peut déterminer en évaluant les équations (2.23a)− (2.23c) en $x = 0$ puis en comparant avec les équations (2.25a) et (2.25b). Les résultats finaux sont :

$$\beta(\lambda) = \frac{\xi(1/3 + E_4(\lambda)) + C_2(1/2 - E_3(\lambda))}{C_2(1 - E_2(\lambda)) + \xi(1/2 + E_3(\lambda))}, \tag{2.26a}$$

$$\gamma(\lambda) = \frac{(1 - E_2(\lambda))(1/3 + E_4(\lambda)) - (1/4 - E_3^2(\lambda))}{C_2(1 - E_2(\lambda)) + \xi(1/2 + E_3(\lambda))}, \tag{2.26b}$$

où :

$\xi = C_1 + 2(p(\lambda) - p(0))$,

$C_n = \int_0^\lambda (p(x) - p(\lambda - x))E_n(x)dx$

et $p(x) = A + BE_2(x) + CE_3(x)$ avec A = 0.71047, B = -0.25082 et C = 0.23526.

A partir des équations (2.24a), (2.24b) et (2.25b), (2.25a) et (2.25c) peuvent se mettre sous la forme :

$$A_1^+ - \pi I_{0s1}(x) = \frac{3q_0}{4}\left[x + \beta(\lambda) + \gamma(\lambda)\left(p\left(x\right) - p\left(\lambda - x\right)\right)\right], \tag{2.27a}$$

$$A_2^+ - \pi I_{0s2}(x) = \frac{3q_0}{4}\left(x + p\left(x\right)\right). \tag{2.27b}$$

Compte tenu du fait que l'intensité des phonons à l'équilibre est reliée à la température, nous avons $A_1^+ = \rho_1 c_1 v_1 T_0/4$ avec T_0 est la température imposée en surface $z = 0$. L'expression de A_2^+ peut être facilement calculée à partir de (2.22a) et (2.25b), on obtient :

$$A_2^+ = \frac{T_{12}}{R_{12}}\left(A_1^+ - \frac{3q_0}{4}\left(\lambda + 2\beta(\lambda)\right)\right). \tag{2.28}$$

Par conséquent, les équations (2.25a) et (2.25c) peuvent être réécrites en fonction de la température :

$$T_0 - T_1(x) = \frac{3q_0}{\rho_1 c_1 v_1}[x + \beta(\lambda) + \gamma(\lambda)(p(x) - p(\lambda - x))], \tag{2.29a}$$

$$T_0 - T_2(x) = \frac{3q_0}{\rho_1 c_1 v_1}[\delta_{12}(x + p(x)) + \lambda + 2\beta(\lambda)], \tag{2.29b}$$

où $\delta_{12} = \rho_1 c_1 v_1/\rho_2 c_2 v_2 = R_{12}/T_{12}$ (voir (2.20)).

Nous allons maintenant discuter la validité et la précision des équations (2.25a)− (2.25c) pour la température et pour la densité de flux de chaleur. Il est important de noter que

l'équation (2.25a) se réduit à l'équation (2.25c) lorsque λ devient très supérieur à l'unité ($\beta(\propto) \to p(\propto) \approx A$ et $\gamma(\propto) \to 1$). Ceci est illustré sur la Figure 2.4 qui reporte le comportement des paramètres de transport β et γ en fonction de l'épaisseur normalisée λ.

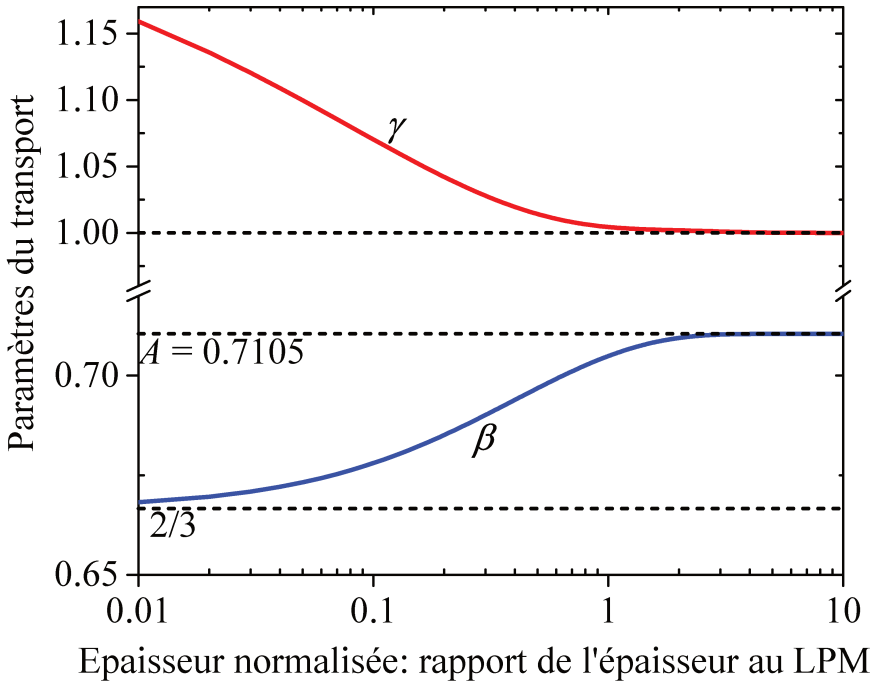

FIGURE 2.4 – Comportement des paramètres $\beta(\lambda)$ et $\gamma(\lambda)$ en fonction de l'épaisseur normalisée $\lambda = L/l$.

2.2.1 Profil de température en régime stationnaire

Comme mentionné plus haut, les solutions analytiques exactes des équations (2.23a)−(2.23d) sont pratiquement impossibles à obtenir directement. Cela a conduit Ordonez-Miranda et al. [OM15] à faire certaines approximations. La solution trouvée dans (2.25a) est considérée comme une solution du premier ordre. La solution du second ordre est obtenue en remplaçant (2.25a) dans (2.23a) et ainsi de suite pour les approximations d'ordre supérieur. Nous calculons le pourcentage d'erreur entre l'approximation du premier ordre et celle du second ordre en utilisant $E = (|U_1^{(1)}(x) - U_1^{(2)}(x)|)/U_1^{(1)}(x)$, où $U_1^{(1)}(x)$ et $U_1^{(2)}(x)$ sont respectivement, les approximations du premier ordre et du second ordre pour le profil de température normalisé dans une couche d'épaisseur finie. La Figure 2.5 présente un cas de conditions aux limites que nous étu-

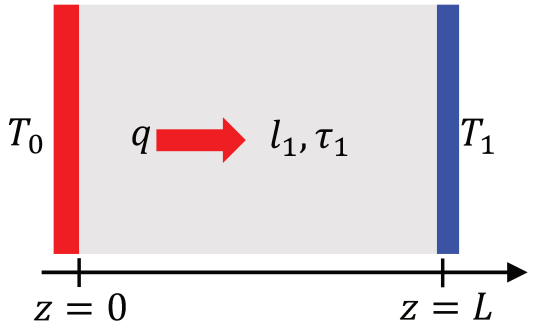

FIGURE 2.5 – Mono-couche avec deux parois soumises à une différence de température $\Delta T = T_0 - T_1$.

dions dans ce paragraphe : il s'agit d'un cas où la paroi chaude est maintenue à la température T_0 et la paroi froide est maintenue à la température T_1. Dans ce cas de figure, une procédure similaire à celle développée ci-dessus permet d'obtenir les expressions des profils de température et de la densité de flux de chaleur qui sont identiques à celles présentées par les équations (2.23a) et (2.23c). En tenant compte des conditions aux limites de températures imposées sur les deux parois de la couche finie, les constantes A_1^+ et A_1^- s'obtiennent directement à partir des équations (2.12a) et (2.12b) et elles sont données par les intensités d'équilibre au niveau de deux parois, respectivement à la température T_0 et T_1. Donc, on peut facilement montrer que :

$$A_1^+ = \frac{\rho_1 c_1 v_1 T_0}{4}, \tag{2.30a}$$

$$A_1^- = \frac{\rho_1 c_1 v_1 T_1}{4}. \tag{2.30b}$$

En remplaçant (2.30a) et (2.30b) dans(2.25a), on obtient :

$$\frac{T(x) - T_1}{T_0 - T_1} = 1 - \frac{1}{\lambda + 2\beta}[x + \beta + \gamma(p(x) - p(\lambda - x))]. \tag{2.31}$$

Le profil de température normalisé est présenté sur la Figure 2.6 (a) pour différentes valeurs de l'épaisseur L de la couche. Cette figure présente une superposition de l'approximation du premier ordre (ligne continue) et celle du second ordre (ligne pointillée) utilisée pour le calcul du profil de température. Lorsqu'on se place en régime purement diffusif $(L = 10l)$, le profil de température est linéaire et la loi de Fourier est applicable, contrairement au cas du régime balistique $(L = 0,1l)$. Dans ce dernier régime, les phonons n'interagissent pas entre eux et la température dans le film peut être calculée en

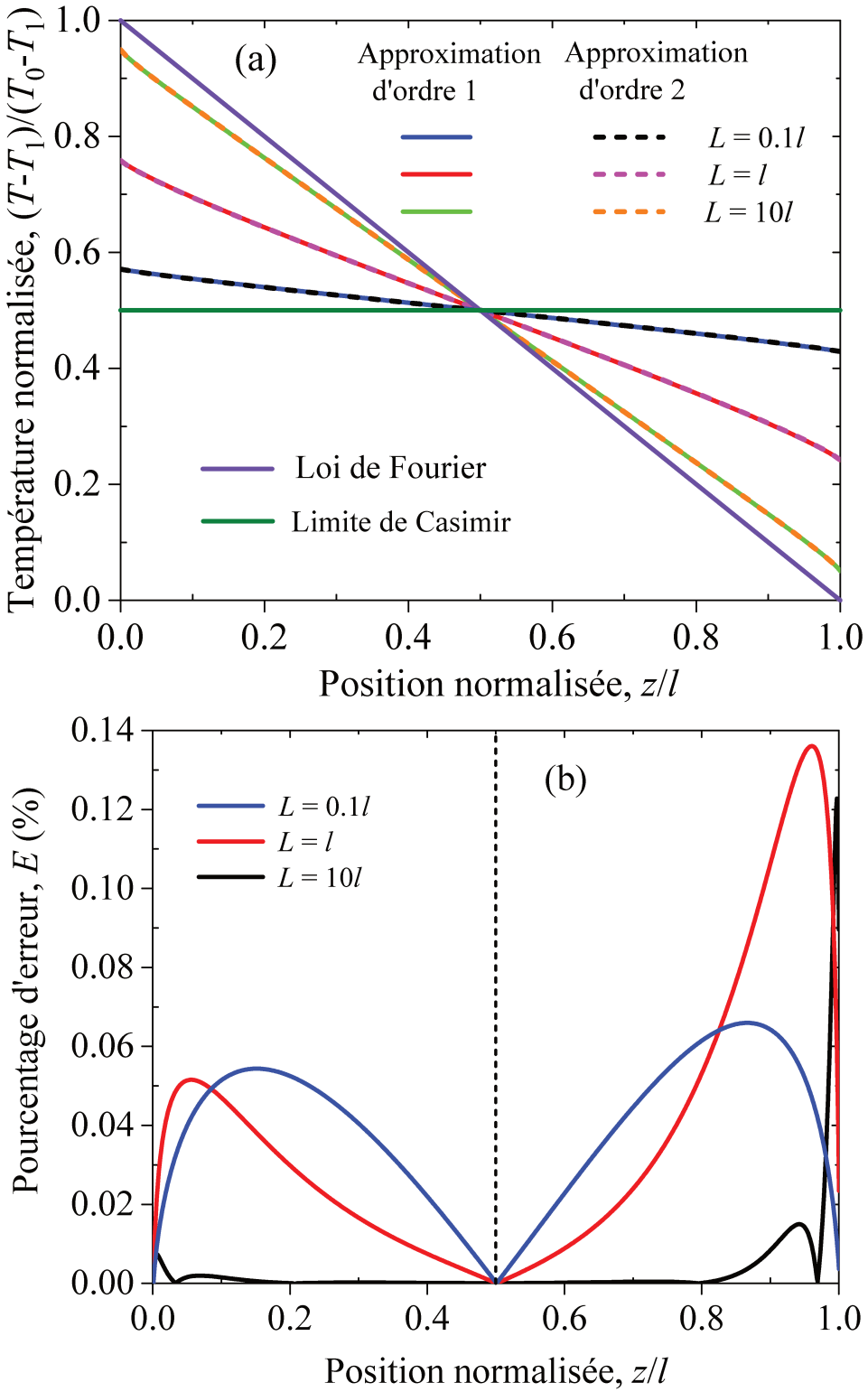

FIGURE 2.6 – Profils de température normalisés par $\Delta T = T_0 - T_1$ en fonction de la position normalisée $x = z/l$ (a) et Pourcentage d'erreur entre l'approximation du premier ordre et celle du second ordre (b).

utilisant la loi limite de Casimir $T_{\text{ballistic}} = [(T_0^4 + T_1^4)/2]^{1/4}$ [Maj93]. La Figure 2.6 (b) montre le pourcentage d'erreur $E(\%)$ entre l'approximation du premier ordre et celle du second ordre en fonction de la position normalisée $z = l$. Il est clair que les deux approximations sont presque indifférenciables et la déviation entre elles ne dépasse pas 0.14%. En outre, cette déviation est pratiquement nulle dans le cas du régime diffusif, contrairement au régime intermédiaire $(L = l)$, qui présente un maximum de $0,13\%$ autour de $z = 0,9l$. On peut également constater que la déviation est égale à zéro à $z = 0,5l$ quelle que soit l'épaisseur de la couche. Ceci était attendu, car les deux approximations sont égales au centre de la couche $(x = \lambda/2)$. En effet, on peut montrer directement que $U_1^{(1)}(x = \lambda/2) = U_1^{(2)}(x = \lambda/2) = 1/2$.

2.2.2 Densité du flux de chaleur en régime stationnaire

On continue de discuter la validité de la solution donnée par (2.25a), mais cette fois-ci pour la densité du flux de chaleur. Nous avons remplacé $U_1(x')$ dans l'équation (2.23c) par $U_1^{(1)}(x')(U_1^{(2)}(x'))$, ce qui permet de calculer la densité de flux du chaleur en utilisant l'approximation du premier ordre (second ordre) pour la température en régime stationnaire. La Figure 2.7 montre le comportement de la densité de flux de chaleur normalisé Q_{s1} en fonction de l'épaisseur normalisée λ. Pour une couche très mince $\lambda \ll 1$, le flux normalisé se réduit à l'unité, ce qui coïncide avec l'équation (2.23c)(En évaluant cette équation en $x = 0$). Lorsque l'épaisseur de la couche diminue, tous les processus de diffusion des phonons disparaissent et le régime du transport devient complètement balistique. Dans ce régime, la densité de flux de chaleur peut être calculée par la loi de Stefan-Boltzmann $q_{\text{ballistic}} = \sigma(T_0^4 - T_1^4)$. Dans le régime purement balistique, la loi de Fourier ne peut s'appliquer et les résultats obtenus pour le flux (2.23c) sont en bon accord avec ceux reportés par Swartz et Pohl [Swa89].

A partir de la Figure 2.7, on peut constater que les deux approximations donnent rigoureusement les mêmes résultats pour le flux normalisé. Le pourcentage d'erreur entre les deux approximations pour le flux est quasiment nul. Par conséquent, il est suffisant d'utiliser l'approximation du premier ordre de la température pour étudier le transport de chaleur à l'interface entre une couche finie et un substrat, notamment la RTI. Ce point sera traité et analysé dans la section qui suit.

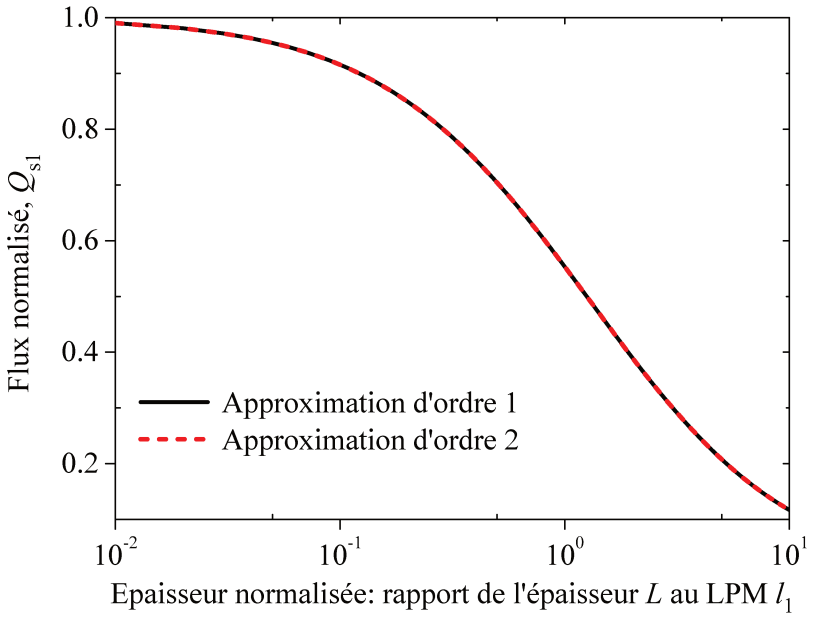

FIGURE 2.7 – Comportement du flux normalisé en fonction de l'épaisseur normalisée en utilisant l'approximation du premier ordre et celle du second ordre pour la température.

2.3 Résistance thermique effective d'interface

Nous avons vu dans le chapitre précédent que de nombreux modèles théoriques ont été développés afin d'étudier le transport de la chaleur à travers les interfaces, en particulier la RTI. Lorsque l'épaisseur de la couche devient comparable ou inférieure au LPM des phonons, les effets d'interfaces dominent la conductivité thermique effective (CTE) [Maj93 ; Che98 ; Alv10]. La réduction remarquable de la CTE est due essentiellement à la présence de la RTI. Dans cette section, nous allons calculer l'expression analytique de la RTI en exploitant la solution explicite de l'ETB (Eqs. (2.29a) et (2.29b)). Nous distinguons deux cas : une couche déposée sur un substrat (*i*) et deux couches déposées sur un substrat (*ii*), comme le montrent les Figures 2.8 et 2.11, respectivement.

2.3.1 Une couche déposée sur un substrat

On considère le cas de la Figure 2.8, où l'interface est localisée en $x = \lambda (x = 0)$. Il est bien connu que la RTI est la cause principale des sautes de température qui se produisent à l'interface lorsqu'un flux thermique traverse celle-ci. Elle est définie comme suit :

$$T_1(x = \lambda) - T_2(x = 0) = R(\lambda) q_0 \, , \tag{2.32}$$

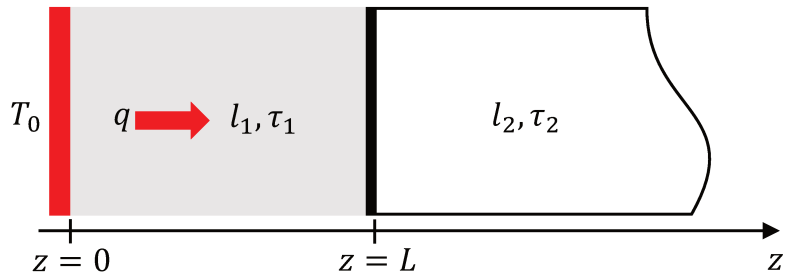

FIGURE 2.8 – Schéma représentatif d'une couche déposée sur un substrat.

où $T_1(x = \lambda)$ et $T_2(x = 0)$ représentent les températures des deux cotés de la même interface et q_0 est la densité de flux thermique qui traverse celle-ci. Le profil de température est discontinu à la traversée de l'interface, contrairement au flux thermique qui reste continu à l'interface. Après avoir remplacé les équations (2.29a) et (2.29b) dans (2.32), on trouve l'expression suivante pour la RTI :

$$R(\lambda) = 3\left(\frac{f(\lambda)}{\rho_1 c_1 v_1} + \frac{1}{\sqrt{3}\rho_2 c_2 v_2}\right), \tag{2.33}$$

où la fonction paramétrique $f(\lambda)$ est définie par :

$$f(\lambda) = \beta(\lambda) - \gamma(\lambda)(p(\lambda) - p(0)), \tag{2.34}$$

Avec $p(0) = 1/\sqrt{3}$.

La Figure 2.9 montre l'évolution de la fonction paramétrique $f(\lambda)$ définie dans l'équation (2.34) en fonction de l'épaisseur normalisée de la couche λ. Les valeurs minimale et maximale de cette fonction sont $f(\infty) = 1/\sqrt{3}$ et $f(0) = 2/3$, respectivement. Dans le régime diffusif ($\lambda \to \infty$), la RTI définie dans (2.33) tend vers une valeur constante $R = \sqrt{3}(1/\rho_1 c_1 v_1 + 1/\rho_2 c_2 v_2)$, alors que dans le régime balistique ($\lambda \to 0$), elle tend vers une autre valeur constante $R = \sqrt{3}(2/\sqrt{3}\rho_1 c_1 v_1 + 1/\rho_2 c_2 v_2)$. En comparant l'équation (2.33) avec les prédictions du modèle DMM ($R = 2(1/\rho_1 c_1 v_1 + 1/\rho_2 c_2 v_2)$) pour la RTI [Che98], nous constatons que l'erreur maximale entre les deux résultats ne dépasse pas 16% dans le cas purement diffusif. Même si le modèle DMM est plus adapté aux interfaces rugueuses à température élevée [Alv10], ses prédictions ne sont pas souvent en accord avec les données expérimentales et avec les résultats de simulation atomistique,

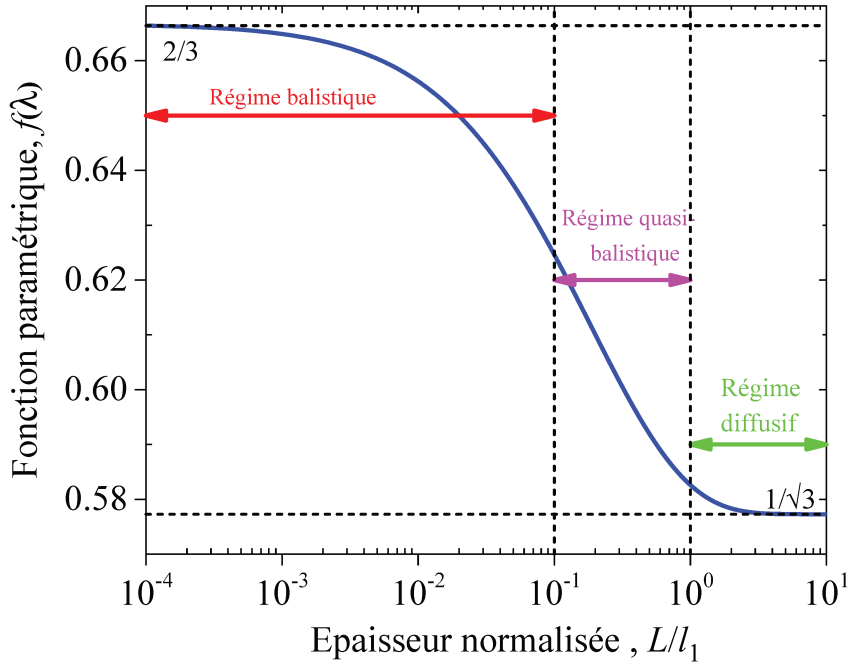

FIGURE 2.9 – Variation de la fonction paramétrique $f(\lambda)$ définie dans l'équation (2.34) en fonction de l'épaisseur normalisée $\lambda = L/l_1$.

comme récemment reporté dans la littérature [Kak17]. En effet, l'équation (2.33) représente une généralisation du modèle DMM et prévoit que la RTI n'est plus une propriété intrinsèque à l'interface mais dépend fortement de la nature du transport des phonons dans la couche d'épaisseur finie. Dans le régime intermédiaire, la RTI dépend fortement du rapport entre l'épaisseur du film et le LPM des phonons. Il est important de noter que les valeurs de la RTI dans le régime balistique sont supérieures à celles dans le régime diffusif. En effet, comme nous l'avons déjà mentionné (Figure 2.6 (a)), dans les systèmes nanostructurés (la taille du système est de même ordre ou plus petite que le LPM), la température ne varie pas significativement avec la position et les sauts de température deviennent très importants au niveau de l'interface.

Une fois qu'on a calculé la RTI, on peut réécrire l'équation (2.29b) en fonction de la RTI sous une forme similaire à celle que l'on obtiendrait avec la loi de Fourier :

$$T_0 - T_2 = \frac{3q_0}{\rho_1 c_1 v_1}[\delta_{12}(x + p(x) - \frac{1}{\sqrt{3}}) + \lambda + \beta(\lambda) + \frac{\rho_1 c_1 v_1 R(\lambda)}{3} + \gamma(\lambda)(p(\lambda) - \frac{1}{\sqrt{3}})]. \tag{2.35}$$

Récemment, Jean Kaiser et al. [Kai17] ont étudié le même problème de transport, comme le montre la Figure 2.8 en s'appuyant sur la loi de Fourier avec des conditions appropriées aux parois. La procédure de calcul est reportée dans l'annexe B. Ils ont obtenu que

le profil de température en régime stationnaire dans une couche d'épaisseur finie et dans un substrat est donnée par les équations (2.36) et (2.37), respectivement.

$$T_0 - T_1(x) = \frac{3q_0}{\rho_1 c_1 v_1}(x + \frac{2}{3}), \tag{2.36}$$

$$T_0 - T_2(x) = \frac{3q_0}{\rho_1 c_1 v_1}(\delta_{12}x + \lambda + \frac{2}{3} + \frac{\rho_1 c_1 v_1 R}{3}). \tag{2.37}$$

Il est très intéressant de constater les similarités entre le système des équations [(2.29a) et (2.35)] et celui des [(2.36) et (2.37)] calculé par Jean Kaiser et al. [Kai17]. Pour une couche très mince ($\lambda \ll 1$), $p(\lambda) \approx p(x) \to 1/\sqrt{3}$, $\beta(\lambda) \to 2/3$, et on peut montrer facilement que l'équation (2.35) prend la forme de (2.37). Il est intéressant de rappeler que Jean Kaiser et al. ont utilisé le modèle DMM pour estimer la valeur de la RTI. Le profil

TABLEAU 2.1 – Propriétés thermiques des cristaux semi-conducteurs à température ambiante. Les données proviennent de la référence [Dat].

Matériau	ρ (kg/m^3)	v^* (m/s)	c (J/kg.K)	κ_0 (W/m.K)	l^{**} (nm)
Si	2329	2169	700	130	110
Ge	5323	1302	310	58	81
GaAs	5320	1237	330	55	76
InAs	5680	982	250	27	58
GaN	6150	1840	490	130	70
GaP	4140	1522	430	110	122
InP	4810	1152	310	68	119
InSb	5770	856	200	18	55

* $1/v = 1/v_l + 2/v_t$.
** $\kappa_0 = \rho c v l/3$.

de température est représenté sur les Figures 2.10 (a) et 2.10 (b), pour trois épaisseurs normalisées $\lambda = L/l_1$ différentes. La Figure 2.10 (a) montre la variation du profil de température normalisé en fonction de la position normalisée $x = z/l_1$. Les calculs ont été effectués pour un film de Si d'épaisseur L_1(Si) = $0.1l_1$, l_1 et $10l_1$ déposé sur un substrat de Ge. La résistance d'interface a été calculée en exploitant l'expression (2.33). Comme on peut le voir et conformément à ce qui a été discuté avant, les sauts de température augmentent lorsque l'épaisseur de la couche diminue. Ces sauts de températures deviennent très remarquables lorsque le transport de phonons dans la couche d'épaisseur finie est balistique. Les valeurs de la RTI pour différentes épaisseurs de Si sont respectivement, $R = 1.33625$, $R = 1.30060$ et $R = 1.29607$ m^2.K/GW pour L_1(Si) = $0.1l_1$, l_1 et

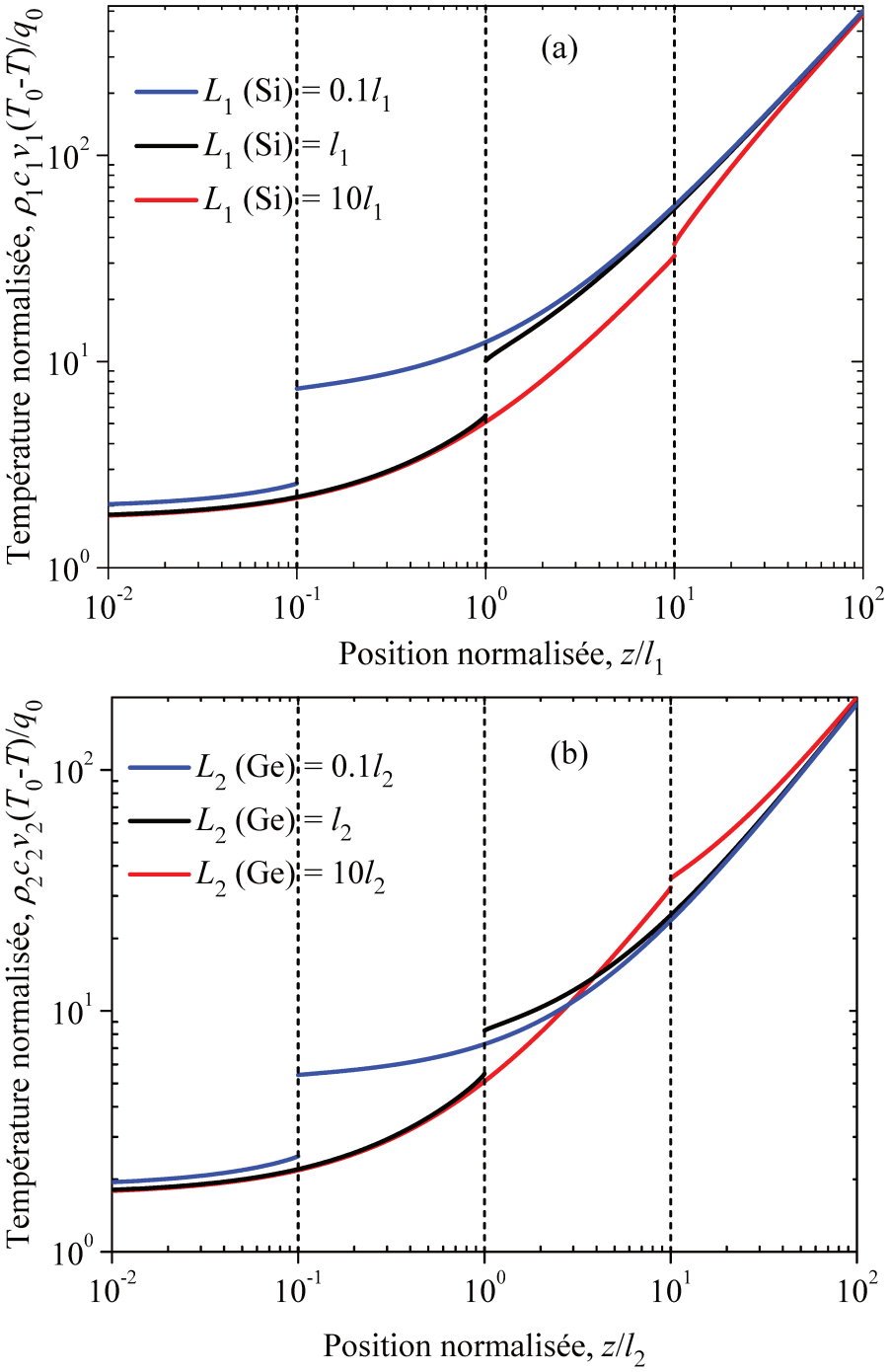

FIGURE 2.10 – Profil de température normalisé dans une couche d'épaisseur finie déposée sur un substrat ; Si film/Ge substrat (a), et Ge film/ Si substrat (b). La RTI a été estimée en exploitant l'expression (2.33).

$10l_1$. Sur la Figure 2.10 (b), on présente le même comportement du profil de température mais cette fois-ci pour un film de Ge déposé sur un substrat de Si. De la même manière, les calculs ont été faits pour un film de Ge d'épaisseur L_2(Ge) = $0.1l_2$, l_2 et $10l_2$. Dans ce cas, les valeurs obtenues pour la RTI sont $R = 1.36221$, $R = 1.30352$ et $R = 1.29607$

m^2.K/GW pour L_2(Ge) = $0.1l_2$, l_2 et $10l_2$, respectivement. Il est nécessaire de noter que la RTI est asymétrique lorsque l'épaisseur de la couche finie est inférieure au LPM et que le transport des phonons est balistique. Par contre quand $L > l$ et que le transport est diffusif, la RTI devient complètement symétrique.

2.3.2 Deux couches déposées sur un substrat

Après avoir calculé le profil de température dans un système à deux couches à partir de la solution analytique de l'ETB, l'intérêt est alors porté au système à trois couches, où il existe deux interfaces. La première est située à l'abscisse $z = L_1$, et la deuxième est située à l'abscisse $z = L_2$, comme le montre la Figure 2.11.
En procédant de la même façon que dans le cas d'une couche déposée sur un substrat, la solution de (2.2) appliquée dans le cas de la Figure 2.11 est donnée par :

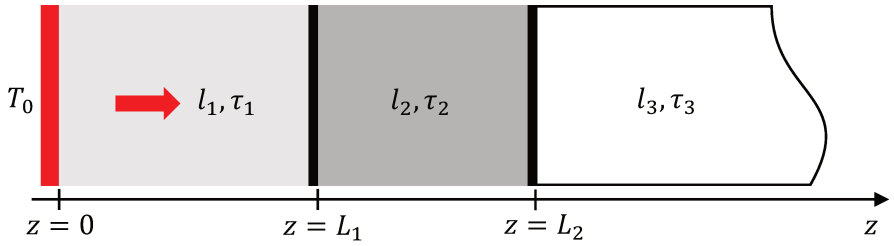

FIGURE 2.11 – Schéma représentatif de deux couches déposées sur un substrat.

$$\begin{cases} I_{s1}^{+}(x,\mu) = \dfrac{A_1^{+}}{\pi} e^{-x/\mu} + \dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_0^x I_{0s1}(x') e^{(x'-x)/\mu} dx', & \text{(2.38a)} \\ I_{s1}^{-}(x,\mu) = \dfrac{A_1^{-}}{\pi} e^{(\lambda_1-x)/\mu} - \dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_x^{\lambda_1} I_{0s1}(x') e^{(x'-x)/\mu} dx', & \text{(2.38b)} \\ I_{s2}^{+}(x,\mu) = \dfrac{A_2^{+}}{\pi} e^{-x/\mu} + \dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_0^x I_{0s2}(x') e^{(x'-x)/\mu} dx', & \text{(2.38c)} \\ I_{s2}^{-}(x,\mu) = \dfrac{A_2^{-}}{\pi} e^{(\lambda_2-x)/\mu} - \dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_x^{\lambda_2} I_{0s2}(x') e^{(x'-x)/\mu} dx', & \text{(2.38d)} \\ I_{s3}^{+}(x,\mu) = \dfrac{A_3^{+}}{\pi} e^{-x/\mu} + \dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_0^x I_{0s3}(x') e^{(x'-x)/\mu} dx', & \text{(2.38e)} \\ I_{s3}^{-}(x,\mu) = -\dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_x^{\infty} I_{0s3}(x') e^{(x'-x)/\mu} dx', & \text{(2.38f)} \end{cases}$$

où $\lambda_i = L_i/l_i$ $(i = 1, 2)$.

En substituant (2.38a)−(2.38f) dans (2.14), on trouve :

$$I_{0s1}(x) = \frac{1}{2}\left(\frac{A_1^+}{\pi}E_2(x) + \frac{A_1^-}{\pi}E_2(\lambda_1 - x) + \int_0^{\lambda_1} I_{0s1}(x')E_1|x - x'|dx'\right), \tag{2.39a}$$

$$I_{0s2}(x) = \frac{1}{2}\left(\frac{A_2^+}{\pi}E_2(x) + \frac{A_2^-}{\pi}E_2(\lambda_2 - x) + \int_0^{\lambda_2} I_{0s2}(x')E_1|x - x'|dx'\right), \tag{2.39b}$$

$$I_{0s3}(x) = \frac{1}{2}\left(\frac{A_3^+}{\pi}E_2(x) + \int_0^{\infty} I_{0s3}(x')E_1|x - x'|dx'\right). \tag{2.39c}$$

En incluant les équations (2.38a)−(2.38f) dans l'équation (2.17) on obtient la densité de flux de chaleur dans chaque couche de la Figure 2.11 :

$$q_1(x,t) = 2\left(A_1^+E_3(x) - A_1^-E_3(\lambda_1 - x) - \pi\frac{d}{dx}\int_0^{\lambda_1} I_{0s1}(x')E_3|x - x'|dx'\right), \tag{2.40a}$$

$$q_2(x,t) = 2\left(A_2^+E_3(x) - A_2^-E_3(\lambda_2 - x) - \pi\frac{d}{dx}\int_0^{\lambda_2} I_{0s2}(x')E_3|x - x'|dx'\right), \tag{2.40b}$$

$$q_3(x,t) = 2\left(A_3^+E_3(x) - \pi\frac{d}{dx}\int_0^{\infty} I_{0s3}(x')E_3|x - x'|dx'\right). \tag{2.40c}$$

En appliquant les conditions aux limites aux interfaces $z = L_1$ et $z = L_2$, on a alors :

$$\int_0^1 I_{s1}^-(\lambda_1, -\mu)\mu d\mu = R_{12}\int_0^1 I_{s1}^+(\lambda_1, \mu)\mu d\mu + T_{21}\int_0^1 I_{s2}^-(0, -\mu)\mu d\mu, \tag{2.41a}$$

$$\int_0^1 I_{s2}^+(0, \mu)\mu d\mu = R_{21}\int_0^1 I_{s2}^-(0, -\mu)\mu d\mu + T_{12}\int_0^1 I_{s1}^+(\lambda_1, \mu)\mu d\mu, \tag{2.41b}$$

$$\int_0^1 I_{s2}^-(\lambda_2, -\mu)\mu d\mu = R_{23}\int_0^1 I_{s2}^+(\lambda_2, \mu)\mu d\mu + T_{32}\int_0^1 I_{s3}^-(0, -\mu)\mu d\mu, \tag{2.41c}$$

$$\int_0^1 I_{s3}^+(0, \mu)\mu d\mu = R_{32}\int_0^1 I_{s3}^-(0, -\mu)\mu d\mu + T_{23}\int_0^1 I_{s2}^+(\lambda_2, \mu)\mu d\mu. \tag{2.41d}$$

Le principe de conservation d'énergie en $z = 0$ nous permet d'écrire :

$$2\pi\int_0^1 I_{s1}^+(0, \mu)\mu d\mu = 2\pi\int_0^1 I_{s1}^-(0, -\mu)\mu d\mu + q_0. \tag{2.42}$$

La combinaison des équations (2.38a)−(2.38f), (2.41a)−(2.41d) avec (2.42), nous conduit à :

$$\frac{A_2^+}{2T_{12}} = A_1^+ E_3(\lambda_1) + A_2^+ E_3(\lambda_2) + \int_0^{\lambda_1} \pi I_{0s1}(x)\, E_2(\lambda_1 - x)\, dx + \int_0^{\lambda_2} \pi I_{0s2}(x)\, E_2(x)\, dx, \tag{2.43a}$$

$$\frac{A_2^+}{T_{12}} = \frac{A_1^-}{R_{12}}, \tag{2.43b}$$

$$A_1^+ = q_0 + 2A_1^- E_3(\lambda_1) + 2\int_0^{\lambda_1} \pi I_{0s1}(x) E_2(x)\, dx. \tag{2.43c}$$

$$\frac{A_3^+}{2T_{23}} = A_2^+ E_3(\lambda_2) + \int_0^{\lambda_2} \pi I_{0s2}(x)\, E_2(\lambda_2 - x)\, dx + \frac{R_{32}}{T_{23}} \int_0^{\infty} \pi I_{0s3}(x)\, E_2(x)\, dx, \tag{2.43d}$$

$$\frac{A_2^-}{R_{23}} = \frac{A_3^+}{T_{23}}. \tag{2.43e}$$

Par conséquent, les profils de température et de la densité de flux de chaleur normalisés dans les trois couches de la Figure 2.11 sont donnés par :

$$\begin{cases} 2U_1(x) = E_2(x) + \displaystyle\int_0^{\lambda_1} U_1(x') E_1(|x - x'|) dx', & \text{(2.44a)} \\ 2U_2(x) = E_2(x) + \displaystyle\int_0^{\lambda_2} U_2(x') E_1(|x - x'|) dx', & \text{(2.44b)} \\ 2U_3(x) = E_2(x) + \displaystyle\int_0^{\infty} U_3(x') E_1(|x - x'|) dx', & \text{(2.44c)} \\ \dfrac{Q_{s1}}{2} = E_3(x) - \dfrac{d}{dx}\displaystyle\int_0^{\lambda_1} U_1(x') E_3(|x - x'|) dx', & \text{(2.44d)} \\ \dfrac{Q_{s2}}{2} = E_3(x) - \dfrac{d}{dx}\displaystyle\int_0^{\lambda_2} U_2(x') E_3(|x - x'|) dx', & \text{(2.44e)} \\ \dfrac{Q_{s3}}{2} = E_3(x) - \dfrac{d}{dx}\displaystyle\int_0^{\infty} U_3(x') E_3(|x - x'|) dx', & \text{(2.44f)} \end{cases}$$

où $U_n(x)$ et $Q_{sn}(x)$ sont donnés par les relations (2.24a) et (2.24b), respectivement. On se limite à l'approximation d'ordre 1, les solutions analytiques des équations (2.44a)-(2.44f)

peuvent se mettre sous la forme :

$$U_1^{(1)}(x) = 1 - \alpha(\lambda_1)[x + \beta(\lambda_1) + \gamma(\lambda_1)(p(x) - p(\lambda_1 - x))]\,, \tag{2.45a}$$

$$\alpha(\lambda_1) = \frac{3}{4}Q_{s1} = \frac{1}{\lambda_1 + 2\beta(\lambda_1)}\,, \tag{2.45b}$$

$$U_2^{(1)}(x) = 1 - \alpha(\lambda_2)[x + \beta(\lambda_2) + \gamma(\lambda_2)(p(x) - p(\lambda_2 - x))]\,, \tag{2.45c}$$

$$\alpha(\lambda_2) = \frac{3}{4}Q_{s2} = \frac{1}{\lambda_2 + 2\beta(\lambda_2)}\,, \tag{2.45d}$$

$$U_3^{(1)}(x) = 1 - \frac{3}{4}Q_{s3}(x + p(x))\,. \tag{2.45e}$$

Comme précédemment, les équations (2.45a), (2.45c) et (2.45e) peuvent s'exprimer sous la forme :

$$A_1^+ - \pi I_{0s1}(x) = \frac{3q_0}{4}\left[x + \beta(\lambda_1) + \gamma(\lambda_1)\left(p\left(x\right) - p\left(\lambda_1 - x\right)\right)\right], \tag{2.46a}$$

$$A_2^+ - \pi I_{0s2}(x) = \frac{3q_0}{4}\left[x + \beta(\lambda_2) + \gamma(\lambda_2)\left(p\left(x\right) - p\left(\lambda_2 - x\right)\right)\right], \tag{2.46b}$$

$$A_3^+ - \pi I_{0s3}(x) = \frac{3q_0}{4}\left(x + p\left(x\right)\right). \tag{2.46c}$$

Puisque l'intensité des phonons à l'équilibre est reliée à la température, la condition $T(z=0) = T_0$ donne $A_1^+ = \rho_1 c_1 v_1 T_0/4$. En tenant compte des équations (2.43a)−(2.43e), on aboutit finalement à :

$$A_1^- = A_1^+ - \frac{3q_0}{4}\left(\lambda_1 + 2\beta(\lambda_1)\right), \tag{2.47a}$$

$$A_2^+ = \frac{T_{12}}{R_{12}}\left(A_1^+ - \frac{3q_0}{4}\left(\lambda_1 + 2\beta(\lambda_1)\right)\right), \tag{2.47b}$$

$$A_3^+ = \frac{T_{23}}{R_{23}}\left[\frac{T_{12}}{R_{12}}\left(A_1^+ - \frac{3q_0}{4}\left(\lambda_1 + 2\beta(\lambda_1)\right)\right) - \frac{3q_0}{4}\left(\lambda_2 + 2\beta(\lambda_2)\right)\right]. \tag{2.47c}$$

Donc, les équations (2.45a), (2.45c) et (2.45e) peuvent s'exprimer en fonction de la température comme suit :

$$T_0 - T_1\left(x\right) = \frac{3q_0}{\rho_1 c_1 v_1}\left[x + \beta\left(\lambda_1\right) + \gamma\left(\lambda_1\right)\left(p\left(x\right) - p\left(\lambda_1 - x\right)\right)\right], \tag{2.48a}$$

$$T_0 - T_2(x) = \frac{3q_0}{\rho_1 c_1 v_1}\left[\delta_{12}\left(x + \beta\left(\lambda_2\right) + \gamma\left(\lambda_2\right)\left(p\left(x\right) - p\left(\lambda_2 - x\right)\right)\right) + \lambda_1 + 2\beta\left(\lambda_1\right)\right], \tag{2.48b}$$

$$T_0 - T_3(x) = \frac{3q_0}{\rho_1 c_1 v_1}\left[\delta_{13}\left(x + p\left(x\right)\right) + \delta_{12}\left(\lambda_2 + 2\beta\left(\lambda_2\right)\right) + \lambda_1 + 2\beta\left(\lambda_1\right)\right], \tag{2.48c}$$

où $\delta_{ij} = \rho_i c_i v_i / \rho_j c_j v_j = R_{ij}/T_{ij} (i = 1, j = 2, 3)$.

Après avoir remplacé les équations (2.48a)−(2.48c) dans (2.32), on obtient :

$$R_1(\lambda_1, \lambda_2) = 3\left(\frac{f(\lambda_1)}{\rho_1 c_1 v_1} + \frac{f(\lambda_2)}{\rho_2 c_2 v_2}\right), \tag{2.49a}$$

$$R_2(\lambda_2) = 3\left(\frac{f(\lambda_2)}{\rho_2 c_2 v_2} + \frac{1}{\sqrt{3}\rho_3 c_3 v_3}\right), \tag{2.49b}$$

où la fonction paramétrique $f(\lambda_{i=1,2})$ est donnée par l'expression (2.34). La relation

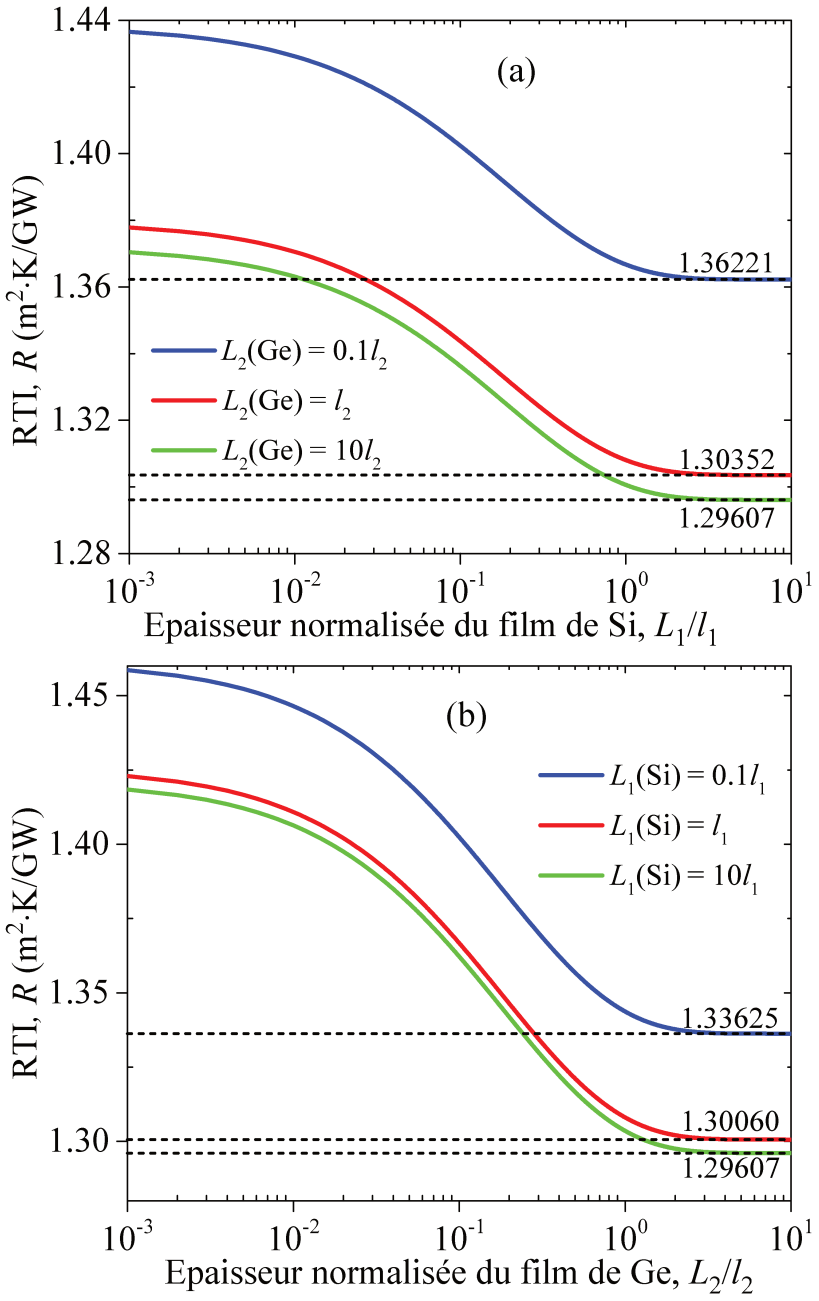

FIGURE 2.12 – Variation de la RTI entre deux couches d'épaisseur finie en fonction de l'épaisseur normalisée de celle du bas ; Si film/Ge film/substrat (a), et Ge film/Si film/ substrat (b).

(2.49a) montre que la RTI entre deux couches ne dépend pas seulement de leurs propriétés thermiques, mais aussi de leurs épaisseurs. Il est donc intéressant de noter que l'équation (2.49a) devient symétrique vis-à-vis des propriétés thermiques $\rho_1 c_1 v_1$ et $\rho_2 c_2 v_2$ lorsque $\lambda_1 \to \infty$ et $\lambda_2 \to \infty$ [Figures 2.12 (a) et (b)].

La Figure 2.12 (a) montre la variation de la RTI entre deux couche de Si et de Ge d'épaisseur finie en fonction de l'épaisseur normalisée de la couche de Si, pour trois épaisseurs différentes de la couche de Ge. Pour une épaisseur donnée d'une couche de Ge, la RTI diminue lorsque l'épaisseur de la couche de Si augmente. La diminution de la RTI est due principalement à la diminution des sauts de température dans le régime diffusif (Figure 2.10 (b)). Dans la limite diffusive, L_1(Si) = $10l_1$ et L_2(Ge) = $10l_2$, la RTI atteint sa valeur minimale $R = 1.29607$ m^2.K/GW [Figures 2.12 (a) et (b)]. Cela peut s'expliquer par le fait que dans le régime diffusif, les sauts de température sont très faibles au niveau de l'interface (Figure 2.10), conduisant ainsi à une baisse continue de la résistance interfaciale. Lorsque $\lambda_1 \to \infty$ et $\lambda_2 \to \infty$, l'équation (2.49a) se ramène à la forme simplifiée $R = \sqrt{3}(1/\rho_1 c_1 v_1 + 1/\rho_2 c_2 v_2)$ et devient ainsi symétrique. La relation (2.49a) est en bon accord avec le modèle DMM [Che98] et atteint sa valeur maximale dans la limite balistique, lorsque $\lambda_1 \to 0$ et $\lambda_2 \to 0$.

Après avoir calculé la résistance d'interface entre deux couches d'épaisseur finie, nous allons calculer la conductivité thermique effective d'un système multicouches en tenant compte de la RTI relative à chaque interface.

2.4 Conductivité thermique effective

Il y a eu beaucoup de travaux expérimentaux et théoriques qui ont étudié l'effet de la taille sur la conductivité thermique [Maj93; Che93; Xu14; Alv07; Don15]. En effet, lorsque le LPM des phonons est du même ordre de grandeur ou supérieur à la dimension caractéristique du système, l'effet de la diffusion des phonons par les interfaces devient très important, conduisant ainsi à une réduction de la conductivité thermique. Chen [Che98; Che05a] s'est intéressé au transport de chaleur dans la direction perpendiculaire au plan des super-réseaux de GaAs/AlAs et de Si/Ge. Son modèle repose sur la résolution numérique de l'ETB dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation. Il a montré que la diffusion des phonons par les interfaces réduit d'une manière

significative la conductivité thermique effective (CTE) des super-réseaux. Un algorithme similaire a été appliqué pour traiter le transport de chaleur dans des nanocomposites en 2D à base de Si/Ge [Yan04], dans des nanofils [Dam04], et dans des matériaux polycristallins [Yan10]. Dans ces nanosystèmes, la réduction de la CTE a été observée. Comme on l'a mentionné au début de ce chapitre, en introduisant la notion d'intensité pour les phonons, Majumdar a reformulé l'ETB sous une forme analogue à l'équation du transfert radiatif [Maj93]. Un modèle théorique simple a été proposé pour le calcul de la CTE d'un film de diamant. Dans ce modèle, le LPM des phonons est supposé indépendant de la fréquence (Approximation du milieu gris). Dans une étude plus approfondie, McGaughey et al. [McG11] a pris en compte la dépendance de la vitesse de groupe en fonction de la fréquence ainsi que le LPM des phonons afin d'obtenir une expression analytique plus générale pour la CTE. Dans cette section nous comparons nos résultats obtenus pour la CTE d'un système multicouches avec ceux de Majumdar, en commençant par le cas simple qui est illustré sur la Figure 2.11.

2.4.1 Deux couches déposées sur un substrat

Lorsque les deux parois d'une couche sont soumises à une différence de température $\Delta T = T_0 - T_1$ qui est assez faible (Figure 2.5), et à partir de l'équation (2.25b), on peut facilement montrer que la densité du flux de chaleur à travers cette couche est donnée par la formule :

$$q_{s1} = \frac{\kappa_0}{1 + 2\beta(\lambda)/\lambda} \left(\frac{T_0 - T_1}{L} \right). \tag{2.50}$$

Il est intéressant de remarquer que l'équation (2.50) a la même forme que celle obtenue en utilisant la loi de Fourier mais avec une CTE, donnée par :

$$\kappa_i = \frac{\kappa_0}{1 + 2\beta(\lambda)/\lambda}, \tag{2.51}$$

où κ_0 étant la conductivité thermique du matériau massif. Pour $\lambda = L/l \ll 1$, $\beta(\lambda) \to 2/3$, l'équation (2.51) se simplifie à l'expression trouvée par Majumdar [Maj93] (Figure 2.13). D'après la théorie cinétique des gaz ($\kappa_0 = \rho c v l/3$) et selon l'équation (2.50),

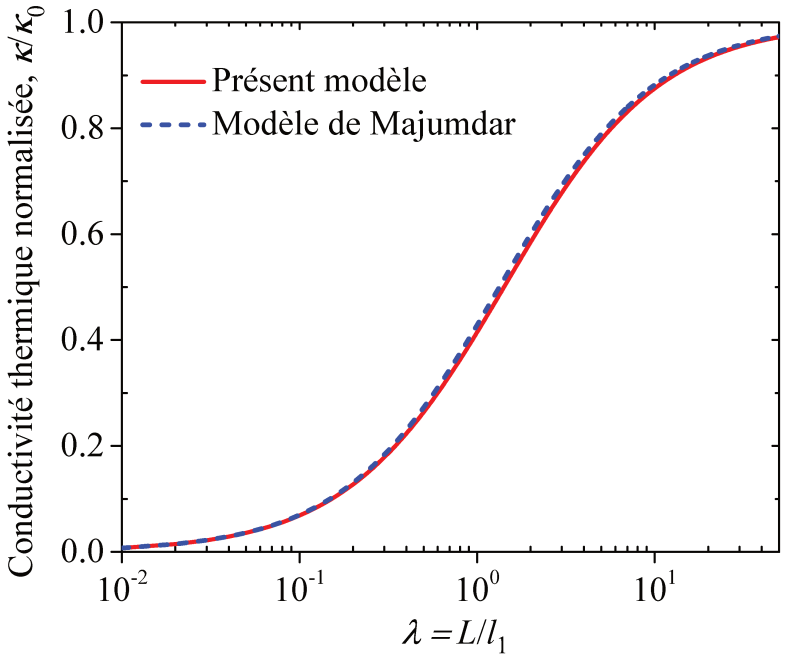

FIGURE 2.13 – Variation de la conductivité thermique dans la direction perpendiculaire au plan de la couche en fonction de l'épaisseur normalisée en utilisant le présent modèle, et le modèle de Majumdar [Maj93].

le LPM effectif peut se mettre sous la forme :

$$l_{\text{eff}} = \frac{l}{1 + 2\beta(\lambda)/\lambda}. \tag{2.52}$$

Une fois qu'on a calculé la CTE d'une monocouche, on va calculer la CTE d'un système multicouche en prenant en considération les résistances d'interfaces relatives à chaque interface. Le système est constitué de deux couches d'épaisseurs L_1 et L_2 déposées sur un substrat, comme l'illustre la Figure 2.11. Par analogie avec les problèmes électriques et en exploitant le concept du circuit thermique, la résistance thermique totale R_{Tot} associée à deux couches en série est donnée par :

$$R_{\text{Tot}} = \frac{L}{\kappa} = R_1 + R_2 + R(\lambda_1, \lambda_2), \tag{2.53}$$

où $L = L_1 + L_2$, κ est la CTE du système, $R_i = L_i/\kappa_i$ est la résistance thermique de la couche i et $R(\lambda_1, \lambda_2)$ est la RTI entre la couche 1 et la couche 2. Selon (2.53), on obtient :

$$\kappa = \frac{L}{\frac{L_1}{\kappa_1} + \frac{L_2}{\kappa_2} + R(\lambda_1, \lambda_2)}. \tag{2.54}$$

En remplaçant (2.49a) et (2.51) dans (2.54), la CTE associée à deux couches en série peut s'écrire sous la forme :

$$\frac{L_1+L_2}{\kappa}=\frac{L_1}{\kappa_{01}}\left(1+\frac{2\beta(\lambda_1)+f(\lambda_1)}{\lambda_1}\right)+\frac{L_2}{\kappa_{02}}\left(1+\frac{2\beta(\lambda_2)+f(\lambda_2)}{\lambda_2}\right). \tag{2.55}$$

Dans la littérature, le modèle de Majumdar [Maj93] a été largement utilisé pour le calcul de la CTE d'une couche diélectrique d'épaisseur finie. En combinant ce modèle avec le modèle DMM, on trouve :

$$\frac{L_1+L_2}{\kappa}=\frac{L_1}{\kappa_{01}}\left(1+\frac{2}{\lambda_1}\right)+\frac{L_2}{\kappa_{02}}\left(1+\frac{2}{\lambda_2}\right). \tag{2.56}$$

Dans un régime purement diffusif ($\lambda_i \to \infty$), les expressions (2.55) et (2.56) se réduisent à $(L_1+L_2)/\kappa = L_1/\kappa_{01}+L_2/\kappa_{02}$, qui décrit le résultat classique de la CTE associé à deux couches épaisses en série. Dans ce cas, l'effet de la RTI devient négligeable par rapport à R_1 et R_2. Par ailleurs, dans une couche extrêmement mince, le transport des phonons est balistique, et la RTI domine la conductivité thermique. Ce résultat est en accord avec les travaux de G. Chen dans la limite balistique [Che98]. Dans cette situation $\lambda_i \to 0$, $\beta(\lambda_i) \approx f(\lambda_i) = 2/3$ et (2.55) se réduit à (2.56). Ces résultats reproduisent ceux de Majumdar et le pourcentage d'erreur est inférieure à 1% dans le régime intermédiaire. La Figure 2.14 (a) représente la variation de la CTE d'une bicouche Si/Ge déposée sur un substrat en fonction de l'épaisseur normalisée L_1/l_1 de la couche de Si pour différentes valeurs de l'épaisseur de la couche Ge. Cette figure montre que la conductivité thermique augmente avec l'épaisseur de la couche de Si. Ceci était attendu, car la conductivité thermique de Si massif et beaucoup plus grande par rapport à celle de Ge massif ($\kappa(\mathrm{Si}) = 2.24\,\kappa(\mathrm{Ge})$). Pour un film de Si très épais ($L_1 = 10^3 l_1$), la CTE devient indépendante de l'épaisseur de la couche de Ge et atteint la conductivité thermique de Si massif soit $\kappa = \kappa(\mathrm{Si})$ ($\lambda_1 \to \infty$). En effet, lorsque $L_1 \gg L_2$, les variations de température dans la couche de Si deviennent très importantes par rapport à celles dans la couche de Ge, et donc la CTE d'une bicouche Si/Ge est dominée par la conductivité thermique de Si massif.

De même, la Figure 2.14 (b) montre le comportement de κ de la configuration étudiée à la Figure 2.14 (a) en fonction de l'épaisseur normalisée L_2/l_2 de la couche de Ge, pour

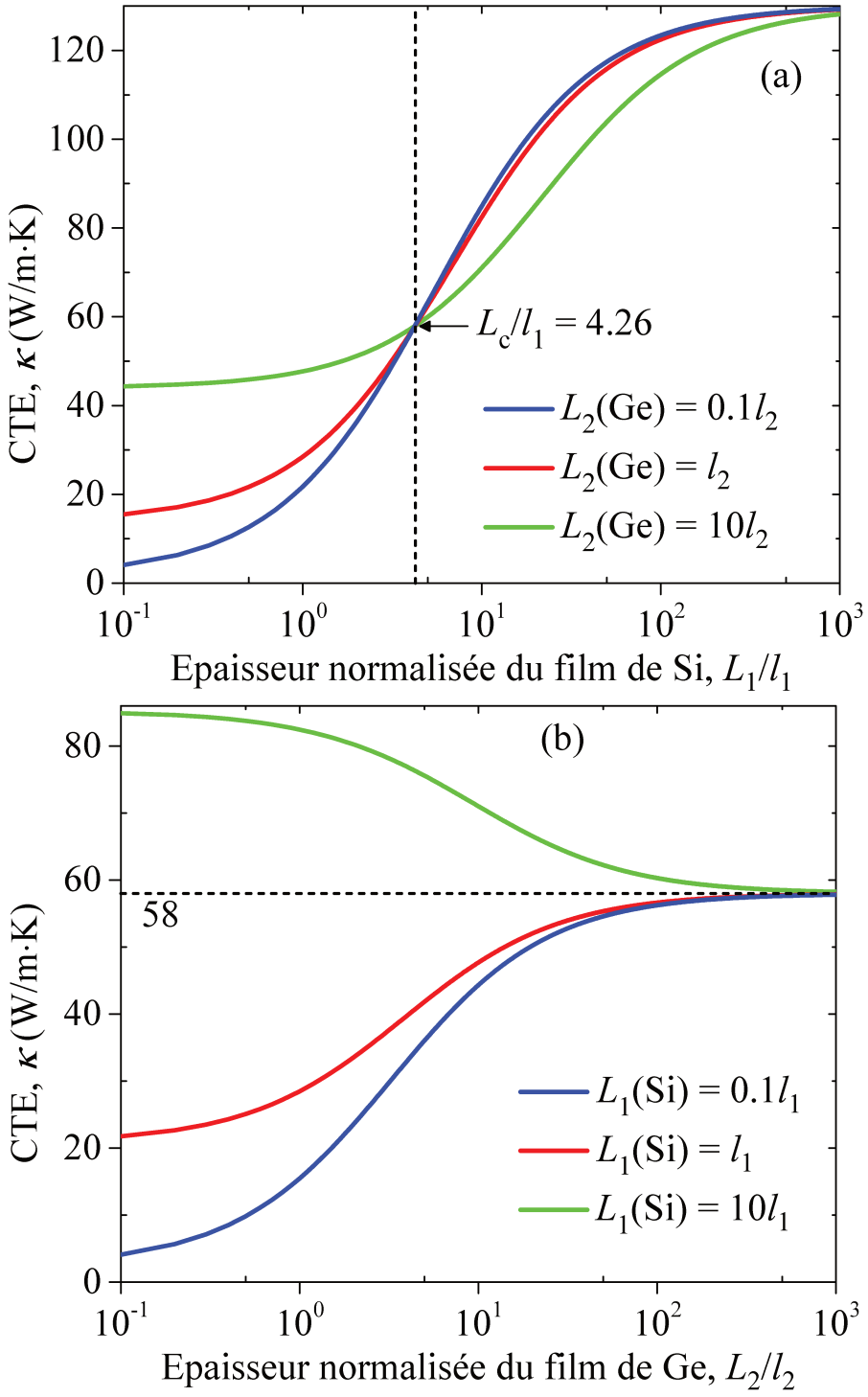

FIGURE 2.14 – Comportement de la CTE d'un système à deux couches en série Si/Ge en fonction de l'épaisseur normalisée de Si (a) et Ge (b).

trois épaisseurs de Si différentes. Dans le cas $L = 10l_1$, on voit bien que plus l'épaisseur de la couche de Ge augmente, plus la conductivité thermique décroit de manière significative. Cette tendance se renverse pour les régimes intermédiaire et balistique. Dans ces derniers régimes, la conductivité thermique κ croît lorsque L_2 augmente. De la même manière que précédemment, lorsque $L_2 \gg L_1$, κ tend vers la conductivité thermique de Ge massif et la CTE d'une bicouche Si/Ge est dominée par celle de Ge massif. Le changement de la monotonie de κ observé sur la Figure 2.14 (b) indique l'existence d'une épaisseur critique $L_1 = L_c$, de sorte que, pour $L_1 < L_c (L_1 > L_c)$, κ augmente (décroît) en fonction de L_2. A partir de l'équation (2.55) et le résultat reporté dans la Figure 2.14 (a), il est possible de déterminer l'épaisseur critique L_c en utilisant deux conditions différentes ; la première étant la différentiation $(\partial\kappa/\partial L_2)_{L_1=L_c} = 0$ et la deuxième est $\kappa(\lambda_2 = 0) = \kappa(\lambda_2 \to \infty)$. Compte tenu de la complexité de la formule (2.55), l'utilisation de la différentiation peut s'avérer fastidieuse et on peut tirer profit de l'équivalence entre les deux conditions. En effet, la deuxième condition donne :

$$\frac{\kappa_{02}}{\kappa_{01}}\left(1 + \frac{2\beta(\lambda_c) + f(\lambda_c)}{\lambda_c}\right) = 1 - \frac{2l_2}{l_1\lambda_c}, \tag{2.57}$$

où $\lambda_c = L_c/l_1$.

Nous avons énoncé qu'il n'existait qu'un très léger écart (environ 1%) entre le modèle de Majumdar (2.56) et le présent modèle (2.55) estimant la CTE. Donc, il est évident de pouvoir utiliser (2.56) pour déterminer l'épaisseur critique dans le cadre de l'approximation du milieu gris. Comme les deux conditions que l'on vient de citer sont équivalentes pour déterminer λ_c, on peut combiner l'une ou l'autre avec le résultat issu du modèle de Majumdar. Dans ce cas, il est plus facile d'exploiter la différentiation de l'équation (2.56). En faisant ainsi, on obtient :

$$\lambda_c = \frac{2(1/\kappa_{0i} + l_j/(l_i\kappa_{0j}))}{(1/\kappa_{0j} - 1/\kappa_{0i})}, \tag{2.58}$$

où $\lambda_c = L_i/l_i$. L'équation (2.58) est valide seulement pour $\kappa_{0i} > \kappa_{0j}$. Lorsque $L_i < L_c (L_i > L_c)$, la CTE est inférieure (supérieure) à κ_{0j}. L'existence d'une épaisseur critique λ_c permet d'identifier deux différents régimes de la CTE. En effet, la solution numérique de (2.57) permet d'obtenir cette épaisseur critique pour différents cristaux

semi-conducteurs, comme illustré sur la Figure 2.15. Cette figure représente la variation de l'épaisseur critique normalisée en fonction du rapport $(\kappa_{0i}/\kappa_{0j})$ pour différents cristaux semi-conducteurs. Plus le rapport $(\kappa_{0i}/\kappa_{0j})$ est petit, plus l'épaisseur critique augmente et tend vers l'infini quand ce rapport se rapproche de l'unité, ce qui est en accord avec (2.58). Par conséquent, l'équation (2.57) pourrait être utilisée comme un guide afin d'ajuster la CTE associée à deux couches en série déposées sur un substrat. Cela ne sera plus valide lorsque les variations de température à travers les couches sont très faibles et/où dans des structures de basse dimensionnalité.

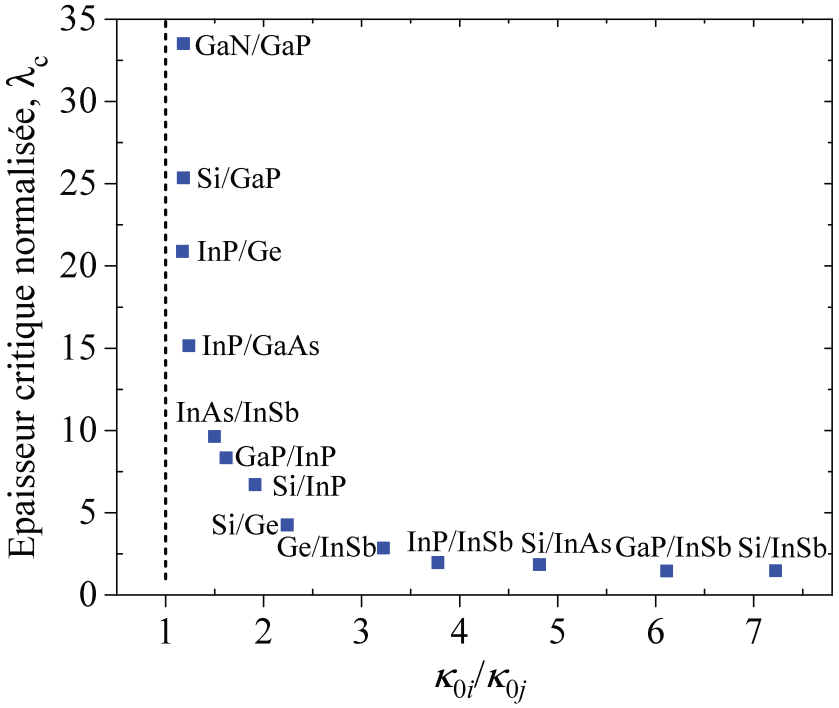

FIGURE 2.15 – Variation de l'épaisseur critique normalisée en fonction du rapport $(\kappa_{0i}/\kappa_{0j})$ pour différents cristaux semi-conducteurs. Les calculs ont été réalisés à partir des données du tableau 2.1.

2.4.2 N couches déposées sur un substrat

En procédant de la même façon que dans le cas de deux couches déposées sur un substrat, la généralisation de (2.55) peut se faire facilement pour N couches déposées sur un substrat, comme indiqué sur la Figure 2.16.

Lorsque la Niéme couche est de type A, où N est un nombre impair, la CTE peut se

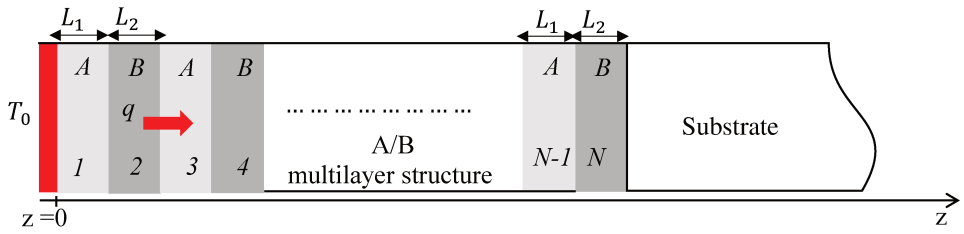

FIGURE 2.16 – Schéma représentatif d'un système composé de N couches déposées sur un substrat. Les calculs ont été faits à partir des données du tableau 2.1.

mettre sous la forme :

$$\frac{L_N}{\kappa} = \left(\frac{N+1}{2}\right)\frac{L_1}{\kappa_1} + \left(\frac{N-1}{2}\right)\frac{L_2}{\kappa_2} + (N-1)R(\lambda_1,\lambda_2), \tag{2.59}$$

où $2L_N = (N+1)L_1 + (N-1)L_2$ est égale à deux fois l'épaisseur totale du système multicouche. Si la dernière couche est de type B (donc N est un nombre pair quelconque), la CTE est donnée par la formule suivante :

$$\frac{L_N}{\kappa} = \left(\frac{N}{2}\right)\left(\frac{L_1}{\kappa_1} + \frac{L_2}{\kappa_2}\right) + (N-1)R(\lambda_1,\lambda_2). \tag{2.60}$$

En remplaçant (2.49a) dans (2.60), on obtient :

$$\frac{L_1+L_2}{\kappa} = \frac{L_1}{\kappa_{01}}\left(1 + \frac{2\left(\beta(\lambda_1) + (1-1/N)f(\lambda_1)\right)}{\lambda_1}\right) + \frac{L_2}{\kappa_{02}}\left(1 + \frac{2\left(\beta(\lambda_2) + (1-1/N)f(\lambda_2)\right)}{\lambda_2}\right). \tag{2.61}$$

L'équation (2.61) indique que la CTE diminue quand le nombre de couches augmente pour toute constante λ_1 et λ_2. La Figure 2.17 montre la variation de la CTE d'une structure multicouche Si/Ge en fonction de l'épaisseur normalisée de la couche de Si. Le calcul a été effectués pour deux valeurs différentes de l'épaisseur de la couche de Ge et pour deux valeurs différentes du nombre de couches; $N = 2$ et $N = \infty$. On peut voir que la conductivité thermique κ baisse avec l'augmentation du nombre de couches tout en gardant la même tendance en fonction de L_1/l_1, comme déjà représenté sur la Figure 2.14 (a). Pour $L = 10l_2$, la CTE associée à deux couches/substrat est approximativement égale à celle calculée pour N couches/substrat. Lorsque N est très grand, l'équation (2.61) conduit à :

$$\frac{L_1+L_2}{\kappa} = \frac{L_1}{\kappa_{01}}\left(1 + \frac{2\left(\beta(\lambda_1) + f(\lambda_1)\right)}{\lambda_1}\right) + \frac{L_2}{\kappa_{02}}\left(1 + \frac{2\left(\beta(\lambda_2) + f(\lambda_2)\right)}{\lambda_2}\right). \tag{2.62}$$

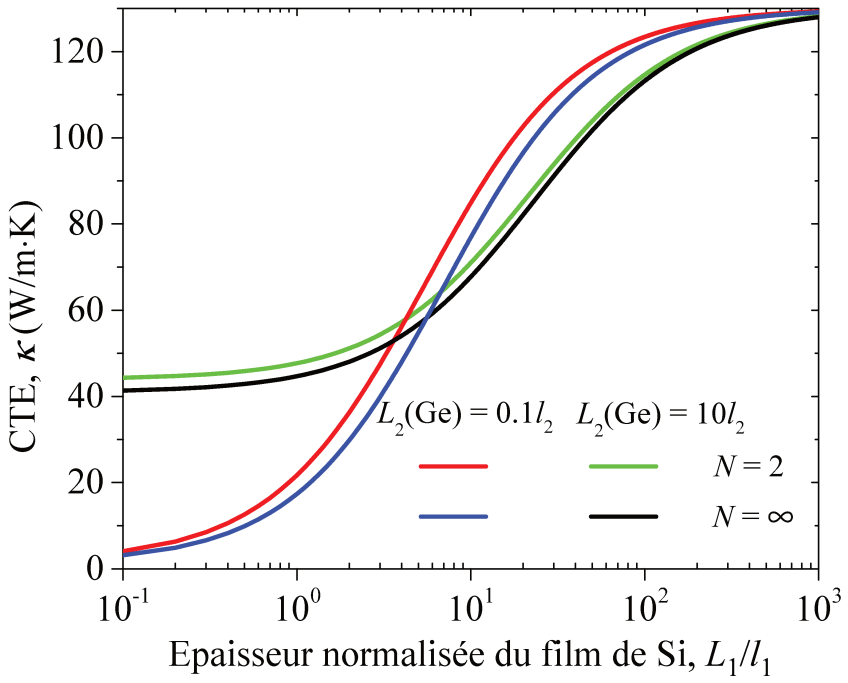

FIGURE 2.17 – Variation de la CTE d'une structure multicouche Si/Ge en fonction de l'épaisseur normalisée de la couche de Si, pour deux valeurs différentes du nombre de couches ; $N = 2$ et $N = \infty$.

Il est très important de remarquer les similarités entre les équations (2.55) et (2.62). De façon plus générale, on peut directement montrer que :

$$\frac{L_1+L_2}{\kappa(N)} - \frac{L_1+L_2}{\kappa(N=2)} = 3\left(1-\frac{2}{N}\right)\left(\frac{f(\lambda_1)}{\rho_1 c_1 v_1} + \frac{f(\lambda_2)}{\rho_2 c_2 v_2}\right) = \left(1-\frac{2}{N}\right) R(\lambda_1,\lambda_2). \quad (2.63)$$

L'expression (2.63) permet d'exprimer la CTE de N couches en fonction de celle de la bicouche. En effet, on obtient :

$$\kappa(N) = \frac{\kappa(N=2)}{1+\left(1-\frac{2}{N}\right) R(\lambda_1,\lambda_2)\frac{\kappa(N=2)}{L_1+L_2}} \approx \kappa(N=2)\left[1-\left(1-\frac{2}{N}\right) R(\lambda_1,\lambda_2)\frac{\kappa(N=2)}{L_1+L_2}\right]. \quad (2.64)$$

Il est important de noter que (2.64) est valable seulement dans le cas où les variations de température à travers les couches sont très faibles et/où dans des structures de basse dimensionnalité. Dans ce cas, la conductivité thermique associée à une bicouche peut très bien décrire celle de N couches.

2.5 Conclusion

Nous avons présenté la solution analytique explicite de l'ETB dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation et du spectre gris obtenue pour le profil de température stationnaire monodimensionnel dans une couche déposée sur un substrat. Nous avons montré que cette solution peut s'exprimer en fonction de la RTI sous une forme similaire à celle que l'on obtiendrait avec la loi de Fourier. Nous avons montré également que la RTI présente un caractère non intrinsèque et asymétrique en fonction de la nature du régime du transport des phonons dans la couche d'épaisseur finie. Les valeurs asymptotiques de cette résistance d'interface dans le régime balistique sont supérieures à celles dans le régime diffusif, alors que dans le régime intermédiaire, elles dépendent fortement du rapport $\lambda = L/l$ entre l'épaisseur de la couche L et le LPM, l, des phonons. Nos résultats sont en bon accord avec les prédictions du DMM dans le régime balistique, tandis que l'écart entre les deux modèles ne dépasse pas 16% dans la limite diffusive. En effet, notre modèle théorique (2.33) représente une généralisation du DMM en tenant compte de l'effet du régime de transport sur la RTI. En revanche, nous avons montré que la CTE d'un système multicouches augmente avec l'épaisseur jusqu'à atteindre sa valeur de saturation. La CTE d'une bicouche/substrat représente une bonne approximation de celle obtenue pour N couches/substrat dans la plupart des situations pratiques. Nos résultats peuvent être utiles pour décrire le transport thermique dans les nanocouches diélectriques, notamment le transport à l'interface, du moment que l'approximation du milieu gris est valide. Dans le chapitre suivant, nous allons étudier l'influence du régime de transport et de la fréquence de modulation sur la RTI en résolvant (2.10b).

Chapitre 3

Effet de la fréquence de modulation sur la résistance thermique d'interface

Sommaire

3.1 Introduction 83
3.2 Solution analytique de l'ETB en régime fréquentiel 83
3.2.1 Effet de la fréquence de modulation sur le profil de température . 87
3.2.2 Effet de la fréquence de modulation sur la densité du flux de chaleur 90
3.3 Expression analytique de la RTI en régime dynamique 93
3.4 Résultats et discussion 95
3.5 Conclusion 99

3.1 Introduction

Après avoir étudié l'effet de la nature du régime du transport des phonons sur la RTI en exploitant la solution analytique de l'ETB en régime stationnaire, nous allons maintenant nous intéresser à l'étude de la RTI en régime fréquentiel. Nous commençons d'abord ce chapitre par présenter la solution analytique de l'ETB en régime fréquentiel dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation et du spectre gris. Cette solution nous permet de décrire les variations de la température et de la densité du flux de chaleur dans une couche déposée sur un substrat. Ensuite, nous étudions le comportement de la RTI en fonction de la fréquence de modulation et de la nature du régime du transport des phonons dans la couche d'épaisseur finie. Enfin, nous proposons une méthode pour déterminer les propriétés physiques intrinsèques de la couche d'épaisseur finie particulièrement, le LPM et le temps de relaxation des phonons.

3.2 Solution analytique de l'ETB en régime fréquentiel

Ce chapitre reprend en partie l'article [Ala18b] relatif à l'impact de la fréquence de modulation ainsi que la nature du régime du transport des phonons sur la RTI. On considère un système diélectrique composé de deux couches, où la couche d'épaisseur finie est excitée à la surface $z = 0$ à l'aide d'un faisceau laser d'intensité modulée, comme représenté sur la Figure 3.1. La surface en $z = 0$ est irradiée par une excitation thermique de type (2.1).

En procédant de la même façon que dans le cas du régime stationnaire, la solution ana-

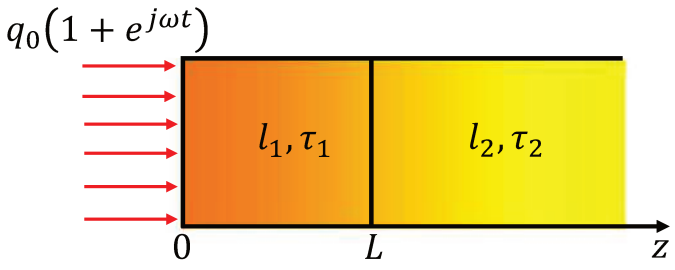

FIGURE 3.1 – Couche d'épaisseur finie L déposée sur un substrat semi-infini. l_i et τ_i $(i = 1, 2)$ désignent le LPM et le temps de relaxation de chaque couche, respectivement. La surface en $z = 0$ est soumise à une excitation thermique modulée.

lytique de (2.10b) est donnée par :

$$\begin{cases} J_1^+(x,\mu) = \dfrac{C_1^+}{\pi} e^{-\chi_1 x/\mu} + \dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_0^x J_{01}(x') e^{-\chi_1 (x'-x)/\mu} dx', & \text{(3.1a)} \\ J_1^-(x,\mu) = \dfrac{C_1^-}{\pi} e^{-\chi_1 (\lambda - x)/\mu} - \dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_x^\lambda J_{01}(x') e^{-\chi_1 (x'-x)/\mu} dx', & \text{(3.1b)} \\ J_2^+(x,\mu) = \dfrac{C_2^+}{\pi} e^{-\chi_2 x/\mu} + \dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_0^x J_{02}(x') e^{-\chi_2 (x'-x)/\mu} dx', & \text{(3.1c)} \\ J_2^-(x,\mu) = -\dfrac{1}{\mu}\displaystyle\int_x^\infty J_{02}(x') e^{-\chi_2 (x'-x)/\mu} dx', & \text{(3.1d)} \end{cases}$$

où $\lambda = L/l_1$ et l'intensité J_i se décompose en deux termes : l'un $J_i(x,\mu) = J_i^+(x,\mu)$ pour $0 < \mu < 1$ et l'autre $J_i(x,\mu) = J_i^-(x,\mu)$ pour $-1 < \mu < 0$. Les composantes modulées de la température $J_{0i}(x)$ et de la densité de flux de chaleur $q_{ti}(x,t)$ sont données par les formules [Maj93] :

$$J_{0i}(x) = \frac{1}{2}\int_0^1 \left[J_i^+(x,\mu) + J_i^-(x,-\mu)\right] d\mu, \tag{3.2a}$$

$$q_{ti}(x) = \int_{\phi=4\pi} J cos\theta d\phi = 2\pi \int_0^1 \left[J_i^+(x,\mu) - J_i^-(x,-\mu)\right] \mu d\mu, \tag{3.2b}$$

où $d\phi = 2\pi \sin\theta d\theta$ est l'angle solide dans une direction de propagation donnée.

En insérant les équations (3.1a)− (3.1d) dans (3.2a)− (3.2b), on obtient :

$$2J_{01}(x) = \frac{C_1^+}{\pi} E_2(\chi_1 x) + \frac{C_1^-}{\pi} E_2\left(\chi_1 (\lambda - x)\right) + \int_0^\lambda J_{01}(x') E_1(\chi_1 \left|x - x'\right|) dx', \tag{3.3a}$$

$$2J_{02}(x) = \frac{C_2^+}{\pi} E_2(\chi_2 x) + \int_0^\infty J_{02}(x') E_1(\chi_2 \left|x - x'\right|) dx', \tag{3.3b}$$

$$\frac{q_{t1}(x)}{2} = C_1^+ E_3(\chi_1 x) - C_1^- E_3\left(\chi_1 (\lambda - x)\right) - \frac{\pi}{\chi_1}\frac{d}{dx}\int_0^\lambda J_{01}(x') E_3(\chi_1 \left|x - x'\right|) dx', \tag{3.3c}$$

$$\frac{q_{t2}(x)}{2} = C_2^+ E_3(\chi_2 x) - \frac{\pi}{\chi_2}\frac{d}{dx}\int_0^\infty J_{02}(x') E_3(\chi_2 \left|x - x'\right|) dx', \tag{3.3d}$$

Comme dans le cas stationnaire, les paramètres $C_1^\pm$ et C_2^+ sont calculés en appliquant le principe de conservation de l'énergie au niveau des surfaces $z = 0$ et $z = L$. D'après

l'équation (2.7) et la Figure 2.2, on peut facilement montrer que :

$$\begin{cases} 2\pi \int_0^1 J_1^+(0,\mu)\mu d\mu = 2\pi \int_0^1 J_1^-(0,-\mu)\mu d\mu + q_0, & \text{(3.4a)} \\ \int_0^1 J_1^-(\lambda,-\mu)\mu d\mu = R_{12} \int_0^1 J_1^+(\lambda,\mu)\mu d\mu + T_{21} \int_0^1 J_2^-(0,-\mu)\mu d\mu, & \text{(3.4b)} \\ \int_0^1 J_2^+(0,\mu)\mu d\mu = R_{21} \int_0^1 J_2^-(0,-\mu)\mu d\mu + T_{12} \int_0^1 J_1^+(\lambda,\mu)\mu d\mu, & \text{(3.4c)} \end{cases}$$

où les coefficients R_{ij} et T_{ij} sont calculés à partir de l'équation (2.20). La combinaison des équations (3.1a)− (3.1d) avec (3.4a)− (3.4c) conduit à :

$$\begin{cases} C_1^+ = q_0 + 2C_1^- E_3(\chi_1\lambda) + 2\int_0^\lambda \pi J_{01}(x) E_2(\chi_1 x)\, dx, & \text{(3.5a)} \\ \dfrac{C_2^+}{T_{12}} = \dfrac{C_1^-}{R_{12}}, & \text{(3.5b)} \\ \dfrac{C_2^+}{2T_{12}} = C_1^+ E_3(\chi_1\lambda) + \int_0^\lambda \pi J_{01}(x) E_2(\chi_1(\lambda - x))\, dx + \int_0^\infty \pi J_{02}(x) E_2(\chi_2 x) dx. & \text{(3.5c)} \end{cases}$$

Les équations (3.3a)− (3.3d) déterminent complètement les profils de température $J_{0n}(x)$ et de densité de flux de chaleur monodimensionnel $q_{tn}(x)$ dans la couche $n(n = 1;2)$, mais il est impossible de les résoudre directement. Comme on l'a mentionné dans le chapitre 2, ce système d'équations a été approximativement résolu par Ordonez-Miranda et al. [OM15] en se basant sur la MOD. Pour plus de détails sur la méthode de résolution, le lecteur est invité à consulter le travail d'Ordonez-Miranda et al. [OM15]. En effet, on montre que la solution analytique du système d'équations (3.3a)− (3.3d) peut être écrite sous la forme :

$$\begin{cases} J_{01}(x) = \dfrac{3q_0}{4\pi\eta_1}\left[Ae^{\eta_1 x} + Be^{-\eta_1 x} + C\left(M(x) - M(\lambda - x)\right)\right], & \text{(3.6a)} \\ J_{02}(x) = \dfrac{3q_0}{4\pi\eta_2} a_2^+ \left(e^{-\eta_2 x} - \eta_2 M(x)\right), & \text{(3.6b)} \\ q_{t1}(x) = q_0\left[-Ae^{\eta_1 x} + Be^{-\eta_1 x} + C\eta_1\left(M_1(x) + M_1(\lambda - x)\right)\right], & \text{(3.6c)} \\ q_{t2}(x) = q_0 a_2^+ \left(e^{-\eta_2 x} - \eta_2^2 M_1(x)\right), & \text{(3.6d)} \\ & \text{(3.6e)} \end{cases}$$

où $a_i^\pm = (4\eta_i/3q_0)\, C_i^\pm$, $\eta_i = \sqrt{3j\omega\tau_i}$, $A_0 = -3.97433$ et $B_0 = 9.17085$. Les fonctions $M(x)$ et $M_1(x)$ décrivent les effets balistiques et deviennent nuls lorsque $z \gg l$ (Figure 3.2). En

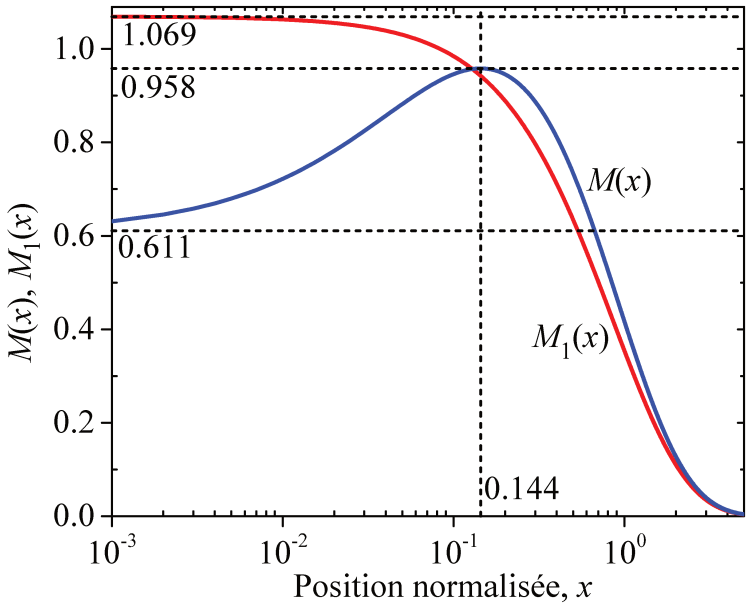

FIGURE 3.2 – Variation des fonctions $M(x)$ et $M_1(x)$ en fonction de la position normalisée $x = z/l$.

évaluant les relations (3.3a) et (3.3c) en $x = 0$, on obtient :

$$2J_{01}(x=0) = \frac{C_1^+}{\pi} + \frac{C_1^-}{\pi}E_2(\lambda) + \int_0^\lambda J_{01}(y)E_1(y)dy, \tag{3.7a}$$

$$\frac{q_{t1}(x=0)}{2\pi} = \frac{C_1^+}{2\pi} - \frac{C_1^-}{\pi}E_3(\lambda) - \int_0^\lambda J_{01}(y)E_2(y)dy. \tag{3.7b}$$

Il est à noter, comme on l'a mentionné dans le chapitre 2, que l'on fait l'approximation que $\chi_1 = 1 + j\omega\tau_1 \approx 1$. En insérant la relation (3.6a) dans (3.7a)−(3.7b), on obtient le système d'équations suivant :

$$\begin{pmatrix} 1+e^{\eta_1\lambda} & 1+e^{-\eta_1\lambda} & 0 \\ 2-\alpha_1^+ & 2-\alpha_1^- & \gamma \\ \alpha_2^+ - \frac{2}{3}\eta_1 & \alpha_2^- + \frac{2}{3}\eta_1 & \beta_2 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} A \\ B \\ C \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ \frac{1}{2} \end{pmatrix} a_1^+ + \begin{pmatrix} 1 \\ E_2(\lambda) \\ -E_3(\lambda) \end{pmatrix} a_1^-, \tag{3.8}$$

où $\gamma = 2\left(M(0) - M(\lambda)\right) - \beta_1$ et

$$\alpha_n^\pm = \int_0^\lambda e^{\pm\eta_1 z}E_n(z)dz, \tag{3.9a}$$

$$\beta_n = \int_0^\lambda \left(M(z) - M\left(\lambda - z\right)\right)E_n(z)dz. \tag{3.9b}$$

Les paramètres A, B et C peuvent aisément être obtenus en fonction de l'épaisseur normalisée, de la fréquence de modulation et de $a_i^\pm$. En reportant les relations (3.6a) et (3.6b)

dans le système d'équations (3.5a)−(3.5c), on peut alors écrire :

$$\left(S^{+}+E_3(\lambda)\right)a_1^{+}+\Omega a_1^{-}=0, \tag{3.10a}$$

$$(V^{+}-\frac{1}{2})a_1^{+}+(V^{-}+E_3(\lambda))a_1^{-}=-\frac{2\eta_1}{3}, \tag{3.10b}$$

où $a_2^{+}=\sqrt{\tau_2/\tau_1}a_1^{-}/\delta_{12}$, $\delta_{12}=\rho_1c_1v_1/\rho_2c_2v_2$ et

$$\Omega=S^{-}-\frac{1}{\delta_{12}}\left(\frac{1}{2T_{12}}+\frac{\eta_2}{3}+\frac{\ln(1+\eta_2)-\eta_2}{\eta_2^2}\right), \tag{3.11a}$$

$$V^{\pm}=\alpha_2^{+}a^{\pm}+\alpha_2^{-}b^{\pm}+\beta_2c^{\pm}, \tag{3.11b}$$

$$S^{\pm}=\alpha_2^{-}e^{\eta_1\lambda}a^{\pm}+\alpha_2^{+}e^{-\eta_1\lambda}b^{\pm}-\beta_2c^{\pm}, \tag{3.11c}$$

et les paramètres $a^{\pm}$, $b^{\pm}$ et $c^{\pm}$ sont calculés directement à partir du système d'équations (3.8), de sorte que, $A=a^{+}a_1^{+}+a^{-}a_1^{-}$, $B=b^{+}a_1^{+}+b^{-}a_1^{-}$ et $C=c^{+}a_1^{+}+c^{-}a_1^{-}$. Par conséquent, l'incorporation des expressions (3.10a)−(3.10b) et (3.11a)−(3.11c) dans le système d'équations (3.6a) et (3.6b) détermine entièrement le profil de température modulé ($\psi_n(x)=4\pi J_{0n}(x)/(\rho_nc_nv_n)$) ainsi que la densité de flux de chaleur dans les deux couches du système présenté sur la Figure 3.1.

3.2.1 Effet de la fréquence de modulation sur le profil de température

Sur la Figure 3.3, on présente la partie réelle de la température modulée à la surface éclairée ($z=0$) d'un film de Si, avec deux épaisseurs différentes, déposé sur un substrat de Ge. Les courbes en pointillés ont été obtenues à partir de l'équation de la chaleur en combinaison avec le modèle DMM qui a été utilisé pour estimer la RTI. La procédure de calcul est reportée dans l'annexe C. Le choix s'est porté sur le modèle DMM parce que celui-ci est plus adapté aux interfaces rugueuses à température élevée [Alv10], ce que l'on suppose être le cas pour le présent travail.

Comme on peut le voir, les résultats obtenus en utilisant la solution de l'ETB sont en très bon accord avec la loi de Fourier dans la limite diffusive ($L=100l_1$), et en particulier lorsque $\omega\tau_1\to 0$. Cela confirme les résultats reportés dans le chapitre 2. Comme nous l'avons indiqué auparavant, les valeurs typiques du temps de relaxation des phonons à la température ambiante sont $\tau_i<10^{-10}$ s pour la plupart des matériaux diélectriques, ce qui justifie la validité de la loi de Fourier quand $f=\omega/2\pi\ll 1$GHz. D'autre part, on

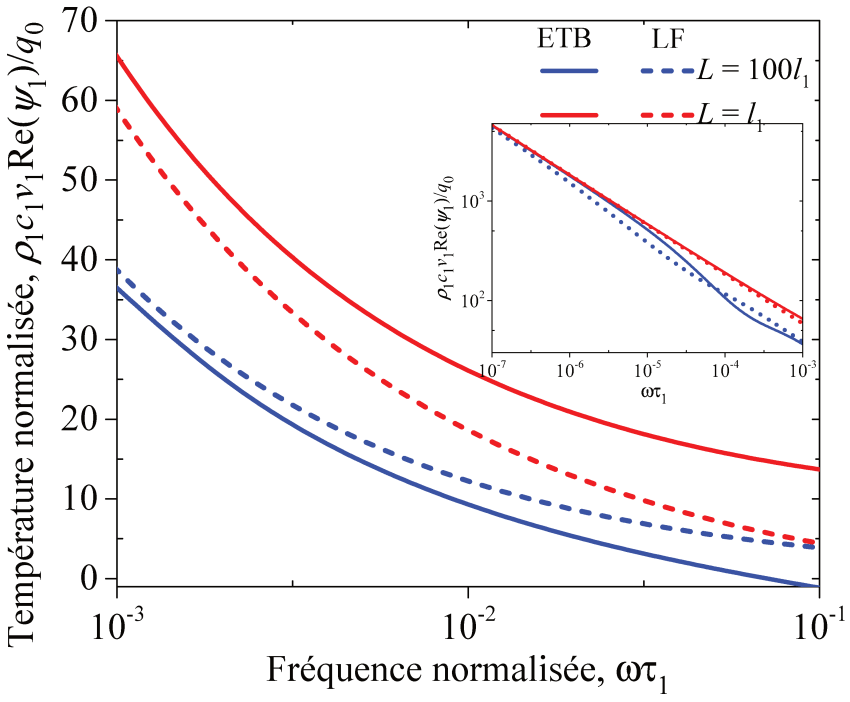

FIGURE 3.3 – Variation de la partie réelle de la température en fonction de la fréquence de modulation à la surface éclairée ($z = 0$), comparaison entre les prédictions de l'ETB et celles de Fourier.

constate que la température obtenue en utilisant l'ETB prend des valeurs supérieures à celles de Fourier à mesure que l'épaisseur du film devient du même ordre de grandeur que le LPM des phonons ($L = l_1$). Il est clair que l'écart entre les deux modèles diminue en diminuant la fréquence de modulation. Pour une épaisseur de $L = l_1$, les résultats de l'ETB différent de ceux calculés par la loi de Fourier, comme dans le régime stationnaire [Ala18a]. Cela est principalement dû au fait qu'en régime balistique, les collisions entre phonons sont minoritaires et l'équilibre thermodynamique global et par conséquent, le gradient de température ne peuvent être établis. Par ailleurs, lorsque la fréquence de modulation s'approche de zéro, les résultats de l'ETB sont en parfait accord avec les prédictions de Fourier quelque soit l'épaisseur du film de Si. Ce résultat est attendu, car lorsque $\omega\tau_1 \to 0$, les valeurs de la température divergent ($\psi_1 \propto 1/\sqrt{\omega\tau_1}$)[OM09] et l'effet de l'épaisseur devient négligeable. Cela nous a poussé à travailler avec des fréquences appartenant à l'intervalle $0 < \omega\tau_1 \leq 0.1$. Comme nous l'avons mentionné à plusieurs reprises, la loi de Fourier ne peut pas être utilisée [Ber04] pour décrire le transfert de chaleur dans les nanocouches diélectriques. En effet, dans ce cas, la conduction des phonons est essentiellement gouvernée par les effets de bords et d'interfaces et l'utilisation de l'ETB devient donc indispensable.

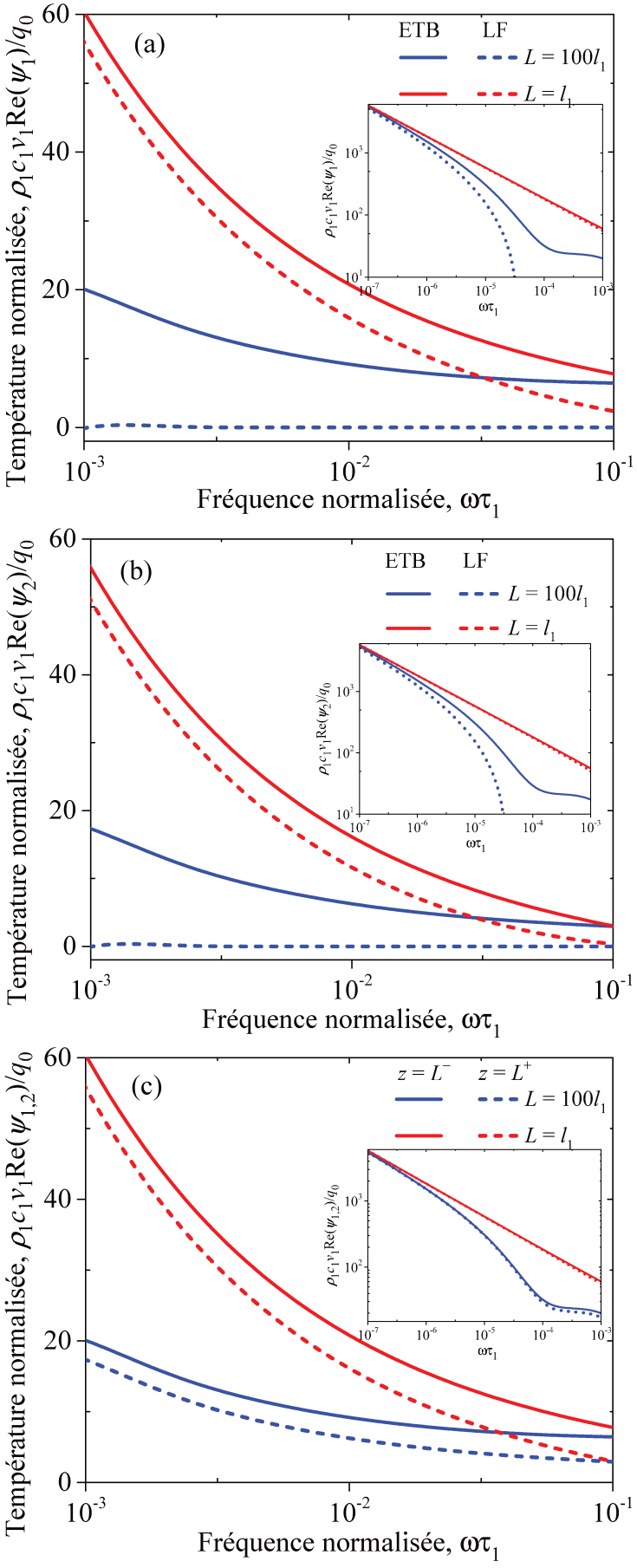

FIGURE 3.4 – Variation de la partie réelle de la température en fonction de la fréquence de modulation en $z = L^-$ (a), $z = L^+$ (b) et $z = L^-$ et $z = L^+$ (c) en utilisant seulement l'ETB. Les calculs ont été réalisés pour une couche de Si déposée sur un substrat de Ge.

Il est bien connu qu'en régime stationnaire, la RTI est définie comme la mesure des sauts de température qui se produisent à l'interface entre deux matériaux différents. Ces sauts de températures atteignent des valeurs élevées quand le transport des phonons dans la couche d'épaisseur finie est balistique [Ala18a]. L'étude de la résistance thermique dans les deux régimes stationnaire et dynamique a été déjà abordée par Regner et al. [Reg14] pour les configurations plane et sphérique. Ce modèle repose sur les expressions analytiques de la température modulée et de la densité de flux de chaleur obtenues à partir de l'ETB, en ignorant la RTI. La question légitime que l'on peut se poser, est toutefois : comment la fréquence de modulation peut affecter les sauts de température ainsi que la RTI ?

Pour voir l'influence de la fréquence de modulation sur les sauts de température, nous avons présenté la variation de la température normalisée en $z = L^-$ et $z = L^+$ en fonction de la fréquence de modulation, comme illustré dans les Figures 3.4 (a) et 3.4 (b). Les calculs ont été effectués pour un film de Si d'épaisseur L_1(Si) = l_1 et $100l_1$ déposé sur un substrat de Ge. Comme on peut le voir, la loi de Fourier devient erronée pour décrire le transport de chaleur à l'interface même dans le cas du régime diffusif ($L = 100l_1$). Ce résultat est dû à la décroissance rapide de la température calculée à l'aide de la loi de Fourier. Il est important de noter que la fréquence de modulation affecte de manière considérable les sauts de température à l'interface, comme indiqué à la Figure 3.4 (c). Dans le chapitre 2, nous avons montré que les sauts de températures augmentent en diminuant l'épaisseur de la couche, ce qui est également le cas pour la conduction thermique en régime dynamique. Dans le paragraphe suivant, nous allons étudier l'effet de la fréquence de modulation sur le flux thermique qui traverse l'interface.

3.2.2 Effet de la fréquence de modulation sur la densité du flux de chaleur

Les Figures 3.5 (a) et 3.5 (b) montrent le comportement de la densité du flux de chaleur normalisé q_t/q_0 à l'interface entre une couche d'épaisseur finie et un substrat de matériaux diélectriques en fonction de la fréquence de modulation pour $L = 100l_1$ et $L = l_1$, respectivement. Les calculs ont été effectués pour quatre interfaces différentes entre matériaux diélectriques différents. A basses fréquences, les résultats de l'ETB se coïncident avec ceux obtenus en appliquant la loi de Fourier, indépendamment des propriétés thermiques des interfaces. Ceci est cohérent avec les résultats trouvés dans le

paragraphe 3.2.1. Dans le cas où l'épaisseur de la couche finie est largement supérieure au LPM des phonons, on peut remarquer que la fonction $\mathrm{Re}(q_t)/q_0$ change de monotonie en fonction de la fréquence de modulation, comme illustré sur la Figure 3.5 (a). Cela indique l'existence d'une fréquence caractéristique $f_1 = f_c$, de sorte que pour $f_1 < f_c$ ($f_1 > f_c$), $\mathrm{Re}(q_t)/q_0$ décroît (augmente) en fonction de $\omega\tau_1$.
D'après l'équation (3.6c), la densité de flux de chaleur modulé dans la couche d'épaisseur finie s'écrit sous une forme similaire à celle que l'obtiendrait pour les ondes thermiques ($Ae^{\eta_1 x}$: onde incidente, $Be^{-\eta_1 x}$: onde réfléchie). Ces ondes peuvent être réfléchies et transmises à l'interface $(x = \lambda)$. Dans le cas où le régime du transport des phonons est purement diffusif ($L \gg l_1$), l'interférence destructive de ces ondes thermiques conduit à minimiser le flux thermique [Gle10]. Ceci est dû à la présence des collisions entre phonons, ce qui justifie la dépendance en fréquence du flux thermique. La fréquence caractéristique f_c à laquelle le flux atteint sa valeur minimale est peu dépendante des propriétés thermiques des couches et son expression sera déterminée dans la section 3.3.

Tout récemment, Vales et al. [VP12] ont montré qu'il existe une fréquence caractéristique à laquelle l'amplitude (phase) du signal thermique atteint son maximum (minimum). Cette fréquence caractéristique est indépendante des propriétés thermiques d'un système à deux couches. Ce résultat confirme ce qu'on voit sur la Figure 3.5 (a). Les valeurs de cette fréquence caractéristique ont été comparées avec les résultats expérimentaux afin d'extraire les propriétés thermiques des matériaux [VP12 ; Lim06]. A basses fréquences $(\omega\tau_1 \to 0)$, le flux thermique normalisé tend vers l'unité et devient indépendant de la fréquence de modulation. Ceci est en bon accord avec les résultats en régime stationnaire.

La Figure 3.5 (b) montre le comportement de q_t/q_0 pour les quatre cas étudiés dans la Figure 3.5 (a) où l'épaisseur de la couche est de même ordre de grandeur que le LPM des phonons. On observe que la densité de flux de chaleur calculée à partir de la loi de Fourier est différente de celle de l'ETB. Dans le régime intermédiaire $(L = l_1)$, la variation du flux thermique en fonction de la fréquence de modulation est quasiment très faible. Par contre, dans le cas diffusif $(L \gg l_1)$, la densité de flux de chaleur change de manière significative avec la fréquence (Figure 3.5 (a)). Comme on peut le voir, la fréquence caractéristique $f_1 = f_c$ disparaît lorsque l'épaisseur de la couche devient comparable au LPM des phonons. Cela est attendu, car lorsque $L \sim l_1$, les interactions phonon-phonon, sont

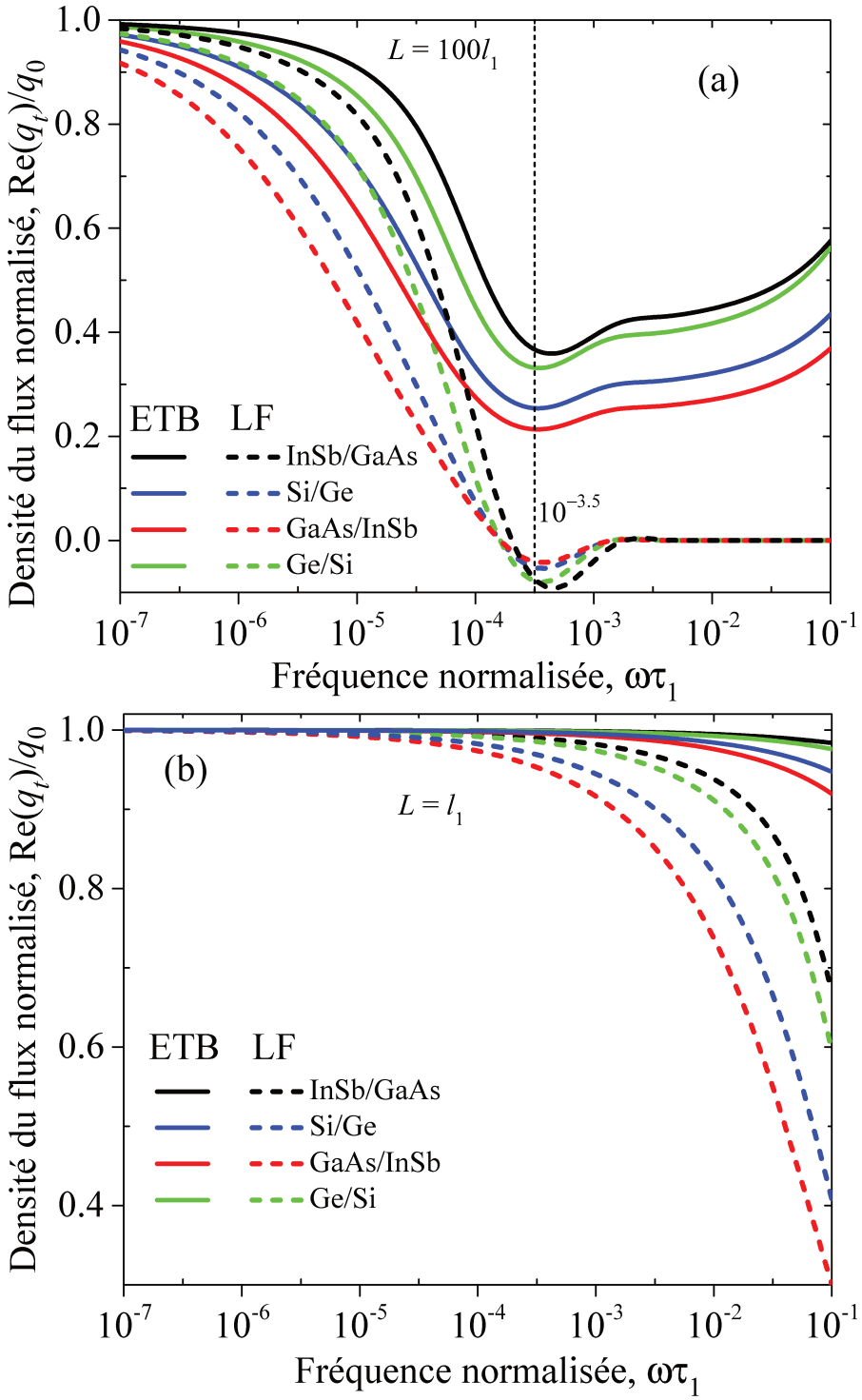

FIGURE 3.5 – Variation de la partie réelle de la densité du flux normalisé q_t/q_0 en fonction de la fréquence de modulation à l'interface entre matériaux diélectriques différents (a) $L = 100l_1$ et (b) $L = l_1$, respectivement.

peu présentes, et l'aspect d'onde thermique dans la densité de flux de chaleur devient négligeable. Après avoir étudié l'effet de la fréquence de modulation et la nature du régime du transport des phonons sur les profils de température et de la densité de flux de chaleur, nous allons voir dans ce qui suit comment ces paramètres peuvent influencer la RTI.

3.3 Expression analytique de la RTI en régime dynamique

Comme nous l'avons montré dans le chapitre 2, l'intensité des phonons à l'équilibre I_{0i} est proportionnelle au profil de température par la relation T_i ($4\pi I_{0i}(x,t) = \rho_i c_i v_i T_i(x,t)$). D'après l'équation (2.9), nous avons $T_i(x,t) = T_{idc}(x) + \mathrm{Re}\left[\psi_i(x)e^{j\omega t}\right]$, où $T_{idc}(x)$ et $\psi_i(x)$ sont les composantes stationnaire et modulée de la température, respectivement. Dans le chapitre 2, nous avons établi l'expression analytique de $T_{idc}(x)$, alors que $\psi_i(x) = 4\pi J_{0i}/(\rho_i c_i v_i)$ est donné par les formules (3.6a) et (3.6b). Lorsqu'un flux de chaleur traverse une interface entre deux matériaux différents, une discontinuité de température apparaît (Figure 3.4 (c)), conduisant à une RTI effective :

$$R_{\text{eff}} = \frac{T_1(x=\lambda,t) - T_2(x=0,t)}{q(\lambda,t)}, \tag{3.12}$$

où $q(\lambda,t) = q_0 + \mathrm{Re}\left[q_t(\lambda)e^{j\omega t}\right]$ désigne la densité de flux thermique total.
Par application du principe de la conservation de l'énergie à l'interface, on peut écrire :

$$q_t(\lambda) = q_{t1}(x=\lambda) = q_{t2}(x=0). \tag{3.13}$$

Par souci de clarté, on peut réécrire la relation (3.12) sous la forme :

$$R_{\text{eff}} = R_{dc}\frac{1}{1+q^*} + R_{ac}\frac{q^*}{1+q^*}, \tag{3.14}$$

où $q^* = \mathrm{Re}\left[(q_t(\lambda)/q_0)e^{j\omega t}\right]$.
L'expression analytique de la RTI en régime stationnaire (R_{dc}) est déjà présentée dans le chapitre 2, tandis que son expression en régime dynamique est donnée par la formule suivante :

$$R_{ac} = \frac{\mathrm{Re}\left[(\psi_1(x=\lambda) - \psi_2(x=0))\,e^{j\omega t}\right]}{\mathrm{Re}\left[q_t(\lambda)e^{j\omega t}\right]}. \tag{3.15}$$

Dans la suite du présent chapitre, nous nous intéresserons seulement à la composante modulée de la RTI (R_{ac}). En effet, en substituant les relations (3.6a), (3.6b) et (3.6d) dans (3.15), on obtient :

$$R_{ac} = \frac{3}{\rho_1 c_1 v_1 \mathrm{Re}\left[a_2^+\left(1-\eta_2^2 M_1(0)\right)\right]} \times \mathrm{Re}\left[\frac{Ae^{\eta_1\lambda} + Be^{-\eta_1\lambda} + C\left(M(\lambda) - M(0)\right)}{\eta_1} - \frac{a_2^+\delta_{12}}{\eta_2}\left(1-\eta_2 M(0)\right)\right]. \tag{3.16}$$

Lorsque l'épaisseur de la couche est beaucoup plus grande que le LPM des phonons ($\lambda \gg 1$), les expressions des paramètres A, B et C se simplifient à 0, a_1^+ et $-\eta_1 a_1^+$, respectivement. En substituant ces nouvelles expressions et on se plaçant en régime stationnaire ($\omega\tau_1 \to 0$), l'équation (3.16) se réduit à :

$$R_{ac} = 3\left(\frac{1}{\rho_1 c_1 v_1} + \frac{1}{\rho_2 c_2 v_2}\right) M(0), \tag{3.17}$$

où $M(0) = 0.611$ (Figure 3.2). En comparant la relation (3.17) avec la composante stationnaire de la RTI en régime diffusif, on peut écrire :

$$\frac{R_{ac}(\lambda\to\infty) - R_{dc}(\lambda\to\infty)}{R_{dc}(\lambda\to\infty)} \times 100 = \sqrt{3}M(0) - 1 \approx 6\%. \tag{3.18}$$

Ce pourcentage d'erreur est raisonnable car (2.10b) se réduit à (2.10a) pour des fréquences de modulation $\omega\tau_i \ll 1$. On peut aussi remarquer que le pourcentage d'erreur entre (3.17) et les prédictions du modèle DMM ne dépasse pas 10%. D'autre part, en régime balistique ($\lambda \ll 1$) et lorsque $\omega\tau_1 \to 0$, (3.16) devient

$$R_{ac} = \frac{2}{\rho_1 c_1 v_1} + \frac{3M(0)}{\rho_2 c_2 v_2}. \tag{3.19}$$

Il est important de noter que l'expression (3.19) est non-symétrique vis-à-vis des propriétés thermiques $\rho_1 c_1 v_1$ et $\rho_2 c_2 v_2$ ($2 \neq 3M(0)$). Par conséquent, R_{ac} devient indépendante de l'épaisseur de la couche et de la fréquence de modulation dans les deux limites diffusive et balistique. Cependant, dans le régime intermédiaire, R_{ac} dépend à la fois de l'épaisseur de la couche et de la fréquence de modulation. La relation (3.16) est obtenue à partir de la solution analytique explicite de l'ETB ((3.6a), (3.6b) et (3.6d)), tandis

que le modèle DMM est calculé en se basant sur la solution implicite de l'ETB [Che98]. Même si le modèle DMM est plus adapté aux interfaces rugueuses à des températures très élevées, ses prédictions ne confirment pas souvent les résultats de simulation atomistique [Kak17]. Par conséquent, la relation (3.16) représente une généralisation du modèle DMM et montre que la RTI en régime intermédiaire dépend du rapport $\lambda = L/l_1$ et de la fréquence de modulation, ce qui est le cas pour la conductivité thermique des matériaux diélectriques et semi-conducteurs [Che98 ; Ezz12].

3.4 Résultats et discussion

Sur les Figures 3.6 et 3.7, nous présentons le comportement de la RTI en régime dynamique (R_{ac}) en fonction de l'épaisseur normalisée L/l_1 et de la fréquence de

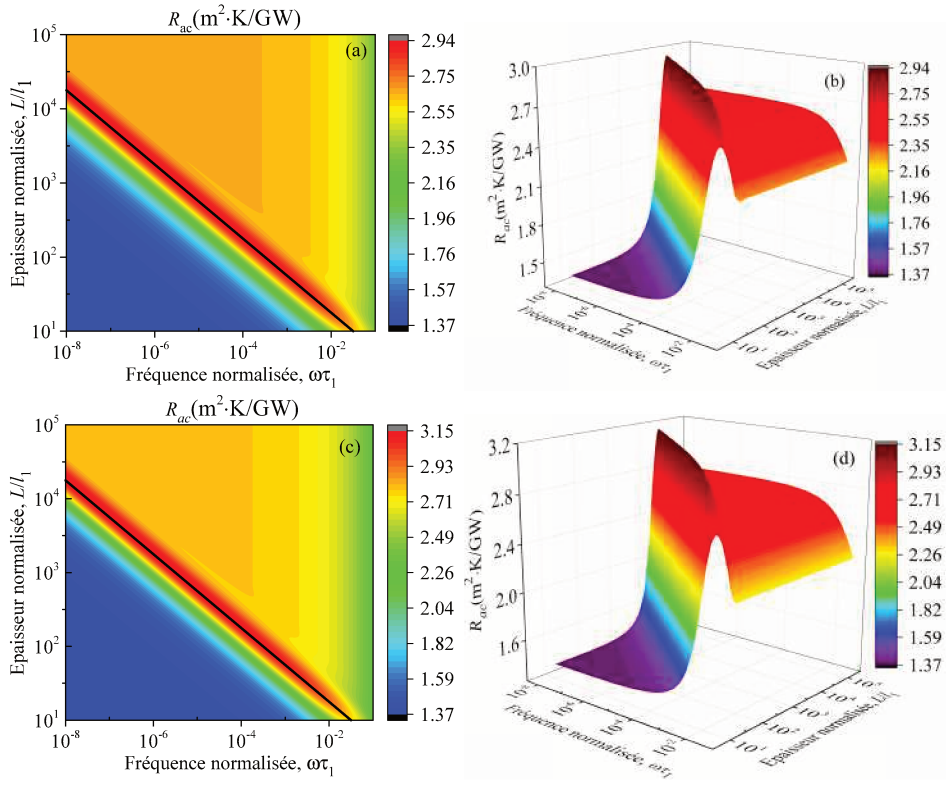

FIGURE 3.6 – R_{ac} en fonction de l'épaisseur normalisée L/l_1 et de la fréquence de modulation $\omega\tau_1$. Si film/Ge substrat (a et b) et Ge film/Si substrat (c et d).

modulation $\omega\tau_1$. Les calculs ont été réalisés pour quatre interfaces différentes Si/Ge, Ge/Si, InSb/GaAs et GaAs/InSb. Dans notre simulation, nous avons utilisé la relation (3.16) pour modéliser le comportement de la RTI en régime dynamique. On constate alors que R_{ac} dépend fortement de l'épaisseur normalisée de la couche ainsi que de la

fréquence de modulation. Pour des fréquences de modulation très faibles ($\omega\tau_1 \to 0$),

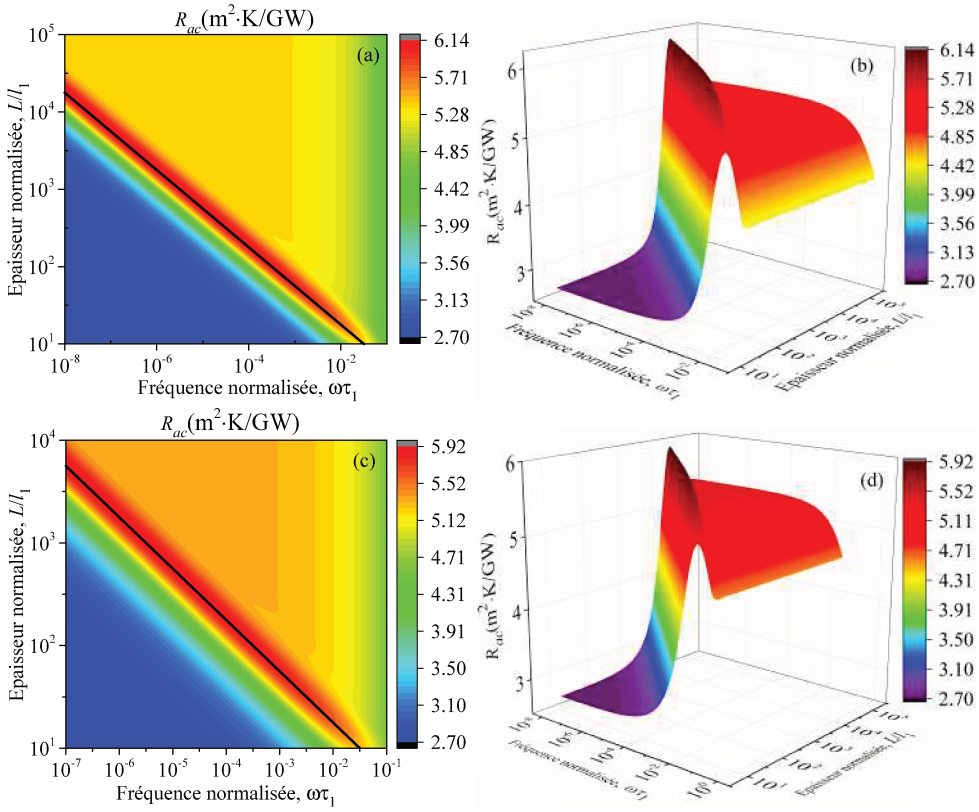

FIGURE 3.7 – R_{ac} en fonction de l'épaisseur normalisée L/l_1 et de la fréquence de modulation $\omega\tau_1$. InSb film/GaAs substrat (a et b) et GaAs film/InSb substrat (c et d).

R_{ac} prend des valeurs constantes lorsque $\lambda \to \infty$. Ces résultats sont en bon accord avec l'expression (3.17) et différent de ceux obtenus en utilisant le modèle DMM ($R = 2((\rho_1 c_1 v_1)^{-1} + (\rho_2 c_2 v_2)^{-1})$)[Swa89], soit $R_{\mathrm{DMM}}/R_{ac} = 1.09$. La commutation entre le Si et le Ge d'un côté et entre InSb et GaAs de l'autre, n'influence pas R_{ac}.

Sur la Figure 3.8 est représenté la variation de R_{ac} en fonction de la fréquence de modulation pour quatre interfaces différentes, et pour trois épaisseurs différentes. On remarque que R_{ac} dépend fortement de l'épaisseur de la couche finie, du LPM des phonons, du temps de relaxation des phonons et des propriétés thermiques des deux couches. En outre, la Figure 3.8 (a) montre que dans le régime diffusif ($L = 100l_1$), R_{ac} passe par un maximum dont l'amplitude dépend des propriétés thermiques des couches constituant l'interface. La fréquence caractéristique à laquelle R_{ac} atteint son maximum est indépendante des propriétés thermiques des couches (δ_{12} et τ_2/τ_1). Ce

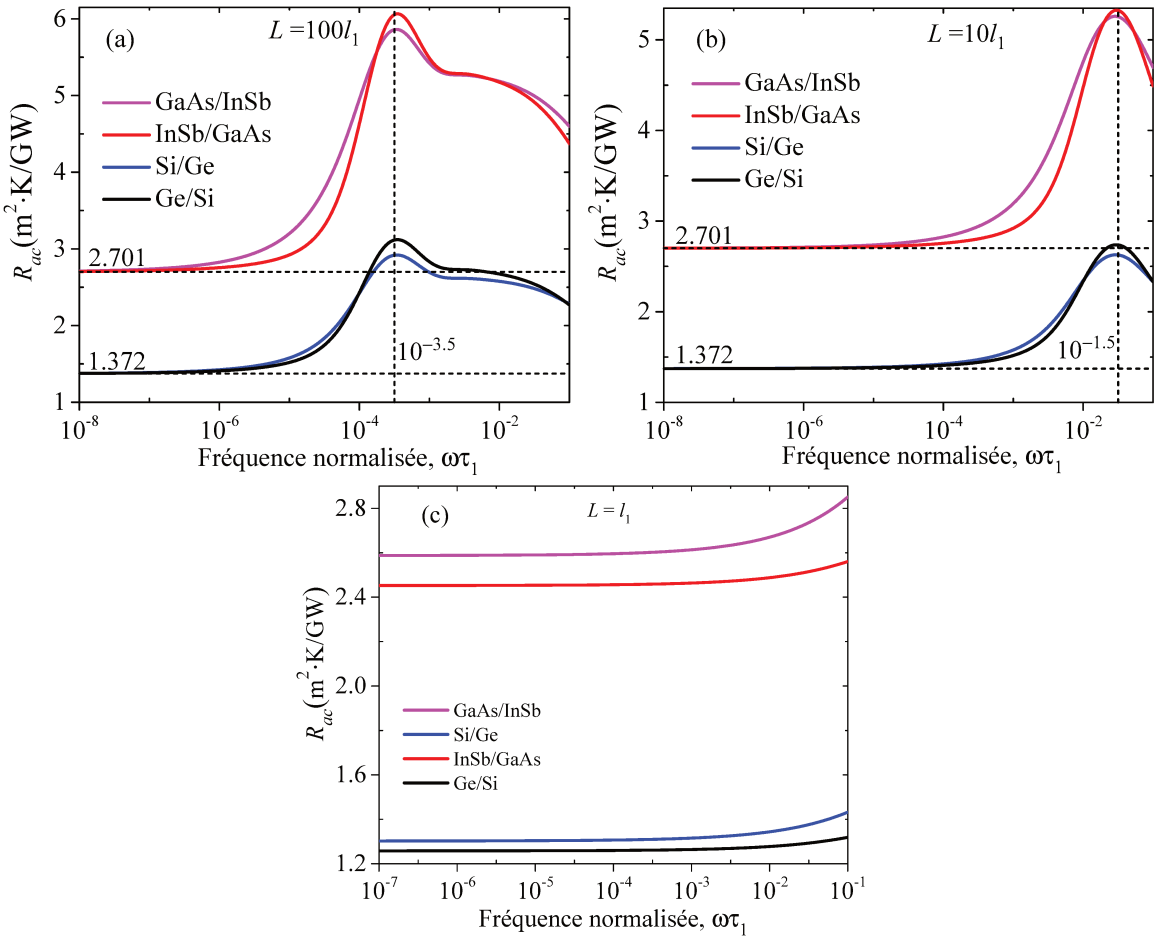

FIGURE 3.8 – comportement de R_{ac} en fonction de la fréquence de modulation $L = 100l_1$ (a), $L = 10l_1$ (b) et $L = l_1$ (c). Les calculs ont été faits pour quatre interfaces différentes.

résultat confirme ce que nous avons montré pour la densité de flux de chaleur à l'interface (voir section 3.2.2). Comme on peut le constater, R_{ac} prend des valeurs constantes lorsque $(\omega\tau_1 \to 0)$. Ceci est en bon accord avec l'expression (3.17). Dans la limite diffusive $(\lambda \to \infty)$, on peut montrer que R_{ac} prend la forme suivante :

$$R_{ac}(\infty) = 3\left(\frac{a_1^+}{\rho_1 c_1 v_1 a_2^+} + \frac{1}{\rho_2 c_2 v_2}\right). \tag{3.20}$$

Comme dans le cas stationnaire, il est possible d'exprimer la température modulée à la surface éclairée en $z = 0$ sous une forme similaire à celle que l'on obtiendrait avec la loi de Fourier :

$$\psi_1(x=0) = 3q_0 a_2^+ \left(\frac{1}{\eta_1} - M(0)\right)\left(\frac{R_{ac}(\infty)}{3M(0)} - \frac{1}{\rho_2 c_2 v_2}\right). \tag{3.21}$$

D'autre part, pour une couche semi-infinie ($\lambda \rightarrow \infty$), la solution de la loi de Fourier obtenue pour la température modulée en $z = 0$ est donnée par l'expression :

$$\psi_1(x = 0) = \frac{3q_0}{\rho_1 c_1 v_1 \eta_1}. \tag{3.22}$$

En utilisant le modèle DMM pour le calcul de la RTI, on peut réécrire (3.22) sous la forme :

$$\psi_1(x = 0) = \frac{3q_0}{\eta_1}\left(\frac{R_{\mathrm{DMM}}}{2} - \frac{1}{\rho_2 c_2 v_2}\right). \tag{3.23}$$

On voit clairement les similarités entre (3.21) et (3.23). Ceci est cohérent avec les résultats obtenus dans la section 3.2.1 pour la limite diffusive (Figure 3.3). D'après les Figures 3.6 et 3.7, on voit qu'il y a une dépendance linéaire entre l'épaisseur de la couche normalisée et la fréquence de modulation (ligne noire), où R_{ac} atteint son maximum. Compte tenu du fait que l'équation (3.16) a une forme complexe, il n'est pas facile d'obtenir l'expression de cette dépendance de manière analytique. Pour cela, nous avons réalisé un fit de ce maximum afin de trouver la relation entre l'épaisseur normalisée de la couche et la fréquence de modulation, on montre que l'on obtient la relation suivante :

$$Log_{10}(L/l_1) = aLog_{10}(\omega\tau_1) + b, \tag{3.24}$$

où $a \simeq -\frac{1}{2}$ et $b \simeq \frac{1}{4}$.

Après les simplifications, (3.24) devient

$$f_c \simeq \frac{\sqrt{10}}{2\pi}\left(\frac{l_1}{L}\right)^2 f_1, \tag{3.25}$$

où $f_1 = 1/\tau_1$ est la fréquence de collision des phonons.

L'amplitude et la phase de la température modulée en face avant ($z = 0$) peuvent être mesurées à l'aide des techniques photothermiques et théoriquement sont donnés par l'expression (3.21). Le comportement dynamique des phonons à travers une interface peut être déterminé en comparant les résultats théoriques avec les données expérimentales. La détermination expérimentale de R_{ac} ainsi que la fréquence de modulation à laquelle cette grandeur atteint son maximum permettrait de calculer à la fois le temps de relaxation et le LPM dominant des phonons ($l_1 = v_1\tau_1$) dans la couche d'épaisseur L, en

exploitant (3.21) et (3.25).

Au contraire, dans le régime quasi-balistique pour lequel l'épaisseur de la couche est comparable au LPM des phonons [Figure 3.8 (c)], R_{ac} prend des valeurs constantes et devient presque indépendante de la fréquence de modulation. Cela est en bon accord avec les résultats trouvés pour le flux thermique [Figure 3.5 (b)]. Comme on peut le voir, la commutation entre les couches affecte considérablement le comportement asymptotique de R_{ac}, et surtout à basses fréquences $(\omega\tau_1 \to 0)$.

3.5 Conclusion

Ce chapitre avait pour objectif d'étudier le transport de chaleur dans un système à deux couches, où la surface située en $z = 0$ a été excitée par un faisceau laser d'intensité modulée en exploitant la solution analytique de l'ETB en régime dynamique. Nous avons obtenu une expression analytique générale de la RTI en fonction de la fréquence de modulation qui tient compte de la nature du régime du transport de phonons dans la couche d'épaisseur finie. Comme dans le cas, stationnaire, la RTI affiche un caractère non intrinsèque et asymétrique par rapport aux propriétés thermophysiques des deux couches. Dans le cas purement balistique, nous avons montré que pour des fréquences de modulation très faibles, nos résultats sont en bon accord avec ceux trouvés en appliquant le modèle DMM, tandis que le pourcentage d'erreur entre les deux modèles ne dépasse pas 10% dans la limite diffusive. En outre, nous avons aussi montré que cette résistance d'interface atteint son maximum (flux à l'interface est minimum) à une fréquence caractéristique $f_c = (\sqrt{10}/2\pi)(l_1/L)^2 f_1$ dans le régime diffusif, où l_1 et L sont respectivement le LPM des phonons et l'épaisseur de la couche finie. Enfin, nous avons proposé une méthode pour extraire les propriétés physiques intrinsèques de la couche d'épaisseur finie, comme le LPM et le temps de relaxation des phonons.

Dans le chapitre suivant, nous nous intéresserons à la détermination de la diffusivité et de la conductivité thermiques d'une couche d'épaisseur finie via une nouvelle méthode en se basant sur la résolution de l'équation de la chaleur de Fourier.

Chapitre 4

Détermination des propriétés thermiques d'une couche d'épaisseur finie par une méthode à double excitation

Sommaire

4.1 Introduction 103

4.2 Cas 1 : face avant sous excitation par un flux de chaleur modulé et face arrière sous excitation par une température modulée 105

4.2.1 Équation de la chaleur, ou équation de diffusion 105

4.2.2 Condition initiale et conditions aux bords 106

4.2.3 Conditions homogènes auxiliaires 107

4.2.4 Solution complète d'un problème non homogène 108

4.2.5 Détermination des propriétés thermiques 111

4.3 Cas 2 : faces avant et arrière sont excitées par un flux de chaleur modulé 118

4.3.1 Condition initiale et conditions aux bords 118

4.3.2 Solution complète d'un problème non homogène 119

4.3.3 Détermination des propriétés thermiques 122

4.4 Cas 3 : face avant est excitée par deux flux de chaleur modulés et face arrière est maintenue à une température constante 126

4.4.1 Condition initiale et conditions aux bords 127

4.4.2 Solution complète d'un problème non homogène 127

4.4.3 Détermination des propriétés thermiques 129

4.5 Conclusion 132

4.1 Introduction

Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, les techniques photothermiques résolues en temps et en fréquence sont les techniques les plus utilisées pour mesurer les propriétés thermiques des matériaux en comparant les résultats théoriques aux mesures expérimentales. Ces méthodes spectroscopiques consistent à détecter et à analyser le signal thermique sur la face avant ou sur la face arrière d'un échantillon lorsque celui-ci est soumis à une excitation modulée. Deux principales méthodes photothermiques pour la visualisation du signal thermique sont : la spectroscopie photoacoustique et la radiométrie photothermique infrarouge. A partir des travaux menées par Rosencwaing et Gersho [Ros76] concernant les ondes thermiques, plusieurs travaux ont été réalisés pour analyser l'amplitude et la phase du signal thermique dans différentes configurations [Man00 ; Sal11 ; BL03]. En général, l'analyse du signal thermique pourrait se voir compliquée si on considère l'existence d'une fonction de transfert décrivant les instruments électroniques [BL03]. Dans la plupart des applications, il est très utile de normaliser le signal mesuré afin de supprimer cette fonction de transfert. Les propriétés thermiques sont ensuite obtenues en ajustant les données expérimentales aux résultats théoriques. La principale application des expériences photothermiques est liée à la détermination de la diffusivité thermique des matériaux [Rou83 ; Per87 ; BL96 ; BL01 ; PJ86]. Balderas-Lopeza et Mandelis [BL03] ont mesuré la diffusivité thermique des films métalliques en utilisant deux méthodes photothermiques : la radiométrie et la spectroscopie photoacoustique. Depriester et al.[Dep05] ont proposé une méthode pour la détermination simultanée de la diffusivité et de l'effusivité thermiques des matériaux en se basant sur la technique de radiométrie. Ceci est réalisé en utilisant le rapport entre les signaux photothermiques obtenus avec et sans substrat. Ils ont montré l'existence de deux fréquences caractéristiques auxquelles l'amplitude normalisée atteint son maximum et la phase normalisée passe par zéro. L'exploitation des valeurs de ces deux fréquences caractéristiques a permis d'avoir accès à la diffusivité thermique du carbone vitreux et de la céramique à base de titanate-zirconate ; les deux matériaux investis dans cette étude. D'autre part, à partir de l'analyse des signaux obtenus pour l'amplitude et pour la phase, Vales-Pinzon et al. [VP12] ont déterminé les propriétés thermiques du carbone vitreux en utilisant quatre fréquences caractéristiques dans un système à deux couches. Dans ce dernier travail,

les auteurs ont montré que ces quatre fréquences caractéristiques étaient indépendantes des propriétés thermiques des couches. Les valeurs correspondantes à ces fréquences caractéristiques permettent d'extraire la diffusivité et l'effusivité thermiques de la couche éclairée. Même si leurs résultats sont en bon accord avec les mesures reportées dans la littérature, [BL03 ; Dep05 ; VP12] leur approche est limitée seulement au système à deux couches. Par conséquent, la détermination simultanée de la diffusivité et de l'effusivité thermiques (conductivité thermique) d'une couche d'épaisseur finie est très souhaitable. En outre, dans le cas des conditions aux limites périodiques, la propagation des ondes thermiques se manifeste bien dans les films minces. D'immenses efforts ont été consentis pour étudier la propagation de ces ondes thermiques en utilisant soit les modèles analytiques, soit les méthodes numériques [Tor05 ; OM10a ; Lam11 ; Zha13 ; Lam10 ; Fon14]. A cet égard, Torii et Yang.[Tor05] ont étudié numériquement l'effet d'une double excitation thermique sur la propagation des ondes thermiques dans un film métallique mince.
Dans ce chapitre, nous résolvons l'équation de la chaleur de Fourier pour une couche mince, où une des faces, ou les deux faces peuvent être excitées à l'aide d'un laser d'intensité modulée. L'objectif principal de ce chapitre est de résoudre analytiquement l'équation de la chaleur pour le profil de température afin d'extraire la diffusivité et la conductivité thermiques d'une couche d'épaisseur finie. Notre approche est appliquée à une couche d'épaisseur finie, où la face avant est irradiée par un flux thermique modulé, tandis que la face arrière peut être sujette à trois conditions aux bords différentes : (a) température modulée, (b) flux thermique modulé et (c) température constante. Nous distinguons en effet, trois différents cas :

• **Cas 1 :** la face avant de l'échantillon est soumise à un flux de chaleur modulé, tandis que la face arrière est sous excitation par une température modulée.

• **Cas 2 :** les faces avant et arrière sont excitées par un flux de chaleur modulé.

• **Cas 3 :** la face avant est excitée par un double flux de chaleur modulé et la face arrière est maintenue à une température constante.

4.2 Cas 1 : face avant sous excitation par un flux de chaleur modulé et face arrière sous excitation par une température modulée

4.2.1 Équation de la chaleur, ou équation de diffusion

La Figure 4.1 représente un milieu d'épaisseur finie L, où ses propriétés thermophysiques (κ et α) sont supposées constantes. Initialement, le milieu est maintenu à température uniforme T_0. A partir de $t > 0$, les surfaces en $z = 0$ et en $z = L$ sont soumises à des excitations thermiques modulées aux fréquences ω_1 et ω_2, respectivement. On suppose que les deux surfaces de ce système sont si larges qu'on peut négliger tous les effets de bords et considérer que la chaleur s'écoule seulement dans la direction z. La variation du champ de température $T(z,t)$ dans une géométrie monodimensionnelle est régie par :

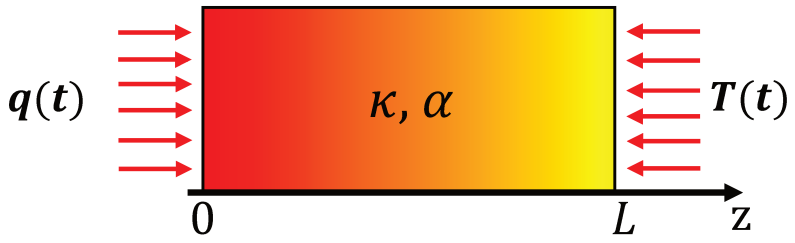

FIGURE 4.1 – Schéma représentatif d'une couche d'épaisseur L de conductivité thermique κ et de diffusivité thermique α. La face avant est sous excitation par un flux de chaleur modulé et la face arrière est sous excitation par une température modulée.

$$\frac{\partial T(z,t)}{\partial t} - \alpha \frac{\partial^2 T(z,t)}{\partial z^2} = 0, \tag{4.1}$$

où $\alpha = \kappa/(\rho c_p)$ désigne la diffusivité thermique, κ la conductivité thermique, ρ la densité et c_p la chaleur spécifique à pression constante du matériau. L'équation (4.1) est connue sous le nom de l'équation de la chaleur de Fourier qui permet de décrire la diffusion de la chaleur dans les milieux matériels. Il est très utile d'utiliser une analyse adimensionnelle et de faire ainsi disparaître l'épaisseur du milieu et ses propriétés physiques ; on obtient un problème sans dimension.

Introduisons les paramètres sans dimension suivants : x la position, τ le temps, θ la

température, Q le flux de chaleur et Ω la fréquence, on a :

$$x = z/L, \;\; \tau = t/(L^2/\alpha), \;\; \theta = T/T_0, \;\; Q = q/(kT_0/L), \;\; \Omega = \omega/(\alpha/L^2). \tag{4.2}$$

L'équation précédente devient :

$$\frac{\partial\theta(x,\tau)}{\partial\tau} - \frac{\partial^2\theta(x,\tau)}{\partial x^2} = 0. \tag{4.3}$$

4.2.2 Condition initiale et conditions aux bords

Pour résoudre l'équation (4.3), il faut se donner d'une part, la condition initiale, et d'autre part, les conditions aux bords. On se place dans le **Cas 1**, on a alors :

$$\frac{\partial\theta(0,\tau)}{\partial x} = f_1(\tau) = -\frac{Q_1}{2}[1+\cos(\Omega_1\tau)], \tag{4.4a}$$

$$\theta(x,0) = 1. \tag{4.4b}$$

où $q_1 = F\eta\,(1-r)\,q_0$, avec F étant un paramètre déterminé par les propriétés optiques, thermiques et géométriques du milieu d'épaisseur finie [OM09], η l'efficacité de conversion de la lumière absorbée en chaleur, r le coefficient de réflexion de la surface $z = 0$ et q_0 [Wm^{-2}] l'intensité du faisceau laser [Gal03 ; Sal98 ; Alm96]. La face avant $(z = 0)$ est excitée par un flux de chaleur modulé, ce qui est souvent le cas pour une surface opaque lorsque celle-ci est uniformément irradiée par un laser d'intensité modulée [OM10b].
Au niveau de l'autre face, nous avons :

$$\theta(1,\tau) = f_2(\tau) = 1 + m\cos(\Omega_2\tau), \tag{4.5}$$

où m est une constante positive. L'excitation de type (4.5) est satisfaite quand la surface en $z = L$ est en contact avec un module Peltier produisant des variations périodiques de température [Alm96 ; OM10a]. Dans la pratique, les oscillations de température au niveau d'une surface peuvent être réglées à l'aide d'une cellule à effet Peltier [Bod06], qui opèrent habituellement avec une résolution meilleure que 0,1 K et des fréquences de modulation de 0,1 à 100 Hz [CA18].

Le problème physique ci-dessus est décrit par l'équation de la chaleur avec des conditions aux bords non homogènes. Pour déterminer la variation du champ de température en tout point du milieu d'épaisseur finie, nous faisons appel à un théorème mathématique appelé : **théorème de structure** (solution structure theorem en anglais). Il est nécessaire de rappeler que ce théorème est applicable seulement dans le cas des problèmes de conduction thermique avec des conditions aux bords homogènes [Lam13; Lam11; Wan07]. En effet, pour appliquer ce théorème, le problème avec des conditions aux bords homogènes doit nécessairement être déterminé.

4.2.3 Conditions homogènes auxiliaires

Comme déjà mentionné ci-dessus, le problème mathématique est régi par des conditions aux limites non homogènes, qui doit être converti en un problème homogène afin d'utiliser le théorème de structure. On suppose que θ peut se mettre sous la forme suivante :

$$\theta(x,\tau) = v(x,\tau) + w(x,\tau). \tag{4.6}$$

En exploitant cette transformation, le problème original peut s'exprimer sous une forme identique à celle d'un problème homogène avec la fonction $v(x,\tau)$, et une fonction auxiliaire, $w(x,\tau)$. Il est important de noter que l'expression de $w(x,\tau)$ dépend des conditions aux bords. Pour plus de détails, le lecteur est invité à consulter le livre de L. Wang [Wan07].

A partir des relations (4.4a) et (4.5), l'expression de la fonction $w(x,\tau)$ s'écrit alors sous la forme :

$$w(x,\tau) = f_1(\tau)\,(x-1) + f_2(\tau). \tag{4.7}$$

En remplaçant (4.6) dans (4.3), (4.4a), (4.4b) et (4.5), on obtient :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial v(x,\tau)}{\partial \tau} - \dfrac{\partial^2 v(x,\tau)}{\partial x^2} = H(x,\tau), & \text{(4.8a)} \\ \dfrac{\partial v(0,\tau)}{\partial x} = 0, & \text{(4.8b)} \\ v(1,\tau) = 0, & \text{(4.8c)} \\ v(x,0) = f(x), & \text{(4.8d)} \end{cases}$$

où

$$H(x,\tau) = \frac{\partial^2 w(x,\tau)}{\partial x^2} - \frac{\partial w(x,\tau)}{\partial \tau} = -\frac{Q_1}{2}\Omega_1 \sin(\Omega_1 \tau)(x-1) + m\Omega_2 \sin(\Omega_2 \tau), \tag{4.9}$$

et

$$f(x) = \theta(x,0) - w(x,0) = Q_1(x-1) - m. \tag{4.10}$$

Il est utile de remarquer que, après la procédure de transformation, la fonction $H(x,\tau)$ (4.8a) joue un rôle analogue à celui d'une source de chaleur interne.

4.2.4 Solution complète d'un problème non homogène

Le système d'équations (4.8a)− (4.8d) est homogène, et la solution peut être calculée à partir du théorème de structure. D'après le principe de superposition, on peut écrire (4.8a)− (4.8d) sous forme de deux problèmes relatifs à $v_1(x,\tau)$ et $v_2(x,\tau)$, respectivement, avec $v(x,\tau) = v_1(x,\tau) + v_2(x,\tau)$.

• **Sous-problème 1** : équation homogène et conditions aux bords homogènes.

$$\begin{cases} \dfrac{\partial v_1(x,\tau)}{\partial \tau} - \dfrac{\partial^2 v_1(x,\tau)}{\partial x^2} = 0, & \text{(4.11a)} \\ \dfrac{\partial v_1(0,\tau)}{\partial x} = 0, & \text{(4.11b)} \\ v_1(1,\tau) = 0, & \text{(4.11c)} \\ v_1(x,0) = f(x). & \text{(4.11d)} \end{cases}$$

• **Sous-problème 2** : équation non homogène et conditions aux bords homogènes.

$$\begin{cases} \dfrac{\partial v_2(x,\tau)}{\partial \tau} - \dfrac{\partial^2 v_2(x,\tau)}{\partial x^2} = H(x,\tau), & \text{(4.12a)} \\ \dfrac{\partial v_2(0,\tau)}{\partial x} = 0, & \text{(4.12b)} \\ v_2(1,\tau) = 0, & \text{(4.12c)} \\ v_2(x,0) = 0. & \text{(4.12d)} \end{cases}$$

Il est intéressant de commencer par effectuer une séparation de (4.11a) en une partie spatiale et une partie temporelle. On cherche donc une solution de (4.11a) de la forme :

$$v_1(x,\tau) = \sum_{n=0}^{+\infty} v_n(\tau)\left[\cos(\lambda_n x) + \sin(\lambda_n x)\right]. \tag{4.13}$$

En appliquant la première condition aux bords (4.11b), (4.13) se simplifie pour devenir :

$$v_1(x,\tau) = \sum_{n=0}^{+\infty} v_n(\tau)\cos(\lambda_n x). \tag{4.14}$$

La deuxième condition aux bords (4.11c) impose $\cos(\lambda_n) = 0$, c'est-à-dire

$$\lambda_n = (n + 1/2)\pi, \qquad n = 0, 1... \tag{4.15}$$

En insérant (4.14) dans (4.11a), on trouve

$$\frac{dv_n(\tau)}{d\tau} + \lambda_n^2 v_n(\tau) = 0. \tag{4.16}$$

La solution de (4.16) est directement donnée par :

$$v_n(\tau) = a_n e^{-\lambda_n^2 \tau}. \tag{4.17}$$

Par conséquent, (4.14) peut se mettre sous la forme :

$$v_1(x,\tau) = \sum_{n=0}^{+\infty} a_n e^{-\lambda_n^2 \tau}\cos(\lambda_n x). \tag{4.18}$$

Les coefficients a_n de cette série sont donnés par :

$$a_n = 2\int_0^1 f(x)\cos(\lambda_n x)dx. \tag{4.19}$$

En remplaçant (4.10) dans (4.19), on obtient :

$$a_n = -\frac{2Q_1}{(1/2+n)^2\pi^2} - \frac{2m(-1)^n}{(1/2+n)\pi}. \tag{4.20}$$

La solution du sous-problème 2 $(v_2(x,\tau))$ peut être calculée en utilisant le théorème de structure, on a :

$$v_2(x,\tau) = \int_0^\tau \int_0^1 G\left(x,\xi,\tau-\tau'\right) H(\xi,\tau')d\xi d\tau', \tag{4.21}$$

où $G\left(x,\xi,\tau-\tau'\right)$ est la fonction de Green définie par [Wan07] :

$$G\left(x,\xi,\tau-\tau'\right) = \sum_{n=0}^{+\infty} 2e^{-\lambda_n^2(\tau-\tau')}\cos\left(\lambda_n\xi\right)\cos\left(\lambda_n x\right). \tag{4.22}$$

En combinant les relations (4.9), (4.21) et (4.22), $v_2(x,\tau)$ devient :

$$v_2(x,\tau) = \sum_{n=0}^{+\infty} \left[A_n\psi_{n,1}(\tau) + B_n\psi_{n,2}(\tau)\right]\cos(\lambda_n x), \tag{4.23}$$

où

$$\begin{cases} A_n = \dfrac{Q_1}{(1/2+n)^2\,\pi^2\left(1+\chi_{n,1}^2\right)}, & \text{(4.24a)} \\ B_n = \dfrac{2m\,(-1)^n}{(1/2+n)\,\pi\left(1+\chi_{n,2}^2\right)}, & \text{(4.24b)} \\ \psi_{n,j}(\tau) = e^{-\lambda_n^2\tau} - \cos\left(\Omega_j\tau\right) + \chi_{n,j}\sin\left(\Omega_j\tau\right)\ \ (j=1,2), & \text{(4.24c)} \\ \chi_{n,j} = \dfrac{\lambda_n^2}{\Omega_j}. & \text{(4.24d)} \end{cases}$$

La distribution de température dans la couche d'épaisseur finie est donc donnée par la somme des équations (4.7), (4.18) et (4.23) :

$$\theta(x,\tau) = w(x,\tau) + v_1(x,\tau) + v_2(x,\tau). \tag{4.25}$$

Pour n'importe quelle source d'excitation, la distribution de température en tout point de l'espace peut se mettre sous la forme [OM09] :

$$\theta(x,\tau) = 1 + \theta_{\mathrm{dc}}(x) + \theta_{\mathrm{ac}}(x,\tau), \tag{4.26}$$

où l'unité correspond à la température ambiante, $\theta_{\mathrm{dc}}(x)$ et $\theta_{\mathrm{ac}}(x,\tau)$ sont respectivement les contributions stationnaire et modulée de la température. Ces deux derniers termes sont associés au premier et au second terme de la source d'excitation, respectivement. La comparaison de (4.25) avec (4.26) permet de déterminer les expressions de $\theta_{\mathrm{dc}}(x)$

et de $\theta_{ac}(x,\tau)$. L'équation (4.26) satisfait toutes les conditions aux limites imposées et vérifie en effet l'équation de la chaleur. Elle décrit correctement le profil de température non stationnaire, comme établi par le théorème fondamental des équations différentielles [Spi67]. De plus, dans la limite $\Omega_2 = 0$ et $m = 0$, l'équation (4.25) se réduit aux résultats rapportés par Rodney et Diana [Hec18]. Comme nous l'avons mentionné dans l'introduction, la majorité des travaux ont porté sur la détermination de la diffusivité et de l'effusivité thermiques pour une couche éclairée dans un système à deux couches [BL03 ; VP12 ; OM10a]. Par conséquent, il est très utile d'extraire simultanément ces deux propriétés thermiques pour une monocouche d'épaisseur finie, où les deux faces sont soumises à des excitations périodiques.

4.2.5 Détermination des propriétés thermiques

Dans ce paragraphe, nous exploitons l'expression analytique du profil de température (4.25) pour déterminer la diffusivité et la conductivité thermiques d'une couche d'épaisseur finie. Soit $\theta(x,\tau)$ un signal périodique de période Γ_2 ($\Gamma_2 = 2\pi/\Omega_2$). On note $\overline{\theta}(x)$ sa valeur moyenne. Par définition :

$$\overline{\theta}(x) = \frac{1}{\Gamma_2}\int_0^{\Gamma_2} \theta(x,\tau)d\tau. \tag{4.27}$$

Bien que la plupart des techniques photothermiques utilisent des amplificateurs intégrés pour mesurer l'amplitude et la phase du profil de température moyenné sur de nombreuses périodes de chauffage [BL03 ; Dep05], les variations temporelles de la température physique et sa valeur moyenne $\overline{\theta}$ peuvent également être visualisée et enregistrée via un oscilloscope, pour différentes fréquences de modulation, comme c'est le cas pour la technique de thermoréflectance résolue en temps [Dil11].

Après avoir remplacé (4.25) dans (4.27), on obtient :

$$\overline{\theta}(x) = 1 - \frac{Q_1}{2}\left[1 + \frac{\Omega_2}{2\pi\Omega_1}\sin\left(\frac{2\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right](x-1) + \frac{\Omega_2}{2\pi}\sum_{n=0}^{+\infty}\left\{\frac{a_n + A_n + B_n}{\lambda_n^2} + \frac{2A_n}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right.$$
$$\left.\cdot\left[\frac{\lambda_n^2}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right) - \cos\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right]\right\}\cos(\lambda_n x). \tag{4.28}$$

De même, le flux de chaleur moyen sur Γ_2 à la face éclairée ($z = 0$) est donné par la formule :

$$\overline{Q}(x=0) = \frac{Q_1}{2}\left[1 + \frac{\Omega_2}{2\pi\Omega_1}\sin\left(\frac{2\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right]. \tag{4.29}$$

On peut remarquer que les équations (4.28) et (4.29) peuvent être écrites sous la forme d'une somme de deux contributions, l'une stationnaire, l'autre modulée. Si $\Omega_1 = s\Omega_2 (s = 1, 2, 3, ...)$, les termes modulés sont nuls, car la valeur moyenne d'un cosinus est nulle. Dans ce cas, les ondes thermiques ne peuvent transporter l'énergie [Sal06]. Par contre, dans le cas $\Omega_1 \neq s\Omega_2$, la valeur moyenne est différente de zéro et les ondes thermiques contribuent au transfert d'énergie entre les bords de l'échantillon. L'expression du profil de température comme donnée par l'équation (4.28) dépend bien de la diffusivité thermique α et de la conductivité thermique κ du matériau. Par conséquent, cette expression peut être exploitée pour déterminer ces deux propriétés thermiques. La détermination de α a fait l'objet de plusieurs travaux [VP12 ; Dep05] en utilisant une seule source d'excitation modulée appliquée à la surface $z = 0$. Dans ce présent chapitre, la diffusivité et la conductivité thermiques seront obtenues en se basant sur l'expression de la température moyenne sur une période Γ_2 (4.28). Ceci est réalisé à partir de l'analyse graphique décrivant le comportement de la température moyenne en $z = 0$ en fonction de la fréquence de modulation.

Sur les Figures 4.2 (a)− 4.2 (c), nous avons reporté la variation du profil de température moyen normalisé $\overline{\theta}$ ainsi que le flux thermique moyen normalisé $\overline{Q}$ à la face éclairée $z = 0$ en fonction de la fréquence normalisée Ω_1, pour trois valeurs de Ω_2. On peut remarquer que la température moyenne présente de fortes oscillations, surtout dans le cas $\Omega_2 = 0.1$. L'amplitude de ces oscillations diminue en augmentant la fréquence de modulation Ω_1. Cela peut s'expliquer par le fait que la profondeur de pénétration diminue lorsque Ω_1 augmente ($\mu_1 = \sqrt{2\alpha/\omega_1}$). Ces résultats confirment ceux de Torii et Yang [Tor05] et Ordonez-Miranda et al. [OM09]. Dans le régime intermédiaire, la distribution de température moyenne présente des oscillations dans le temps et les valeurs de ses premiers maximum et minimum diminuent lorsque Ω_2 augmente [Figures 4.2 (a)− 4.2 (c)]. A basses fréquences ($\Omega_1 \ll 1$), le comportement de la température et du flux prennent des valeurs constantes et deviennent indépendants de la fréquence de modulation, ce qui confirme les résultats de l'état stationnaire. La différence entre le premier

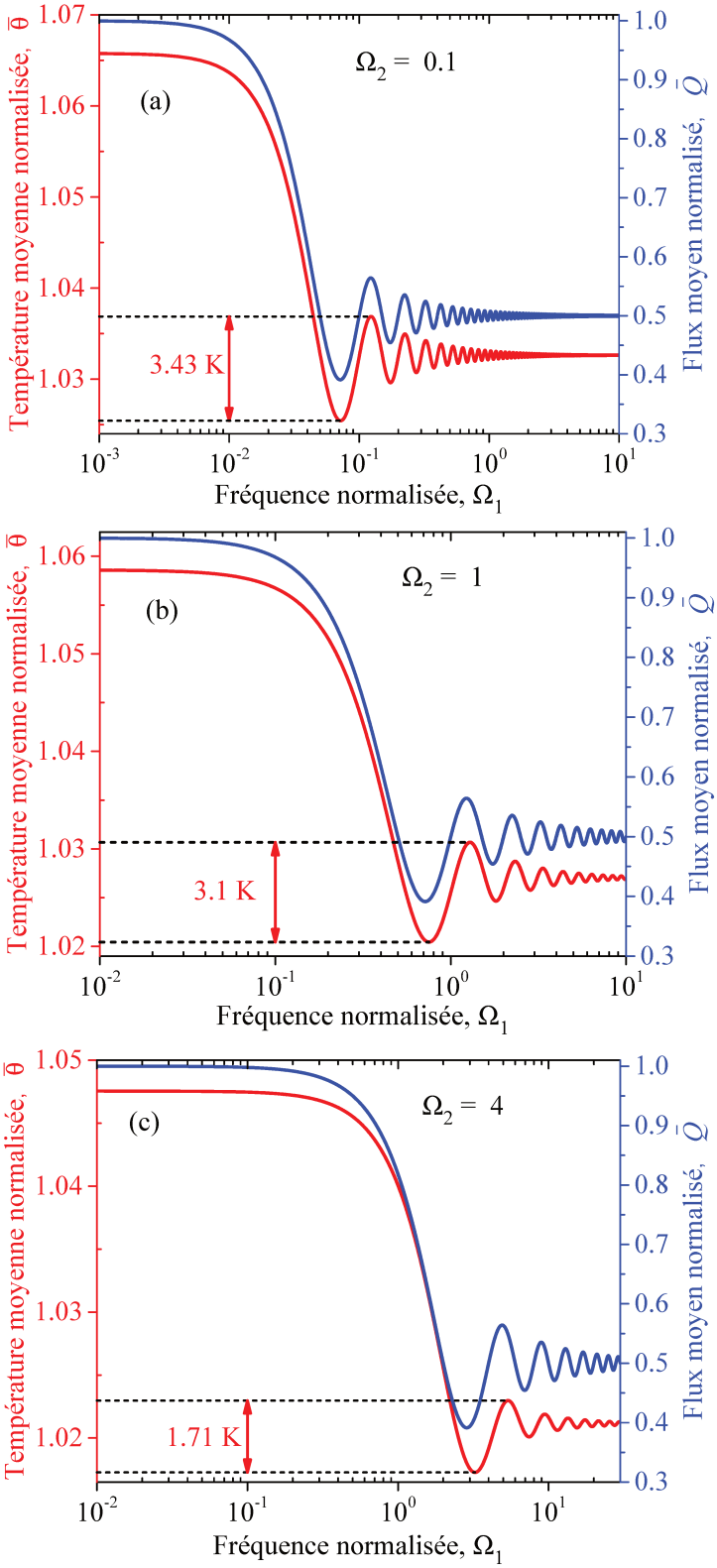

FIGURE 4.2 – Variation de la température moyenne et du flux thermique moyen normalisés à la surface éclairée $z = 0$ en fonction de la fréquence normalisée Ω_1 pour trois valeurs de Ω_2. La flèche haut/bas correspond à la différence entre le premier maximum et le premier minimum de la température. Les calculs ont été réalisés pour $L = 10^{-3}$m, $\kappa = 100\ \mathrm{Wm^{-1}K^{-1}}$, $T_0 = 300$ K, $m = 1/15$ et $q_1 = 2.10^6\ \mathrm{Wm^{-2}}$. Tiré de la référence [Ala19].

maximum et le premier minimum de la température est respectivement 3.43 K, 3.1 K et 1.71 K pour $\Omega_2 = 0.1$, $\Omega_2 = 1$ et $\Omega_2 = 4$. Cette différence est mesurable à condition que $(T_{1,\max} - T_{1,\min}) \geq 1$ K. Compte tenu du fait que (4.28) a une forme complexe, il n'est pas facile d'obtenir une expression exacte des fréquences auxquelles la température atteint ses premiers maximum et minimum. En revanche, la solution numérique de (4.28) permet de trouver ces fréquences en fonction de Ω_2, comme l'illustre la Figure 4.3. Sur cette Figure, on présente la variation des fréquences auxquelles la température moyenne atteint ses premiers maximum et minimum en fonction de Ω_2. On note ces fréquences $\Omega_{1,\max}$ et $\Omega_{1,\min}$, respectivement. Ces fréquences augmentent linéairement avec Ω_2, comme nous l'avons montré sur les Figures 4.2 (a)− 4.2 (c). Par ailleurs, la dépendance entre Ω_1 et Ω_2, où la température moyenne normalisée atteint ses premiers maximum et minimum peut être obtenue en utilisant la méthode d'ajustement. Pour des valeurs faibles de Ω_2 ($0.001 < \Omega_2 < 1$), $\Omega_{1,\max}$ et $\Omega_{1,\min}$ sont proportionnels à Ω_2 [Figure 4.3 (a)]. Dans ce cas, la méthode proposée pour la détermination de α sera inutile. Cependant, à hautes fréquences ($\Omega_2 > 1$), $\Omega_{1,\max}$ et $\Omega_{1,\min}$ varie de manière affine par rapport à Ω_2 [Figure 4.3 (b)]. Alors, on peut écrire :

$$\Omega_{1,\min} = 0.82691\Omega_2 - 0.06831, \qquad \overline{\theta} = \overline{\theta}_{1,\min}, \tag{4.30a}$$

$$\Omega_{1,\max} = 1.35763\Omega_2 - 0.05611, \qquad \overline{\theta} = \overline{\theta}_{1,\max}, \tag{4.30b}$$

où $\Omega_j = L^2\omega_j/\alpha$. Il est important de rappeler et de préciser que ces équations ont été calculées relativement aux composantes modulées du flux thermique et de la température imposés sur les deux faces avant et arrière, respectivement, comme donné par les équations (4.4a) et (4.5). En plus, elles sont valides seulement pour des fréquences de modulation Ω_2 supérieures à 1. Lorsque $\Omega_2 = 0$, la condition aux bords imposée sur la surface $z = L$ change et donc la solution de l'équation de la chaleur (expression (4.25)) se simplifie à celle obtenue par Rodney et Diana [Hec18]. Les équations (4.30a) et (4.30b) sont indépendantes des valeurs particulières de m et Q_1. La variation de ces paramètres conduit à modifier l'amplitude des température $\overline{\theta}_{1,\max}$ et $\overline{\theta}_{1,\min}$, mais pas les fréquences de modulation de leurs maximum et minimum.

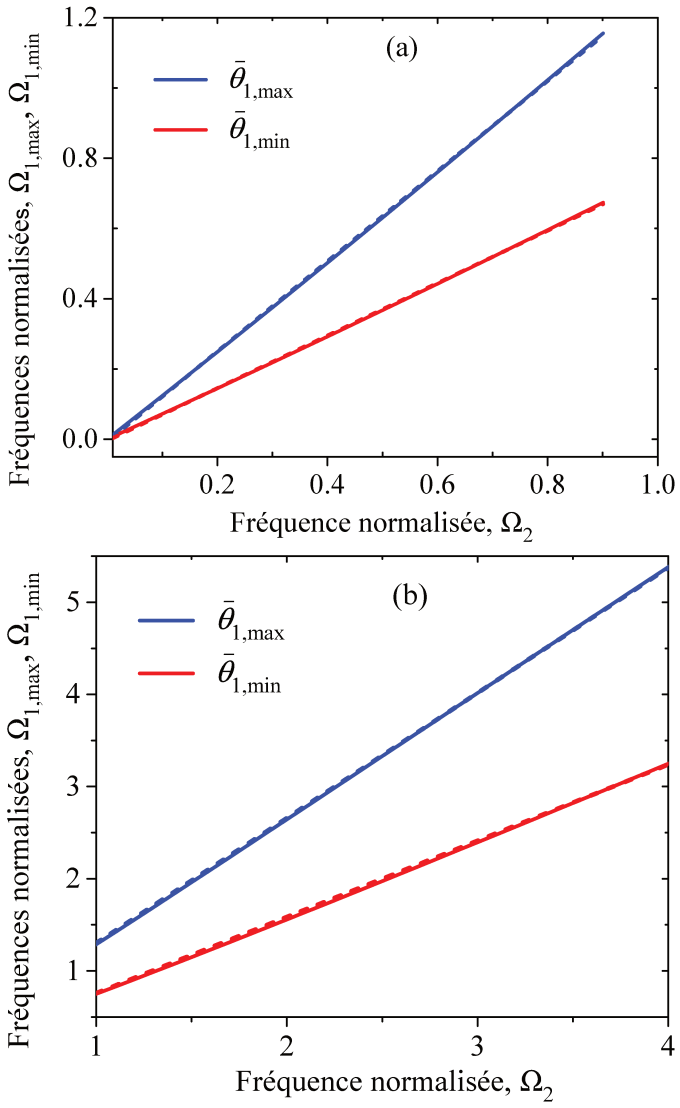

FIGURE 4.3 – Variation de $\Omega_{1,\max}$ et $\Omega_{1,\min}$ en fonction de Ω_2. Les calculs ont été effectués pour $L = 10^{-3}$m, $\kappa = 100$ Wm^{-1}K^{-1}, $T_0 = 300$ K, $m = 1/15$ et $q_1 = 2.10^6$ Wm^{-2}. La courbe en pointillés représente le fit linéaire et la courbe continue représente la solution numérique de l'équation (4.28). Tiré de la référence [Ala19].

D'après (4.30a) et (4.30b), on peut obtenir la diffusivité thermique α de la couche d'épaisseur L telle que :

$$\alpha \approx \pi L^2 \left(35.6874 f_{1,\max} - 58.5921 f_{1,\min}\right), \tag{4.31}$$

où $\omega_j = 2\pi f_j$. En conséquence, la relation (4.31) permet de connaître la diffusivité thermique de l'échantillon en déterminant les fréquences de modulation auxquelles la température moyenne en $z = 0$ atteint ses premiers maximum et minimum. Selon l'équation (4.31), la diffusivité thermique α est très sensible aux fréquences $f_{1,\max}$ et $f_{1,\min}$ où les valeurs maximale et minimale du champ de température apparaissent, respectivement. En pratique, la détermination précise de α nécessitera donc de répéter

les expériences requises plusieurs fois pour mesurer les valeurs représentatives de ces deux fréquences ainsi que leurs incertitudes.

D'après (4.28), la température moyenne sur une période Γ_2 à la face éclairée $z = 0$ peut être réécrite sous la forme suivante :

$$\overline{\theta}(x=0) = 1 + Q_1 F_1(\Omega_1, \Omega_2) + F_2(\Omega_2), \tag{4.32}$$

où

$$F_1(\Omega_1, \Omega_2) = \frac{1}{2}\left[1 + \frac{\Omega_2}{2\pi\Omega_1}\sin\left(\frac{2\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right] + \frac{\Omega_2}{2\pi}\sum_{n=0}^{+\infty}\left\{\frac{a'_n + A'_n}{\lambda_n^2} + \frac{2A'_n}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right.$$
$$\left.\cdot\left[\frac{\lambda_n^2}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right) - \cos\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right]\right\}, \tag{4.33}$$

et

$$F_2(\Omega_2) = \frac{\Omega_2}{2\pi}\sum_{n=0}^{+\infty}\frac{1}{\lambda_n^2}\left[B_n - \frac{2m(-1)^n}{(1/2+n)\,\pi}\right], \tag{4.34a}$$

$$a'_n = -\frac{2}{(1/2+n)^2\,\pi^2} \text{ et } A'_n = A_n/Q_1. \tag{4.34b}$$

Vu que le signal photothermique mesuré est proportionnel à la distribution de la température moyenne donnée définie par (4.32), il est très pratique de normaliser le maximum du signal mesuré par son minimum, on obtient alors :

$$\frac{\overline{\theta}_{1,\max}}{\overline{\theta}_{1,\min}} = \frac{1 + Q_1 F_1\left(\Omega_{1,\max}, \Omega_2\right) + F_2\left(\Omega_2\right)}{1 + Q_1 F_1\left(\Omega_{1,\min}, \Omega_2\right) + F_2\left(\Omega_2\right)}, \tag{4.35}$$

où $\Omega_{1,\min}$ et $\Omega_{1,\max}$ sont reliés à Ω_2 par (4.30a) et (4.30b), respectivement. Après avoir simplifié (4.35), il vient

$$\kappa = \frac{q_1.L}{T_0}\frac{F_1\left(\Omega_{1,\max}, \Omega_2\right) - \left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)F_1\left(\Omega_{1,\min}, \Omega_2\right)}{\left(\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right) - 1\right)\left(1 + F_2\left(\Omega_2\right)\right)}. \tag{4.36}$$

A partir de cette expression, on voit bien que κ dépend du rapport $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ et du flux de chaleur absorbé q_1, qui peut être considéré comme presque constant et indépendant de la fréquence de modulation, comme cela se fait habituellement pour des

problèmes similaires [Gal03 ; Alm96]. Les équations (4.31) et (4.36) indiquent clairement que la détermination simultanée de la diffusivité et de la conductivité thermiques d'une couche ne nécessite que la mesure de deux fréquences caractéristiques du signal de la température moyenne. Cela représente l'un des avantages de la méthode proposée par rapport à d'autres méthodes photothermiques, telle que la thermoréflectance, qui nécessite d'enregistrer l'amplitude et la phase du champ de température sur un large intervalle de fréquence de modulation afin de récupérer les mêmes propriétés [Sch08]. La détermination de $\Omega_{1,\max}$ et $\Omega_{1,\min}$ avec leurs amplitudes de température $\overline{\theta}_{1,\max}$ et

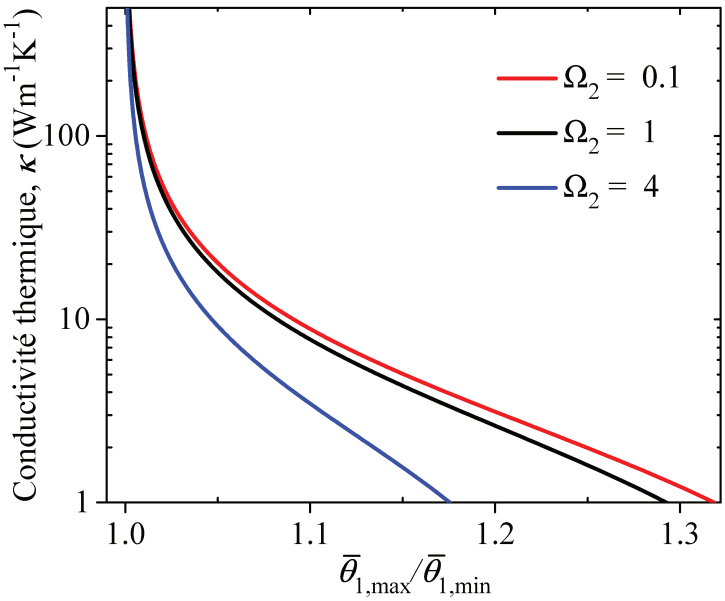

FIGURE 4.4 – Variation de de la conductivité thermique κ en fonction du rapport $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ pour trois valeurs différentes de Ω_2. Les calculs ont été réalisés pour $L = 10^{-3}$m, $T_0 = 300$ K, $m = 1/15$ et $q_1 = 2.10^6$ Wm^{-2}. Tiré de la référence [Ala19].

$\overline{\theta}_{1,\min}$ permet donc d'extraire la conductivité thermique κ de l'échantillon par application de (4.36). La valeur précise de κ dépendra de ces paramètres d'entrée ainsi que du nombre de termes de la somme F_1 et F_2. Sur la Figure 4.4, on présente l'évolution de la conductivité thermique κ en fonction du rapport entre le premier maximum et le premier minimum de la température $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$. On observe que k dépend de façon considérable du rapport $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ ainsi que de la fréquence normalisée Ω_2. κ décroît lorsque $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ augmente. Lorsque ce rapport se rapproche de l'unité, κ tend vers l'infinie. Il est important de noter que le rapport $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ prend des valeurs élevées pour des fréquences faibles Ω_2, et donc la détermination de la conductivité thermique κ devient plus précise.

4.3 Cas 2 : faces avant et arrière sont excitées par un flux de chaleur modulé

Dans ce paragraphe, nous appliquons le théorème de structure que nous avons utilisé auparavant pour résoudre l'équation de la chaleur de Fourier en prenant en compte les conditions aux bords du **Cas 2**. Cette résolution nous permettrait de déterminer la diffusivité thermique de l'échantillon ainsi que sa conductivité thermique. L'accent sera mis plus particulièrement sur l'influence de la fréquence de modulation sur ces deux propriétés thermiques.

La Figure 4.5 illustre un milieu d'épaisseur finie L ayant des propriétés thermophysiques constantes. Le système est initialement à la température uniforme T_0. A partir de $t > 0$, un flux thermique modulé à la fréquence ω_1 est imposé sur la face avant ($z = 0$) de l'échantillon, tandis que la face opposée en $z = L$ est réchauffée par un autre flux thermique modulé à la fréquence ω_2. Pour décrire l'évolution du profil de température à partir de la résolution de l'équation de la chaleur, les conditions aux bords doivent être définies.

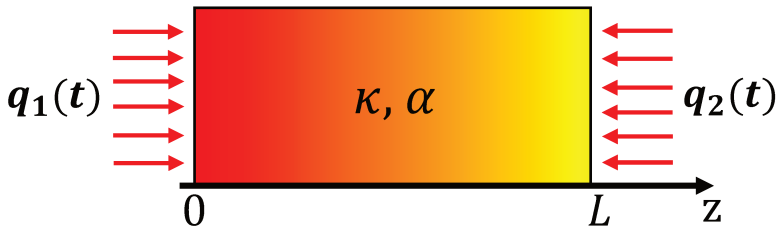

FIGURE 4.5 – Schéma représentatif d'une couche d'épaisseur L de conductivité thermique κ et de diffusivité thermique α. Les deux surfaces en $z = 0$ et $z = L$ sont excitées par des flux thermiques modulés aux fréquences ω_1 et ω_2, respectivement.

4.3.1 Condition initiale et conditions aux bords

La résolution de l'équation (4.3) se fait en supposant une température initiale T_0, et en imposant les conditions aux bords suivantes :

- Flux modulé à la fréquence ω_1 imposé sur la face $z = 0$.
- Flux modulé à la fréquence ω_2 imposé sur la face $z = L$.

D'après la loi de Fourier de conduction de chaleur, on peut écrire :

$$\frac{\partial\theta(0,\tau)}{\partial x} = f_1(\tau) = -\frac{Q_1}{2}[1+\cos(\Omega_1\tau)], \tag{4.37a}$$

$$\frac{\partial\theta(1,\tau)}{\partial x} = f_2(\tau) = +\frac{Q_2}{2}[1+\cos(\Omega_2\tau)]. \tag{4.37b}$$

$$\theta(x,0) = 1. \tag{4.37c}$$

4.3.2 Solution complète d'un problème non homogène

A partir des équations (4.37a) et (4.37b), la fonction auxiliaire prend la forme suivante [Wan07] :

$$w(x,\tau) = xf_1(\tau) + [f_2(\tau) - f_1(\tau)]\, x^2/2. \tag{4.38}$$

En insérant cette relation dans (4.3), (4.37a), (4.37b) et (4.37c), on obtient :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial v(x,\tau)}{\partial\tau} - \dfrac{\partial^2 v(x,\tau)}{\partial x^2} = H(x,\tau), & (4.39a)\\ \dfrac{\partial v(0,\tau)}{\partial x} = 0, & (4.39b)\\ \dfrac{\partial v(1,\tau)}{\partial x} = 0, & (4.39c)\\ v(x,0) = f(x), & (4.39d) \end{cases}$$

où

$$H(x,\tau) = \frac{\partial^2 w(x,\tau)}{\partial x^2} - \frac{\partial w(x,\tau)}{\partial\tau} = f_2(\tau) - f_1(\tau) - \frac{Q_1}{2}\Omega_1 \sin(\Omega_1\tau) + \left(Q_2\Omega_2\sin(\Omega_2\tau) + Q_1\Omega_1\sin(\Omega_1\tau)\right)\frac{x^2}{4}, \tag{4.40}$$

et

$$f(x) = \theta(x,0) - w(x,0) = 1 + Q_1 x - \left(\frac{Q_1+Q_2}{2}\right)x^2. \tag{4.41}$$

On procède exactement de la même manière que pour le **Cas 1**, on peut écrire (4.39a)− (4.39d) sous forme de deux problèmes relatifs à $v_1(x,\tau)$ et $v_2(x,\tau)$, respectivement.

• **Sous-problème 1** : équation homogène et conditions aux bords homogènes.

$$\begin{cases} \dfrac{\partial v_1(x,\tau)}{\partial \tau} - \dfrac{\partial^2 v_1(x,\tau)}{\partial x^2} = 0, & \text{(4.42a)} \\ \dfrac{\partial v_1(0,\tau)}{\partial x} = 0, & \text{(4.42b)} \\ \dfrac{\partial v_1(1,\tau)}{\partial x} = 0, & \text{(4.42c)} \\ v_1(x,0) = f(x). & \text{(4.42d)} \end{cases}$$

• **Sous-problème 2** : équation non homogène et conditions aux bords homogènes.

$$\begin{cases} \dfrac{\partial v_2(x,\tau)}{\partial \tau} - \dfrac{\partial^2 v_2(x,\tau)}{\partial x^2} = H(x,\tau), & \text{(4.43a)} \\ \dfrac{\partial v_2(0,\tau)}{\partial x} = 0, & \text{(4.43b)} \\ \dfrac{\partial v_2(1,\tau)}{\partial x} = 0, & \text{(4.43c)} \\ v_2(x,0) = 0. & \text{(4.43d)} \end{cases}$$

En utilisant la méthode de séparation des variables avec des conditions aux bords, on montre que la solution des équations (4.42a)− (4.42d) est ainsi donnée par :

$$v_1(x,\tau) = \frac{a_0}{2} + \sum_{n=1}^{+\infty} a_n e^{-n^2\pi^2\tau}\cos(n\pi x), \quad \text{(4.44a)}$$

$$a_n = 2\int_0^1 f(x)\cos(n\pi x)dx. \quad \text{(4.44b)}$$

En remplaçant (4.41) dans (4.44b), il vient

$$\frac{a_0}{2} = 1 - \frac{Q_2 - 2Q_1}{6}, \quad \text{(4.45a)}$$

$$a_n = \frac{-2\left(Q_1 + (-1)^n Q_2\right)}{n^2\pi^2}. \quad \text{(4.45b)}$$

En appliquant le théorème de structure, la solution du sous-problème 2 $(v_2(x,\tau))$ est ainsi donnée par l'expression :

$$v_2(x,\tau) = \int_0^\tau \int_0^1 G\left(x,\xi,\tau-\tau'\right) H(\xi,\tau')d\xi d\tau', \quad \text{(4.46)}$$

Dans ce cas, la fonction de Green est définie comme suit [Wan07] :

$$G\left(x,\xi,\tau-\tau'\right)=1+\sum_{n=1}^{+\infty}2e^{-n^2\pi^2(\tau-\tau')}\cos\left(n\pi\xi\right)\cos\left(n\pi x\right). \tag{4.47}$$

Compte tenu des équations (4.40), (4.46) et (4.47), $v_2(x,\tau)$ devient :

$$v_2(x,\tau)=H_0(\tau)+\sum_{n=1}^{+\infty}\left[A_n\psi_{n,1}(\tau)+B_n\psi_{n,2}(\tau)\right]\cos(\lambda_n x), \tag{4.48}$$

où

$$H_0\left(\tau\right)=\frac{Q_1}{2}\left(\tau+\frac{\sin\left(\Omega_1\tau\right)}{\Omega_1}\right)+\frac{Q_2}{2}\left(\tau+\frac{\sin\left(\Omega_2\tau\right)}{\Omega_2}\right)-\frac{Q_1}{6}\left(1-\cos\left(\Omega_1\tau\right)\right)+\frac{Q_2}{12}\left(1-\cos\left(\Omega_2\tau\right)\right), \tag{4.49a}$$

$$A_n=\frac{Q_1}{n^2\pi^2\left(1+\chi_{n,1}^2\right)}, \tag{4.49b}$$

$$B_n=\frac{Q_2\left(-1\right)^n}{n^2\pi^2\left(1+\chi_{n,2}^2\right)}, \tag{4.49c}$$

$$\psi_{n,j}(\tau)=e^{-\lambda_n^2\tau}-\cos\left(\Omega_j\tau\right)+\chi_{n,j}\sin\left(\Omega_j\tau\right)\ \ (j=1,2), \tag{4.49d}$$

$$\chi_{n,j}=\frac{n^2\pi^2}{\Omega_j}. \tag{4.49e}$$

La solution complète des équations (4.39a)− (4.39d) est ainsi donnée par :

$$\theta(x,\tau)=w(x,\tau)+v_1(x,\tau)+v_2(x,\tau). \tag{4.50}$$

Cette expression représente la température adimensionnelle en tout point x le long de la couche d'épaisseur finie dans le cadre des conditions aux limites du **Cas 2**. On procède exactement de la même manière que pour le **Cas 1**, la température moyenne en $z=0$ sur une période Γ_2 sera calculée afin d'extraire à la fois la diffusivité et la conductivité thermiques d'une couche d'épaisseur finie.

4.3.3 Détermination des propriétés thermiques

Après avoir inséré (4.50) dans (4.27), la température moyenne en $z = 0$ sur une période Γ_2 est donnée par :

$$\begin{aligned}\overline{\theta}(x=0) = 1 + \frac{Q_1}{2}\left\{\frac{1}{3} + \frac{\pi}{\Omega_2} + \frac{\Omega_2}{\pi\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\left[\frac{1}{3}\cos\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right) + \frac{1}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right]\right\} \\ + \frac{Q_2}{2}\left(\frac{\pi}{\Omega_2} - \frac{1}{6}\right) + \frac{\Omega_2}{2\pi}\sum_{n=1}^{+\infty}\left\{\frac{a_n + A_n + B_n}{n^2\pi^2}\left(1 - \exp\left(-\frac{2n^2\pi^3}{\Omega_2}\right)\right)\right. \\ \left. + \frac{2A_n}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\left[\frac{n^2\pi^2}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right) - \cos\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right]\right\}.\end{aligned} \tag{4.51}$$

De la même manière que pour le **Cas 1**, les Figures 4.6 (a)− 4.6 (c) montrent la variation de la température moyenne normalisée $\overline{\theta}$ ainsi que le flux thermique moyen normalisé $\overline{Q}$ à la surface $z = 0$ en fonction de la fréquence normalisée Ω_1, pour trois valeurs de Ω_2. Le comportement de la température est quasiment le même que précédemment. Comme, on peut le voir, les amplitudes des oscillations sont très faibles par rapport à celles du **Cas 1** et deviennent nulles à des fréquences élevées. Ces résultats sont en très bon accord avec les travaux de Torii et Yang [Tor05]. Le choix de l'intensité du laser ($q_1 = q_2 = 2.10^5$ Wm^{-2}) se justifie par le fait que la température de l'échantillon augmente plus rapidement à des intensités élevées, contrairement au **Cas 1**. Cela peut affecter en partie les propriétés thermiques de l'échantillon. D'ailleurs, nous avons trouvé que l'écart entre le premier maximum et le premier minimum de la température est respectivement 1.5 K, 0.19 K et 0.1 K pour $\Omega_2 = 0.1$, $\Omega_2 = 1$ et $\Omega_2 = 4$. Cet écart est faible par rapport à celui obtenu dans le **Cas 1**. Compte tenu du fait que l'expression (4.51) a une forme complexe et longue, il n'est pas simple de trouver une expression exacte des fréquences auxquelles la température atteint ses premiers maximum et minimum. La solution numérique de (4.51) permet de calculer ces fréquences en fonction de Ω_2, comme le montre la Figure 4.7. Sur cette Figure, on présente l'évolution des fréquences auxquelles la température moyenne atteint ses premiers maximum et minimum en fonction de Ω_2. On note ces fréquences $\Omega_{1,\max}$ et $\Omega_{1,\min}$, respectivement. Ces fréquences augmentent linéairement avec Ω_2, comme nous l'avons montré sur les Figures 4.6 (a)− 4.6 (c). En se basant sur la Figure 4.7 (b), on voit bien qu'il y a une dépendance linéaire entre Ω_1 et Ω_2,

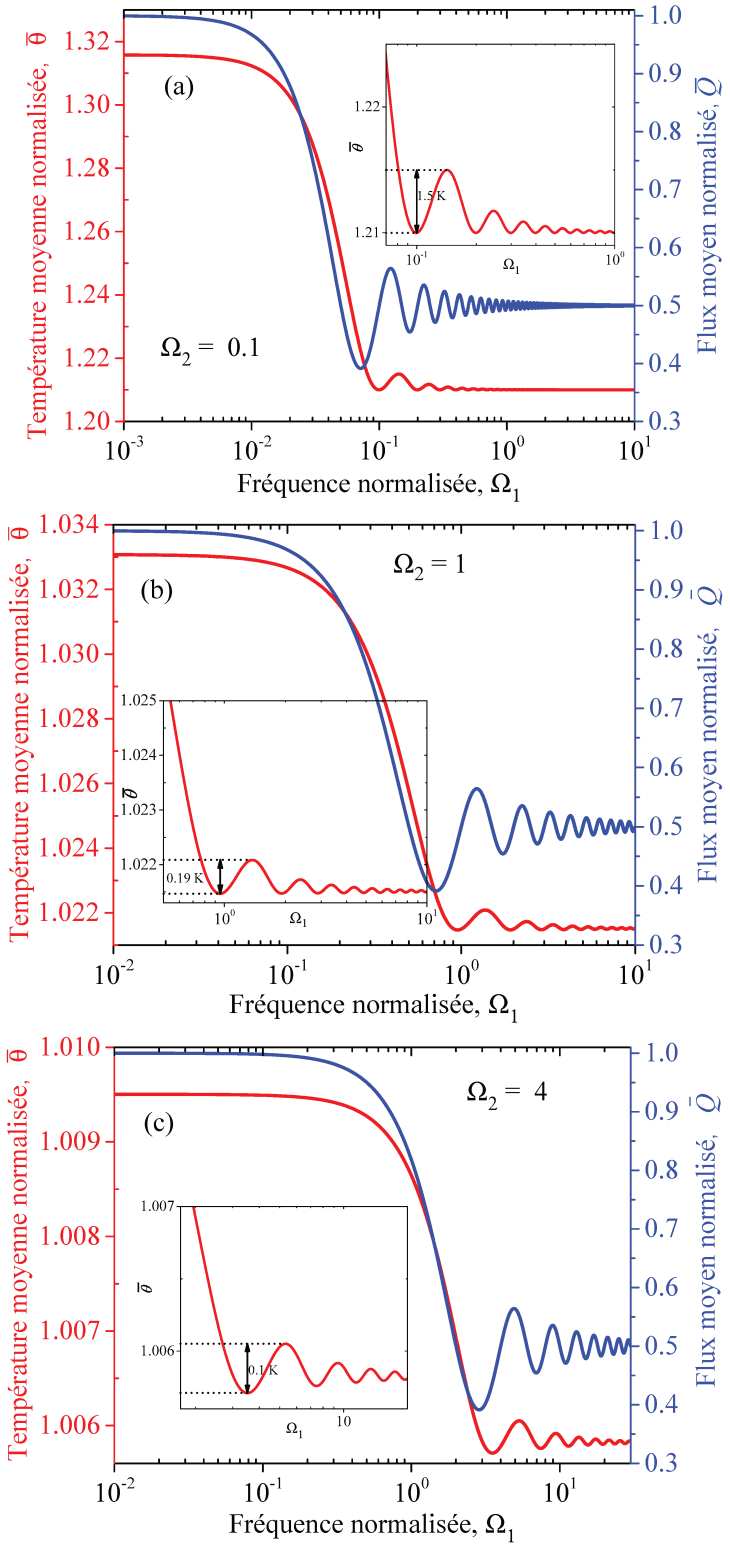

FIGURE 4.6 – Variation de la température moyenne et du flux thermique moyen normalisés à la surface éclairée $z = 0$ en fonction de la fréquence normalisée Ω_1 pour trois valeurs de Ω_2. La flèche haut/bas correspond à la différence entre le premier maximum et le premier minimum de la température. Les calculs ont été effectués pour $L = 10^{-3}$m, $\kappa = 100$ Wm^{-1}K^{-1}, $T_0 = 300$ K, et $q_1 = q_2 = 2.10^5$ Wm^{-2}.

où la température moyenne atteint ses premiers extréma. Alors, on peut écrire :

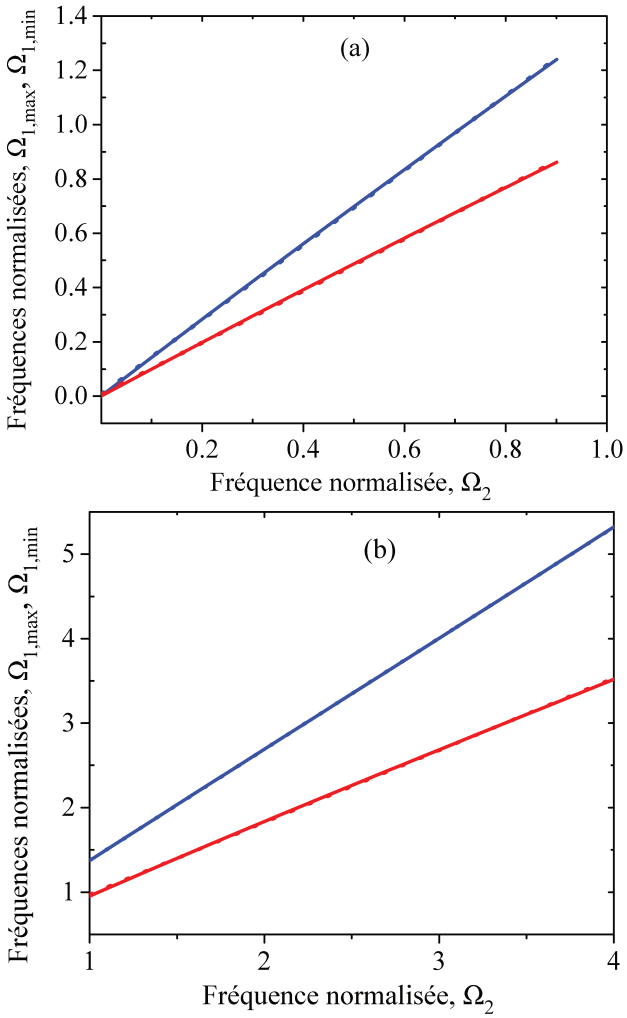

FIGURE 4.7 – Variation de $\Omega_{1,max}$ et $\Omega_{1,min}$ en fonction de Ω_2. Les calculs ont été faits pour $L = 10^{-3}$m, $\kappa = 100$ Wm^{-1}K^{-1}, $T_0 = 300$ K, et $q_1 = 2.10^5$ Wm^{-2}. La courbe en pointillés représente le fit linéaire et la courbe continue représente la solution numérique de l'équation (4.51).

$$\Omega_{1,min} \approx 0.85284\Omega_2 + 0.12133, \qquad \overline{\theta} = \overline{\theta}_{1,min}, \tag{4.52a}$$

$$\Omega_{1,max} \approx 1.31503\Omega_2 + 0.06055, \qquad \overline{\theta} = \overline{\theta}_{1,max}. \tag{4.52b}$$

La combinaison de ces deux équations nous permet de déterminer la diffusivité thermique de l'échantillon α :

$$\alpha \approx \pi L^2 \left(24.372 f_{1,min} - 15.806 f_{1,max}\right), \tag{4.53}$$

où $\Omega_j = 2\pi L^2 f_j/\alpha$. Le fit des basses fréquences Ω_2 donne un résultat similaire au **Cas 1** concernant la dépendance de $\Omega_{1,\max}$ et $\Omega_{1,\min}$ en fonction de Ω_2 [Figure 4.7 (a)]. Une dépendance qui rend inutile l'application de la méthode proposée pour la détermination de α.

En procédant de la même façon que dans le **Cas 1**, l'expression de la conductivité thermique de l'échantillon peut être trouvée facilement . A partir de (4.51) et en supposant en plus que $Q_1 = Q_2$, on peut écrire :

$$\kappa = \frac{q_1.L}{T_0}\frac{F\left(\Omega_{1,\max},\Omega_2\right) - \left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)F\left(\Omega_{1,\min},\Omega_2\right)}{\left(\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)-1\right)}, \tag{4.54}$$

où $\Omega_{1,\min}$ et $\Omega_{1,\max}$ sont reliés à Ω_2 par (4.52a) et (4.52b) et

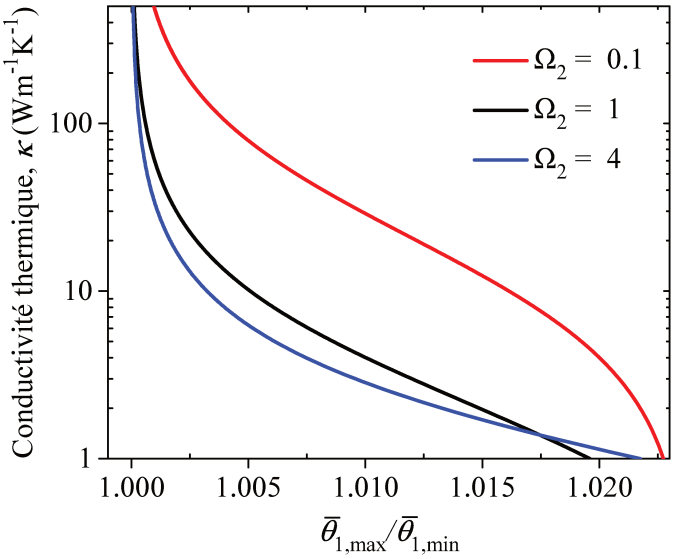

FIGURE 4.8 – Variation de de la conductivité thermique κ en fonction du rapport $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ pour trois valeurs différentes de Ω_2. Les calculs ont été réalisés pour $L = 10^{-3}$m, $T_0 = 300$ K, et $q_1 = 2.10^5$ Wm^{-2}.

$$\begin{aligned} F\left(\Omega_1,\Omega_2\right) = \frac{1}{2}\left\{\frac{-1}{6} + \frac{2\pi}{\Omega_2} + \frac{\Omega_2}{\pi\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\left[\frac{1}{3}\cos\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right) + \frac{1}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right]\right\} \\ + \frac{\Omega_2}{2\pi}\sum_{n=1}^{+\infty}\left\{\frac{a'_n + A'_n + B'_n}{n^2\pi^2}\left(1 - \exp\left(-\frac{2n^2\pi^3}{\Omega_2}\right)\right)\right. \\ \left. + \frac{2A_n}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\left[\frac{n^2\pi^2}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right) - \cos\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right]\right\}, \end{aligned} \tag{4.55}$$

et $a'_n = a_n/Q_1$, $A'_n = A_n/Q_1$ et $B'_n = B_n/Q_1$.

La Figure 4.8 montre la variation de la conductivité thermique κ en fonction du rapport entre le premier maximum et le premier minimum de la température moyenne $(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min})$. La tendance générale est la même, le rapport $(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min})$ diminue en augmentant la fréquence de modulation Ω_2. Par contre, lorsque le rapport $(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min})$ augmente, la détermination de la conductivité thermique devient plus précise. Il est important de constater que la conductivité thermique devient sensible à la fréquence de modulation, et cela confirme ce que nous avons trouvé dans le **Cas 1**.

4.4 Cas 3 : face avant est excitée par deux flux de chaleur modulés et face arrière est maintenue à une température constante

Dans ce dernier cas, nous résolvons l'équation de la chaleur de Fourier pour le profil de température dans le cadre des conditions aux bords du **Cas 3**. A $t = 0$ le système est maintenu à la température ambiante T_0. A partir de $t > 0$, deux flux thermiques modulés à la fréquence ω_1 et ω_2 sont imposés sur la face avant $z = 0$, tandis que la face opposée est maintenue à la température initiale T_0 [Figure 4.9]. Afin de décrire les variations du champ de température au sein de la couche, nous devons expliciter les conditions aux bords.

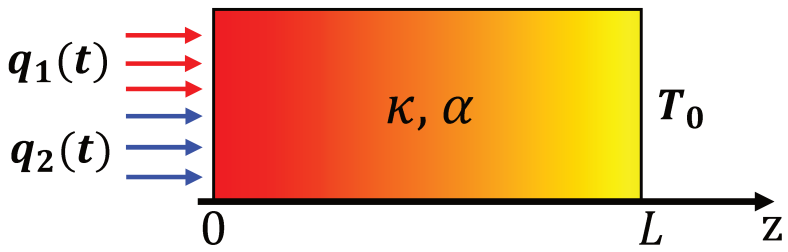

FIGURE 4.9 – Schéma représentatif d'une couche d'épaisseur L de conductivité thermique κ et de diffusivité thermique α. La face avant sous excitation par deux flux de chaleur modulés et la face arrière est maintenue à la température initiale T_0.

4.4.1 Condition initiale et conditions aux bords

Dans ce cas, la condition initiale et les conditions aux bords peuvent se mettre sous la forme :

$$\frac{\partial\theta(0,\tau)}{\partial x} = f_1(\tau) = -\frac{Q_1}{2}[1+\cos(\Omega_1\tau)] - \frac{Q_2}{2}[1+\cos(\Omega_2\tau)], \tag{4.56a}$$

$$\theta(1,\tau) = 1, \tag{4.56b}$$

$$\theta(x,0) = 1. \tag{4.56c}$$

4.4.2 Solution complète d'un problème non homogène

En tenant compte des formules (4.56a) et (4.56b), la fonction auxiliaire est ainsi donnée par [Wan07] :

$$w(x,\tau) = f_1(\tau)\,(x-1) + f_2(\tau). \tag{4.57}$$

En remplaçant cette relation dans (4.3), (4.56a), (4.56b) et (4.56c), on obtient :

$$\begin{cases} \dfrac{\partial v(x,\tau)}{\partial\tau} - \dfrac{\partial^2 v(x,\tau)}{\partial x^2} = H(x,\tau), & \text{(4.58a)} \\ \dfrac{\partial v(0,\tau)}{\partial x} = 0, & \text{(4.58b)} \\ v(1,\tau) = 0, & \text{(4.58c)} \\ v(x,0) = f(x), & \text{(4.58d)} \end{cases}$$

où

$$H(x,\tau) = -\frac{1}{2}\left[Q_1\Omega_1\sin\left(\Omega_1\tau\right) + Q_2\Omega_2\sin\left(\Omega_2\tau\right)\right](x-1)\,, \tag{4.59}$$

et

$$f(x) = (Q_1+Q_2)(x-1). \tag{4.60}$$

Comme précédemment, le système des équations (4.58a)− (4.58d) peut se mettre sous forme de deux problèmes relatifs à $v_1(x,\tau)$ et $v_2(x,\tau)$, respectivement.

• **Sous-problème 1** : équation homogène et conditions aux bords homogènes.

$$\begin{cases} \dfrac{\partial v_1(x,\tau)}{\partial \tau} - \dfrac{\partial^2 v_1(x,\tau)}{\partial x^2} = 0, & (4.61a) \\ \dfrac{\partial v_1(0,\tau)}{\partial x} = 0, & (4.61b) \\ v_1(1,\tau) = 0, & (4.61c) \\ v_1(x,0) = f(x). & (4.61d) \end{cases}$$

• **Sous-problème 2** : équation non homogène et conditions aux bords homogènes.

$$\begin{cases} \dfrac{\partial v_2(x,\tau)}{\partial \tau} - \dfrac{\partial^2 v_2(x,\tau)}{\partial x^2} = H(x,\tau), & (4.62a) \\ \dfrac{\partial v_2(0,\tau)}{\partial x} = 0, & (4.62b) \\ v_2(1,\tau) = 0, & (4.62c) \\ v_2(x,0) = 0. & (4.62d) \end{cases}$$

La solution des équations (4.61a)− (4.61d) est donnée par :

$$\begin{cases} v_1(x,\tau) = \sum_{n=0}^{+\infty} a_n e^{-\lambda_n^2 \tau} \cos(\lambda_n x), & (4.63a) \\ a_n = 2\int_0^1 f(x)\cos(\lambda_n x)dx. & (4.63b) \\ \lambda_n = (1/2+n)\,\pi. & (4.63c) \end{cases}$$

En insérant (4.60) dans (4.63b), on obtient :

$$a_n = \frac{-2(Q_1+Q_2)}{(1/2+n)^2\,\pi^2}. \tag{4.64}$$

En appliquant le théorème de structure, on obtient la solution du sous-problème 2 $(v_2(x,\tau))$ dont l'expression est donnée par :

$$v_2(x,\tau) = \int_0^\tau \int_0^1 G\left(x,\xi,\tau-\tau'\right) H(\xi,\tau')d\xi d\tau', \tag{4.65}$$

où

$$G\left(x,\xi,\tau-\tau'\right) = \sum_{n=0}^{+\infty} 2e^{-\lambda_n^2(\tau-\tau')}\cos\left(\lambda_n\xi\right)\cos\left(\lambda_n x\right). \tag{4.66}$$

D'après les équations (4.59), (4.65) et (4.66), on obtient :

$$v_2(x,\tau) = \sum_{n=0}^{+\infty} \left[A_n \psi_{n,1}(\tau) + B_n \psi_{n,2}(\tau)\right] \cos(\lambda_n x), \tag{4.67}$$

où

$$\begin{cases} A_n = \dfrac{Q_1}{(1/2+n)^2 \pi^2 \left(1+\chi_{n,1}^2\right)}, & \text{(4.68a)} \\ B_n = \dfrac{Q_2}{(1/2+n)^2 \pi^2 \left(1+\chi_{n,2}^2\right)}, & \text{(4.68b)} \\ \psi_{n,j}(\tau) = e^{-\lambda_n^2 \tau} - \cos\left(\Omega_j \tau\right) + \chi_{n,j} \sin\left(\Omega_j \tau\right) \ \ (j=1,2), & \text{(4.68c)} \\ \chi_{n,j} = \dfrac{\lambda_n^2}{\Omega_j}. & \text{(4.68d)} \end{cases}$$

La solution générale des équations (4.58a)− (4.58d) est donc donnée par la somme des (4.57), (4.63a) et (4.67), soit

$$\theta(x,\tau) = w(x,\tau) + v_1(x,\tau) + v_2(x,\tau). \tag{4.69}$$

Dans la suite, c'est plutôt la température moyenne en surface $(z=0)$ sur une période Γ_2 qui nous intéresse pour la détermination des propriétés thermiques.

4.4.3 Détermination des propriétés thermiques

Après avoir remplacé (4.69) dans (4.27), la température moyenne en $z=0$ sur une période Γ_2 est donnée par :

$$\begin{aligned} \overline{\theta}(x=0) = 1 + \frac{Q_1}{2}\left[1 + \frac{\Omega_2}{2\pi\Omega_1}\sin\left(\frac{2\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right] + \frac{Q_2}{2} + \frac{\Omega_2}{2\pi}\sum_{n=0}^{+\infty}\Bigg\{ \frac{a_n + A_n + B_n}{\lambda_n^2} \\ + \frac{2A_n}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\left[\frac{\lambda_n^2}{\Omega_1}\sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right) - \cos\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right]\Bigg\}. \end{aligned} \tag{4.70}$$

De la même manière, le flux de chaleur moyen sur Γ_2 à la face éclairée $(z=0)$ est ainsi donné par :

$$\overline{Q}(x=0) = \frac{Q_1}{2}\left[1 + \frac{\Omega_2}{2\pi\Omega_1}\sin\left(\frac{2\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right] + \frac{Q_2}{2}. \tag{4.71}$$

Il est important de noter que les expressions (4.70) et (4.28) prises en $x=0$, similaires, idem pour les équations (4.71) et (4.29), elles sont égales à une constante près.

La Figure 4.10 montre la variation de la température moyenne normalisée $\overline{\theta}$ ainsi que le flux thermique moyen normalisé $\overline{Q}$ à la face éclairée $(z = 0)$ en fonction de la fréquence normalisée Ω_1, pour trois valeurs de Ω_2. Il faut noter que dans tous ces calculs, nous avons pris $q_1 = q_2 = 2.10^6$ Wm^{-2}. La tendance générale est la même, l'amplitude des oscillations diminue en augmentant la fréquence de modulation Ω_1. Comme nous l'avons montré dans le **Cas 1**, il y a une dépendance linéaire entre Ω_1 et Ω_2, où la température moyenne normalisée atteint ses premiers maximum et minimum. Pour $\Omega_2 \geq 1$, on trouve :

$$\Omega_{1,\min} = 0.82691\Omega_2 - 0.06831, \qquad \overline{\theta} = \overline{\theta}_{1,\min}, \tag{4.72a}$$

$$\Omega_{1,\max} = 1.35763\Omega_2 - 0.05611, \qquad \overline{\theta} = \overline{\theta}_{1,\max}, \tag{4.72b}$$

En combinant les équations (4.72a) et (4.72b), on extrait facilement l'expression de la diffusivité thermique de la couche d'épaisseur L telle que :

$$\alpha \approx \pi L^2 \left(35.6874 f_{1,\max} - 58.5921 f_{1,\min}\right), \tag{4.73}$$

Cette expression est identique à celle trouvée dans le **Cas 1**. Ce résultat était attendu, car les expressions (4.70) et (4.28) sont similaires. De la même manière qu'auparavant, la conductivité thermique κ de la couche diélectrique est obtenue à partir de (4.70) :

$$\kappa = \frac{q_1.L}{T_0} \frac{F\left(\Omega_{1,\max}, \Omega_2\right) - \left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right) F\left(\Omega_{1,\min}, \Omega_2\right)}{\left(\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right) - 1\right)}, \tag{4.74}$$

où $\Omega_{1,\min}$ et $\Omega_{1,\max}$ sont reliés à Ω_2 par (4.72a) et (4.72a).

$$\begin{aligned} F(\Omega_1, \Omega_2) = 1 + \frac{\Omega_2}{4\pi\Omega_1} \sin\left(\frac{2\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right) + \frac{\Omega_2}{2\pi} \sum_{n=0}^{+\infty} \Bigg\{ \frac{a'_n + A'_n + B'_n}{\lambda_n^2} \\ + \frac{2A'_n}{\Omega_1} \sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right) \left[\frac{\lambda_n^2}{\Omega_1} \sin\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right) - \cos\left(\frac{\pi\Omega_1}{\Omega_2}\right)\right] \Bigg\}, \end{aligned} \tag{4.75}$$

et $a'_n = a_n/Q_1$, $A'_n = A_n/Q_1$ et $B'_n = B_n/Q_1$.

Sur la Figure 4.11, est représentée le comportement de la conductivité thermique κ en fonction du rapport $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ pour trois valeurs différentes de Ω_2. Comme il est attendu, pour chaque fréquence, κ décroît lorsque $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ augmente. Avec ce type

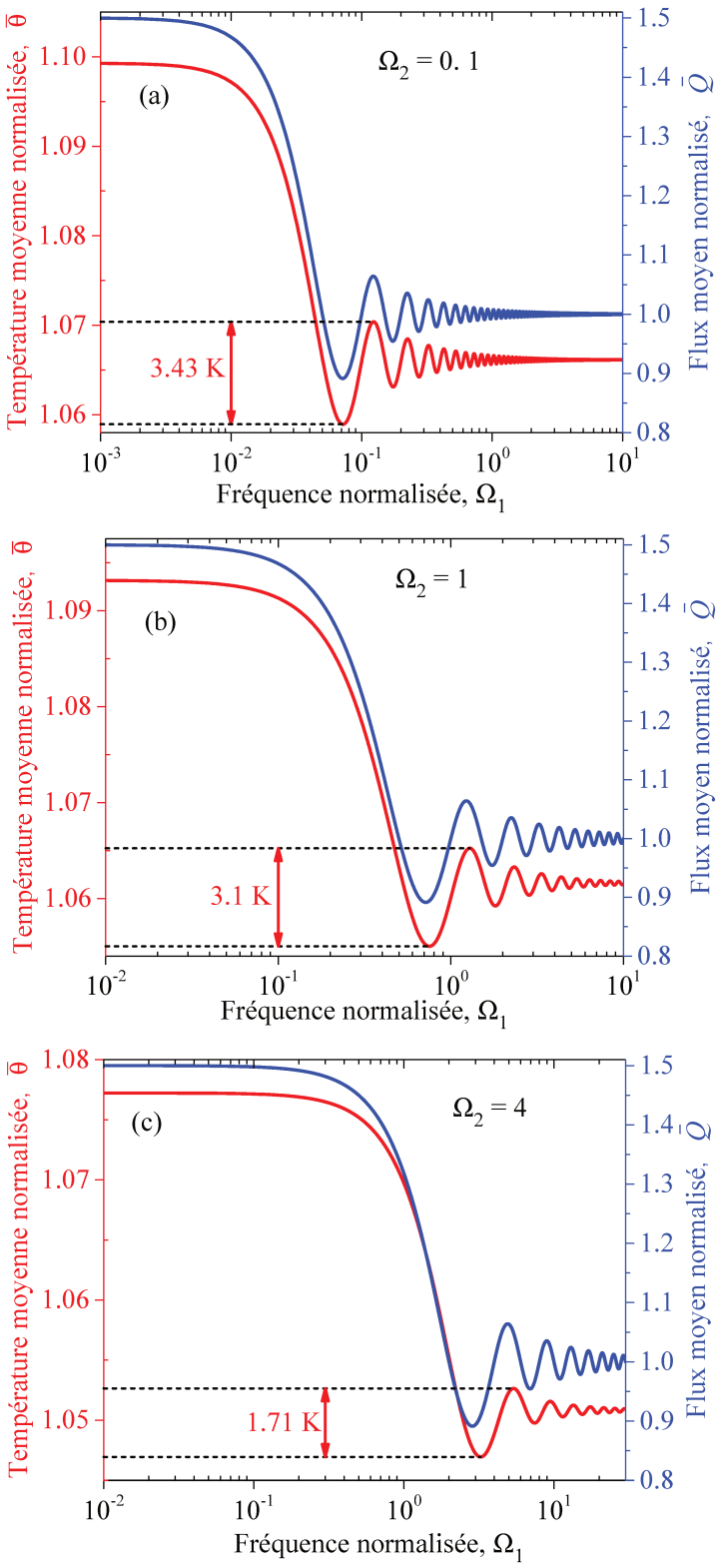

FIGURE 4.10 – Variation de la température moyenne et du flux thermique moyen normalisés à la surface éclairée $z = 0$ en fonction de la fréquence normalisée Ω_1 pour trois valeurs de Ω_2. La flèche haut/bas correspond à la différence entre le premier maximum et le premier minimum de la température. Les calculs ont été réalisés pour $L = 10^{-3}$m, $\kappa = 100$ Wm^{-1}K^{-1}, $T_0 = 300$ K et $q_1 = q_2 = 2.10^6$ Wm^{-2}.

de conditions aux bords, on arrive à proposer une autre méthode pour la détermination de la conductivité thermique du matériau une fois que le rapport $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ est connue ainsi que les fréquences $\Omega_{1,\max}$ et $\Omega_{1,\min}$ correspondantes.

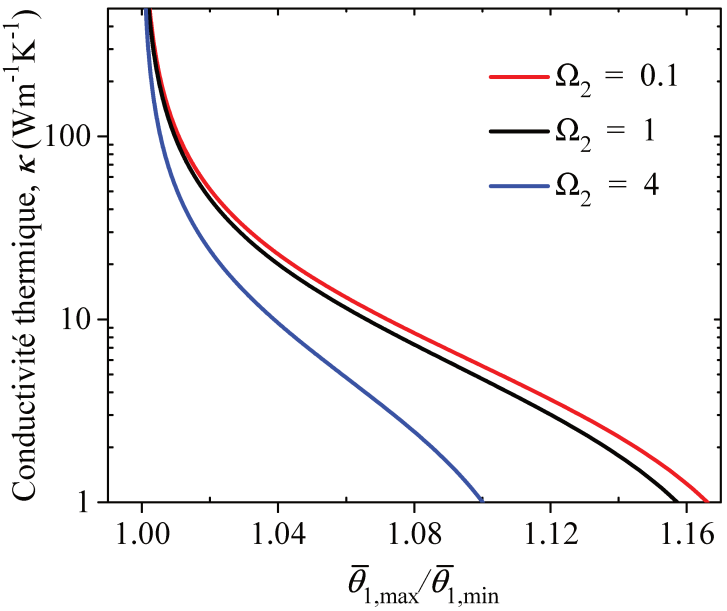

FIGURE 4.11 – Variation de de la conductivité thermique κ en fonction du rapport $\left(\overline{\theta}_{1,\max}/\overline{\theta}_{1,\min}\right)$ pour trois valeurs différentes de Ω_2. Les calculs ont été effectués pour $L = 10^{-3}$m, $T_0 = 300$ K et $q_1 = 2.10^6$ Wm^{-2}.

4.5 Conclusion

Dans ce chapitre, nous avons proposé trois différentes méthodes pour déterminer simultanément la diffusivité et la conductivité thermiques d'une couche d'épaisseur finie en se basant sur la solution de l'équation de la chaleur de Fourier. Ceci est obtenu en utilisant l'expression exacte du profil de température à la surface $z = 0$ lorsque celle-ci est excitée par un flux thermique modulé, tandis que la surface en $z = L$ peut être maintenue à trois conditions au bords différentes : (a) température modulée, (b) flux thermique modulé et (c) température constante. Nous avons déterminé les expressions des fréquences de modulation auxquelles le profil de température atteint ses premiers extréma (maximum et minimum). L'exploitation des valeurs de ces deux fréquences caractéristiques nous permet directement d'obtenir la diffusivité thermique de la couche d'épaisseur finie. En outre, la combinaison des fréquences caractéristiques avec le rapport entre le premier maximum et le premier minimum de la température, nous conduit aisément à

la détermination de la conductivité thermique de cette couche. Une fois que ces deux propriétés thermiques sont connues, on peut extraire la troisième propriété thermique intrinsèque à la couche, à savoir la chaleur spécifique par unité de volume. Ce travail pourrait ainsi servir de base pour la détermination de ces trois propriétés thermiques d'une couche d'épaisseur finie en comparant les résultats théoriques et les mesures expérimentales.

Conclusion et Perspectives

L'étude présentée dans ce mémoire de thèse porte sur la modélisation des transferts thermiques dans des nano couches diélectriques minces par la résolution de l'équation de transport de Boltzmann (ETB) appliquée aux phonons dans les régimes stationnaire et fréquentiel. Ce travail s'inscrit dans le cadre du développement des nanomatériaux en vue d'une utilisation plus rationnelle de l'énergie. De ce fait, il apporte des éléments complémentaires à la compréhension de la thermique aux petites échelles et en particulier le transfert thermique à l'interface. En effet, comme cela a été abordé dans ce mémoire, les lois classiques de la thermique ne s'appliquent plus aux petites échelles, où des phénomènes thermiques étonnants se produisent. Ainsi, depuis les premiers travaux de Majumdar [Maj93] et de Goodson [Fli92], le transfert thermique dans les matériaux nanostructurés (films minces, nanofils, multicouches ou super-réseaux) a occupé une place importante dans la recherche en physique. Ces objets nanostructurés ont été intensivement étudiées et plusieurs applications ont vu le jour en microélectronique comme ; le stockage de l'information et la téléphonie. En conséquence, le transport thermique dans les dispositifs électroniques est fortement affecté. On rencontre généralement des problèmes liés à la dissipation thermique dans les micros et nanobjets, ce qui baisse leur efficacité et leur fiabilité. Il est donc important de mieux comprendre le transfert de chaleur dans les systèmes micro et nanométriques, particulièrement le transport à l'interface.

La résolution de l'ETB en régimes stationnaire et dynamique s'est effectuée dans le cadre de l'approximation du temps de relaxation et du spectre gris. Cette résolution nous a permis dans un premier temps, d'étudier l'influence du régime du transport des phonons ainsi que la fréquence de modulation sur la résistance thermique d'interface (RTI). Ensuite nous nous sommes intéressés à la détermination des propriétés thermiques d'une couche d'épaisseur finie par la résolution de l'équation de la chaleur de Fourier.

Dans la première partie, nous nous sommes concentrés sur le comportement de la RTI en fonction de la nature du régime du transport des phonons. Comme nous l'avons vu dans le premier chapitre, les phonons (vibrations du réseau cristallin) sont les porteurs dominants de la chaleur dans un matériau diéletrique ou semi-conducteur. L'ETB permet de décrire leurs déplacements et leurs interactions quelle que soit la nature du régime du transport. A l'aide de la méthode des ordonnées discrètes, nous avons résolu l'ETB en régimes stationnaire et fréquentiel, ce qui nous a permis de décrire les variations de la température et du flux de chaleur dans les couches minces diélectriques excitées avec une source laser d'intensité modulée. En se basant sur cette résolution, nous avons étudié l'influence du régime du transport des phonons sur la RTI (Chapitre 2). Il s'est avéré que cette résistance d'interface présente un caractère non intrinsèque et asymétrique en fonction de la nature du régime du transport des phonons dans la couche d'épaisseur finie. Nous avons montré que les valeurs de la RTI dans le régime balistique sont supérieures à celles dans le régime diffusif, alors que dans le régime intermédiaire, elles dépendent fortement du rapport $\lambda = L/l$ entre l'épaisseur de la couche L et le LPM, l, des phonons. Cet effet est à l'origine des sauts de température qui deviennent importants à l'interface lorsque la taille du système est de même ordre ou plus petite que le LPM des phonons. Nos résultats sont en bon accord avec le modèle DMM dans le régime balistique, tandis que le pourcentage d'erreur entre les deux modèles est inférieur à 16% dans la limite diffusive. En effet, notre modèle théorique [Equation (2.33)] représente une généralisation du modéle DMM en tenant compte de l'effet du régime de transport des phonons sur la RTI. La deuxième tranche de cette partie est consacrée à l'étude de l'effet de la fréquence de modulation en combinaison avec le régime du transport des phonons sur la RTI (Chapitre 3). Nous avons obtenu une expression analytique de la RTI en fonction de la fréquence de modulation que ce soit dans le régime diffusif ou balistique. En outre, nous avons observé que dans le régime diffusif, la RTI passe par un maximum dont l'amplitude dépend des propriétés thermiques des couches constituant l'interface. La fréquence caractéristique à laquelle la RTI atteint son maximum est indépendante des propriétés thermiques des couches. A partir de l'expression de cette fréquence caractéristique, nous sommes capables d'extraire les propriétés physiques intrinsèques de la couche d'épaisseur finie, comme le LPM et le temps de relaxation des phonons.

Dans la deuxième partie, nous avons suggéré une méthode pour déterminer simultanément la diffusivité et la conductivité thermiques d'une couche d'épaisseur finie à partir de la résolution de l'équation de la chaleur de Fourier pour trois conditions aux bords différentes (Chapitre 4). L'idée est ici, d'utiliser l'expression exacte du profil de température à la face située en $z = 0$ lorsque celle-ci est excitée avec un flux thermique modulé, tandis que la la face opposée $(z = L)$ peut être maintenue à trois conditions différentes : (a) température modulée, (b) flux thermique modulé et (c) température constante. Nous avons déterminé les expressions des fréquences de modulation auxquelles le profil de température atteint ses premiers extréma (maximum et minimum). Nous avons montré également que ces fréquences caractéristiques permettent d'obtenir la diffusivité thermique de la couche d'épaisseur finie. De plus, la combinaison des fréquences caractéristiques avec le rapport entre le premier maximum et le premier minimum de la température, conduisant à la détermination de la conductivité thermique. En effet, la détermination simultanée de la diffusivité et de la conductivité thermiques d'une couche ne nécessite que la mesure de deux fréquences caractéristiques et les valeurs correspondantes du signal de température au niveau de sa surface éclairée. Cela représente l'un des avantages de la méthode proposée par rapport à d'autres méthodes photothermiques, telle que la thermoréflectance, qui nécessite d'enregistrer l'amplitude et la phase du champ de température sur un large intervalle de fréquence de modulation afin de mesurer les mêmes propriétés [Sch08].

Plusieurs perspectives d'extension de ce travail peuvent être envisagées.

• Concernant la résolution analytique de l'ETB dans le régime dynamique où deux couches d'épaisseur finie sont mises en contact, il sera intéressant de calculer les profils de température et du flux de chaleur dans chaque couche en fonction de leurs épaisseurs et de la fréquence de modulation, comme ce qu'a dèjà été fait pour le cas stationnaire. Avec cette résolution, nous serons en mesure d'étudier l'influence de l'épaisseur de chaque couche ainsi que la fréquence de modulation sur la RTI.

• Possibilité de résoudre l'ETB à l'aide de la méthode des ordonnées discrètes dans le cas bidimensionnel (2D) en considérant un milieu gris. Cette résolution nous permettra de décrire les variations de la température et du flux de chaleur suivant les directions

parallèle et perpendiculaire. Par la suite, nous étudions les effets de la longueur et de la largeur de la configuration 2D sur la conductivité thermique effective.

• Comme nous l'avons vu dans cette thèse, l'étude du comportement de la RTI en fonction de la nature du régime du transport des phonons est basée sur la résolution analytique de l'ETB en supposant un milieu gris pour lequel le temps de relaxation est constant. Cette approximation est surtout valide à basse température, là où la dispersion du spectre des phonons est négligeable. Aux hautes températures, l'effet de dispersion doit être pris en compte dans la modélisation. En effet, il serait utile de résoudre l'ETB en tenant compte de la dépendance spéctrale. Cela permettrait de généraliser l'approche du spectre gris.

• Possibilité de résoudre l'ETB pour les nanomatériaux métalliques et diélectriques avec des géométries cylindriques. Ainsi, nous pourrions déterminer les propriétés physiques intrinsèques des nanofils comme le LPM et le temps de relaxation des phonons.

Bibliographie

[AG94] JJ ALVARADO-GIL, O ZELAYA-ANGEL, H VARGAS et al., « Photoacoustic characterization of the thermal properties of a semiconductor-glass two-layer system », *Phys. Rev. B.* 50.19 (1994), p. 14627. DOI : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.50.14627.

[Ala18a] Kamal ALAILI, Jose ORDONEZ-MIRANDA et Younès EZZAHRI, « Effective interface thermal resistance and thermal conductivity of dielectric nanolayers », *Int. J. Therm. Sci.* 131 (2018), p. 40-47. URL : https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2018.05.024.

[Ala18b] Kamal ALAILI, Jose ORDONEZ-MIRANDA et Younès EZZAHRI, « Modulated heat conduction in a two-layer dielectric system with dynamical interface thermal resistance », *J. Appl. Phys.* 124.24 (2018), p. 245101. URL : https://doi.org/10.1063/1.5058747.

[Ala19] Kamal ALAILI, Jose ORDONEZ-MIRANDA et Younès EZZAHRI, « Simultaneous determination of thermal diffusivity and thermal conductivity of a thin layer using double modulated thermal excitations », *J. Appl. Phys.* 126.14 (2019), p. 145103. DOI : 10.1063/1.5116526.

[Alm96] Darryl P ALMOND, Pravin PATEL et PM PATEL, *Photothermal science and techniques*. T. 10. Springer Science & Business Media, 1996.

[Alv07] FX ALVAREZ et D JOU, « Memory and nonlocal effects in heat transport : from diffusive to ballistic regimes », *Appl. Phys. Lett.* 90.8 (2007), p. 083109. URL : https://doi.org/10.1063/1.2645110.

[Alv10] F. X. ALVAREZ, J. ALVAREZ-QUINTANA, D. JOU et J. Rodriguez VIEJO, « Analytical expression for thermal conductivity of superlattices », *J. Appl. Phys.* 107.8 (2010), p. 084303. URL : https://doi.org/10.1063/1.3386464.

[AP97] M ASEN-PALMER et al., « Thermal conductivity of germanium crystals with different isotopic compositions », *Phys. Rev. B.* 56.15 (1997), p. 9431. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.56.9431.

[Ash12] Neil William ASHCROFT et N David MERMIN, *Physique des solides*. EDP sciences, 2012.

[Ast10] Nelson GC ASTRATH et al., « An open-photoacoustic-cell method for thermal characterization of a two-layer system », *J. Appl. phys.* 107.4 (2010), p. 043514. URL : https://doi.org/10.1063/1.3310319.

[Bed15] A BEDOYA, E MARÍN, AM MANSANARES, MA ZAMBRANO-ARJONA, I RIECH et A CALDERÓN, « On the thermal characterization of solids by photoacoustic calorimetry : thermal diffusivity and linear thermal expansion coefficient », *Thermochim. Acta* 614 (2015), p. 52-58. URL : https://doi.org/10.1016/j.tca.2015.06.009.

[Ber04] Audrey BERRIER, Mikaël MULOT, Marcin SWILLO, Min QIU, Lars THYLÉN, A TALNEAU et Srinivasan ANAND, « Negative refraction at infrared wavelengths in a two-dimensional photonic crystal », *Phys. Rev. Lett.* 93.7 (2004), p. 073902. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.93.073902.

[BL01] Jose Abraham BALDERAS-LOPEZ et A MANDELIS, « Thermal diffusivity measurements in the photoacoustic open-cell configuration using simple signal normalization techniques », *J. Appl. Phys.* 90.5 (2001), p. 2273-2279. URL : https://doi.org/10.1063/1.1391224.

[BL03] Jose Abraham BALDERAS-LOPEZ et A MANDELIS, « Self-normalized photothermal technique for accurate thermal diffusivity measurements in thin metal layers », *Rev. Sci. Instrum.* 74.12 (2003), p. 5219-5225. URL : https://doi.org/10.1063/1.1623626.

[BL96] Jose Abraham BALDERAS-LOPEZ, SA TOMAS, H VARGAS, V OLALDE-PORTUGAL et al., « Photoacoustic thermal characterization of wood », *Forest Prod. J.* 46.4 (1996), p. 84.

[Bod05] Jean-Luc BODNAR, Salim BRAHIM, Alain BOUTEMY, JC CANTONE et Philippe GROSSEL, « Contrôle non destructif par radiométrie photothermique

sous excitation aléatoire : principe et exemples d'application », *Congrès Annuel de la Société Française de Thermique, Reims, France* (2005).

[Bod06] Jerzy BODZENTA, Bogusław BURAK, Marian NOWAK, Monika PYKA, Maria SZAŁAJKO et Marta TANASIEWICZ, « Measurement of the thermal diffusivity of dental filling materials using modified Ångström's method », *Dent. Mater. J.* 22.7 (2006), p. 617-621. URL : https://doi.org/10.1016/j.dental.2005.05.016.

[BT00] Theodorian BORCA-TASCIUC et al., « Thermal conductivity of symmetrically strained Si/Ge superlattices », *Superlattices Microstruct.* 28.3 (2000), p. 199-206. URL : https://doi.org/10.1006/spmi.2000.0900.

[BT99] Theodorian BORCA-TASCIUC et al., « Thermal conductivity of Si/Ge superlattices », *Eighteenth International Conference on Thermoelectrics. Proceedings, ICT'99 (Cat. No. 99TH8407)*. IEEE. 1999, p. 201-204. DOI : 10.1109/ICT.1999.843368.

[CA18] F CERVANTES-ALVAREZ, JD MACIAS et JJ ALVARADO-GIL, « Heat transport in electrically aligned multiwalled carbon nanotubes dispersed in water », *J. Phys. D.* 51.6 (2018), p. 065302. URL : https://doi.org/10.1088%2F1361-6463%2Faaa1b0.

[Cah02] David G CAHILL, Kenneth GOODSON et Arunava MAJUMDAR, « Thermometry and thermal transport in micro/nanoscale solid-state devices and structures », *J. Heat. Transfer.* 124.2 (2002), p. 223-241. URL : https://doi.org/10.1115/1.1454111.

[Cah03] David G CAHILL et al., « Nanoscale thermal transport », *J. Appl. Phys.* 93.2 (2003), p. 793-818. URL : https://doi.org/10.1063/1.1524305.

[Cah14] David G CAHILL et al., « Nanoscale thermal transport. II. 2003–2012 », *Appl. Phys. Rev.* 1.1 (2014), p. 011305. URL : https://doi.org/10.1063/1.4832615.

[Cah87] David G CAHILL et Robert O POHL, « Thermal conductivity of amorphous solids above the plateau », *Phys. Rev. B.* 35.8 (1987), p. 4067. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.35.4067.

[Cah90] David G CAHILL, « Thermal conductivity measurement from 30 to 750 K : the 3ω method », *Rev. Sci. Instrum.* 61.2 (1990), p. 802-808. URL : https://doi.org/10.1063/1.1141498.

[Cah94] David G CAHILL, My KATIYAR et John R ABELSON, « Thermal conductivity of a-Si : H thin films », *Phys. Rev. B.* 50.9 (1994), p. 6077. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.50.6077.

[Cal59] Joseph CALLAWAY, « Model for lattice thermal conductivity at low temperatures », *Phys. Rev.* 113.4 (1959), p. 1046. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRev.113.1046.

[Car61] Peter CARRUTHERS, « Theory of thermal conductivity of solids at low temperatures », *Rev. Mod. Phys.* 33.1 (1961), p. 92. URL : https://doi.org/10.1103/RevModPhys.33.92.

[Cha03] S CHAKRABORTY, CA KLEINT, A HEINRICH, CM SCHNEIDER, J SCHUMANN, M FALKE et S TEICHERT, « Thermal conductivity in strain symmetrized Si/Ge superlattices on Si (111) », *Appl. Phys. Lett.* 83.20 (2003), p. 4184-4186. URL : https://doi.org/10.1063/1.1628819.

[Cha05] Patrice CHANTRENNE, JL BARRAT, X BLASE et JD GALE, « An analytical model for the thermal conductivity of silicon nanostructures », *J. Appl. Phys.* 97.10 (2005), p. 104318. URL : https://doi.org/10.1063/1.1898437.

[Cha13] Laurent CHAPUT, « Direct solution to the linearized phonon Boltzmann equation », *Phys. Rev. Lett.* 110.26 (2013), p. 265506. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.110.265506.

[Che05a] Gang CHEN, *Nanoscale energy transport and conversion : a parallel treatment of electrons, molecules, phonons, and photons*. Oxford University Press, 2005.

[Che05b] Yunfei CHEN, Deyu LI, Jennifer R LUKES et Arun MAJUMDAR, « Monte Carlo simulation of silicon nanowire thermal conductivity », *J. Heat Transfer* 127.10 (2005), p. 1129-1137. URL : https://doi.org/10.1115/1.2035114.

[Che93] Gang CHEN et CL TIEN, « Thermal conductivities of quantum well structures », *J. Thermophys. Heat Transfer* 7.2 (1993), p. 311-318. URL : https://doi.org/10.2514/3.421.

[Che97] Gang CHEN, « Size and interface effects on thermal conductivity of superlattices and periodic thin-film structures », *ASME J. Heat Transfer* 119.2 (1997), p. 220-229. URL : https://doi.org/10.1115/1.2824212.

[Che98] Gang CHEN, « Thermal conductivity and ballistic-phonon transport in the cross-plane direction of superlattices », *Phys. Rev. B* 57.23 (1998), p. 14958. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.57.14958.

[CLT98] A. Majumdar C. L. TIEN et F. M. GERNER, *Transport, Microscale Energy*. Taylor & Francis, Washington, DC, 1998.

[Cow61] Robert D COWAN, « Proposed method of measuring thermal diffusivity at high temperatures », *J. Appl. phys.* 32.7 (1961), p. 1363-1370. URL : https://doi.org/10.1063/1.1736235.

[Dam04] Chris DAMES et Gang CHEN, « Theoretical phonon thermal conductivity of Si/Ge superlattice nanowires », *J. Appl. Phys.* 95.2 (2004), p. 682-693. URL : https://doi.org/10.1063/1.1631734.

[Dat] See http://www.ioffe.ru/SVA/NSM/Semicond/index.html for a very interesting collection of experimental data on various physical properties of the main semiconductor crystals. All information is supported by a full list of references.

[Dep05] M DEPRIESTER, P HUS, S DELENCLOS et A Hadj SAHRAOUI, « New methodology for thermal parameter measurements in solids using photothermal radiometry », *Rev. Sci. Instrum.* 76.7 (2005), p. 074902. URL : https://doi.org/10.1063/1.1942532.

[Des10] Laurent DESVILLETTES, Clément MOUHOT et Cédric VILLANI, « Celebrating Cercignani's conjecture for the Boltzmann equation », *arXiv preprint arXiv :1009.4006* (2010). DOI : 10.3934/krm.2011.4.277.

[Dil11] Stefan DILHAIRE, Gilles PERNOT, Gaëtan CALBRIS, Jean-Michel RAMPNOUX et Stéphane GRAUBY, « Heterodyne picosecond thermoreflectance applied to nanoscale thermal metrology », *J.Appl. Phys.* 110.11 (2011), p. 114314. URL : https://doi.org/10.1063/1.3665129.

[Dje08] Brahim DJELLOUL et Ahmed SALIM, « Radiométrie photothermique sous excitation aléatoire : application à la mesure de propriétés thermophysiques ». Thèse de doct. Reims, 2008.

[Dol63] G DOLLING, « Lattice vibrations in crystals with the diamond structure », *Inelastic Scattering of Neutrons in Solids and Liquids. V. II. Proceedings of the Symposium on Inelastic Scattering of Neurons in Solids and Liquids*. 1963.

[Don15] Yuan DONG, Bing-Yang CAO et Zeng-Yuan GUO, « Ballistic–diffusive phonon transport and size induced anisotropy of thermal conductivity of silicon nanofilms », *Physica E : Low-Dimensional Systems and Nanostructures* 66 (2015), p. 1-6. URL : https://doi.org/10.1016/j.physe.2014.09.011.

[Esf11] Keivan ESFARJANI, Gang CHEN et Harold T STOKES, « Heat transport in silicon from first-principles calculations », *Phys. Rev. B* 84.8 (2011), p. 085204. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.84.085204.

[Ezz12] Younes EZZAHRI et Karl JOULAIN, « Dynamical thermal conductivity of bulk semiconductor crystals », *J. Appl. Phys.* 112.8 (2012), p. 083515. URL : https://doi.org/10.1063/1.4759366.

[Fis98] P FISSIER et JL BODNAR, « Analyse multifréquentielle par radiométrie photothermique : Application à la mesure de diffusivité thermique », *Actes du congrès SFT*. T. 98. 1998.

[Fli92] MI FLIK, BI CHOI et KE GOODSON, « Heat transfer regimes in microstructures », *ASME J. Heat Transfer.* 114.3 (1992), p. 666-674. URL : https://doi.org/10.1115/1.2911332.

[Fon14] Ed FONG et Tung T LAM, « Asymmetrical collision of thermal waves in thin films : An analytical solution », *Int. J. Therm. Sci.* 77 (2014), p. 55-65. URL : https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2013.10.001.

[Gal03] Slobodanka GALOVIĆ et D KOSTOSKI, « Photothermal wave propagation in media with thermal memory », *J. Appl. Phys.* 93.5 (2003), p. 3063-3070. URL : https://doi.org/10.1063/1.1540741.

[Gau12] Sébastian GAUTHIER, « Caractérisation thermique de la matière par la méthode 3ω ». Thèse de doct. Université Montpellier II-Sciences et Techniques du Languedoc, 2012.

[Gle10] Andreas GLEITER et Guenther MAYR, « Thermal wave interference », *Infrared Physics & Technology* 53.4 (2010), p. 288-291. URL : https://doi.org/10.1016/j.infrared.2010.04.001.

[Hec18] Rodney HECHAVARRÍA et Diana COELLO-FIALLOS, « Solving the heat equation problem under periodic non-stationary conditions », *AIP Conference Proceedings*. T. 2003. 1. AIP Publishing. 2018, p. 020007. URL : https://doi.org/10.1063/1.5050359.

[Her54] Conyers HERRING, « Role of low-energy phonons in thermal conduction », *Phys. Rev.* 95.4 (1954), p. 954. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRev.95.954.

[Hol63] MG HOLLAND, « Analysis of lattice thermal conductivity », *Phys. Rev.* 132.6 (1963), p. 2461. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRev.132.2461.

[Hol64] MG HOLLAND, « Phonon scattering in semiconductors from thermal conductivity studies », *Phys. Rev.* 134.2A (1964), A471. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRev.134.A471.

[Hu08] Hanping HU, Wei ZHANG, Jun XU et Yi DONG, « General analytical solution for photoacoustic effect with multilayers », *Appl. Phys.Lett.* 92.1 (2008), p. 014103. URL : https://doi.org/10.1063/1.2828695.

[Hua15] Chengyun HUA et Austin J MINNICH, « Semi-analytical solution to the frequency-dependent Boltzmann transport equation for cross-plane heat conduction in thin films », *J. Appl. Phys.* 117.17 (2015), p. 175306. URL : https://doi.org/10.1063/1.4919432.

[Hux02a] Scott T HUXTABLE, Alexis R ABRAMSON, Arun MAJUMDAR, Ali SHAKOURI et Edward T CROKE, *The effect of defects and acoustic impedance mismatch on heat conduction SiGe based superlattices*. Rapp. tech. CALIFORNIA UNIV BERKELEY DEPT OF MECHANICAL ENGINEERING, 2002. URL : https://doi.org/10.1115/IMECE2002-39239.

[Hux02b] Scott T HUXTABLE et al., « Thermal conductivity of Si/SiGe and SiGe/SiGe superlattices », *Appl. Phys. Lett.* 80.10 (2002), p. 1737-1739. URL : https://doi.org/10.1063/1.1455693.

[Inc90] Frank P INCROPERA, David P DEWITT, Theodore L BERGMAN, Adrienne S LAVINE et Frank P INCROPERA, *Introduction to heat transfer*. Wiley Textbooks, 1990.

[Jac88] C JACOBONI, P POLI et L ROTA, « A new Monte Carlo technique for the solution of the Boltzmann transport equation », *Hot Carriers in Semiconductors*. Elsevier, 1988, p. 523-526. URL : https://doi.org/10.1016/B978-0-08-036237-3.50053-X.

[Kai17] J. KAISER, T. FENG, J. MAASSEN, X. WANG, X. RUAN et M. LUNDSTROM, « Thermal transport at the nanoscale : A Fourier's law vs. phonon Boltzmann equation study », *J. App. Phys* 121.4 (2017), p. 044302. URL : https://doi.org/10.1063/1.4974872.

[Kak17] Rohit R KAKODKAR et Joseph P FESER, « Probing the validity of the diffuse mismatch model for phonons using atomistic simulations », *Phys. Rev. B* 95.12 (2017), p. 125434. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.95.125434.

[Kap41] PL KAPITZA, « The study of heat transfer in helium II », *J. Phys. (Moscow)* 4 (1941), p. 181.

[Kha52] Isaac M KHALATNIKOV, *An Introduction To The Theory Of Superfluidity*. T. 22. CRC Press, 1952, p. 687.

[Kim15] Woochul KIM, « Strategies for engineering phonon transport in thermoelectrics », *J. Mater. Chem. C* 3.40 (2015), p. 10336-10348.

[Kit96] Charles KITTEL, Paul MCEUEN et Paul MCEUEN, *Introduction to solid state physics*. T. 8. Wiley New York, 1996.

[Kle58] PG KLEMENS, « Thermal conductivity and lattice vibrational modes », *Solid state physics*. T. 7. Elsevier, 1958, p. 1-98. URL : https://doi.org/10.1016/S0081-1947(08)60551-2.

[Koh09] Yee Kan KOH et al., « Comparison of the 3 ω method and time-domain thermoreflectance for measurements of the cross-plane thermal conductivity of epitaxial semiconductors », *J. Appl. Phys.* 105.5 (2009), p. 054303. URL : https://doi.org/10.1063/1.3078808.

[Lac05] David LACROIX, Karl JOULAIN et Denis LEMONNIER, « Monte Carlo transient phonon transport in silicon and germanium at nanoscales », *Phys. Rev. B* 72.6 (2005), p. 064305. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.72.064305.

[Lam10] Tung T LAM, « Thermal propagation in solids due to surface laser pulsation and oscillation », *Int. J. Therm. Sci.* 49.9 (2010), p. 1639-1648. URL : https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2010.03.010.

[Lam11] Tung T LAM et Ed FONG, « Heat diffusion vs. wave propagation in solids subjected to exponentially-decaying heat source : Analytical solution », *Int. J. Therm. Sci.* 50.11 (2011), p. 2104-2116. URL : https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2011.05.006.

[Lam13] Tung T LAM et Ed FONG, « Application of solution structure theorems to Cattaneo–Vernotte heat conduction equation with non-homogeneous boundary conditions », *Heat Mass Transfer* 49.4 (2013), p. 509-519. URL : https://doi.org/10.1007/s00231-012-1097-4.

[Lee97a] S-M LEE et David G CAHILL, « Heat transport in thin dielectric films », *J. Appl. Phys.* 81.6 (1997), p. 2590-2595. URL : https://doi.org/10.1063/1.363923.

[Lee97b] S-M LEE, David G CAHILL et Rama VENKATASUBRAMANIAN, « Thermal conductivity of Si-Ge superlattices », *Appl. Phys. Lett.* 70.22 (1997), p. 2957-2959. URL : https://doi.org/10.1063/1.118755.

[Lim06] CAS LIMA, LCM MIRANDA et H VARGAS, « Photoacoustics of Two-Layer Systems : Thermal Properties of Liquids and Thermal Wave Interference », *Instrum. Sci. Technol.* 34.1-2 (2006), p. 191-209. URL : https://doi.org/10.1080/10739140500374211.

[Lit59] WA LITTLE, « The transport of heat between dissimilar solids at low temperatures », *Can. J. Phys.* 37.3 (1959), p. 334-349. URL : https://doi.org/10.1139/p59-037.

[Lye06] Ho-Ki LYEO et David G CAHILL, « Thermal conductance of interfaces between highly dissimilar materials », *Phys. Rev. B* 73.14 (2006), p. 144301. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.73.144301.

[Ma12] Yanbao MA, « Size-dependent thermal conductivity in nanosystems based on non-Fourier heat transfer », *Appl. Phys.Lett.* 101.21 (2012), p. 211905. URL : https://doi.org/10.1063/1.4767337.

[Maj04] Arun MAJUMDAR et Pramod REDDY, « Role of electron–phonon coupling in thermal conductance of metal–nonmetal interfaces », *Appl. Phys. Lett.* 84.23 (2004), p. 4768-4770. URL : https://doi.org/10.1063/1.1758301.

[Maj93] ASME MAJUMDAR, « Microscale heat conduction in dielectric thin films », *ASME. J. Heat. Transfer* 115.1 (1993), p. 7-16. URL : https://doi.org/10.1115/1.2910673.

[Mal11] Martin MALDOVAN, « Micro to nano scale thermal energy conduction in semiconductor thin films », *J. Appl. Phys.* 110.3 (2011), p. 034308. URL : https://doi.org/10.1063/1.3607295.

[Man00] Andreas MANDELIS et Peter HESS, *Semiconductors and electronic materials*. T. 4. Spie Press, 2000.

[Man91] AM MANSANARES, H VARGAS, F GALEMBECK, J BUIJS et D BICANIC, « Photoacoustic characterization of a two-layer system », *J. Appl. phys.* 70.11 (1991), p. 7046-7050. URL : https://doi.org/10.1063/1.349782.

[Maz01] Sandip MAZUMDER et Arunava MAJUMDAR, « Monte Carlo study of phonon transport in solid thin films including dispersion and polarization », *ASME J. Heat Transfer.* 123.4 (2001), p. 749-759. URL : https://doi.org/10.1115/1.1377018.

[McG11] Alan JH McGaughey, Eric S Landry, Daniel P Sellan et Cristina H Amon, « Size-dependent model for thin film and nanowire thermal conductivity », *Appl. Phys. Lett.* 99.13 (2011), p. 131904. URL : https://doi.org/10.1063/1.3644163.

[Min05] N Mingo et DA Broido, « Carbon nanotube ballistic thermal conductance and its limits », *Phys. Rev. Lett.* 95.9 (2005), p. 096105. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.95.096105.

[Mor02] DT Morelli, JP Heremans et GA Slack, « Estimation of the isotope effect on the lattice thermal conductivity of group IV and group III-V semiconductors », *Phys. Rev. B.* 66.19 (2002), p. 195304. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.66.195304.

[Mus03] Orazio Muscato, « Relaxation-time approximations to the Boltzmann equation for electron transport in bulk silicon », *Physica A : Statistical Mechanics and its Applications* 317.1-2 (2003), p. 113-128. URL : https://doi.org/10.1016/S0378-4371(02)01320-1.

[Nor79] Per-Erik Nordal et Svein Otto Kanstad, « Photothermal radiometry », *Phys. Scr.* 20.5-6 (1979), p. 659.

[OM09] J Ordonez-Miranda et JJ Alvarado-Gil, « Thermal wave oscillations and thermal relaxation time determination in a hyperbolic heat transport model », *Int. J. Therm. Sci.* 48.11 (2009), p. 2053-2062. URL : https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2009.03.008.

[OM10a] J Ordóñez-Miranda et JJ Alvarado-Gil, « Exact solution of the dual-phase-lag heat conduction model for a one-dimensional system excited with a periodic heat source », *Mech. Res. Commun.* 37.3 (2010), p. 276-281. URL : https://doi.org/10.1016/j.mechrescom.2010.03.002.

[OM10b] J Ordonez-Miranda et Juan José Alvarado-Gil, « Effective thermal properties of multilayered systems with interface thermal resistance in a hyperbolic heat transfer model », *Int. J. Therm. Sci.* 31.4-5 (2010), p. 900-925. URL : https://doi.org/10.1007/s10765-010-0777-x.

[OM11] Jose ORDONEZ-MIRANDA, Ronggui YANG et JJ ALVARADO-GIL, « A constitutive equation for nano-to-macro-scale heat conduction based on the Boltzmann transport equation », *J. Appl. Phys.* 109.8 (2011), p. 084319. URL : https://doi.org/10.1063/1.3573512.

[OM15] Jose ORDONEZ-MIRANDA, Ronggui YANG, Sebastian VOLZ et Juan Jose ALVARADO-GIL, « Steady state and modulated heat conduction in layered systems predicted by the analytical solution of the phonon Boltzmann transport equation », *J. Appl. Phys.* 118.7 (2015), p. 075103. URL : https://doi.org/10.1063/1.4928770.

[Özı73] M Necati ÖZIŞIK, *Radiative transfer and interactions with conduction and convection*. Wiley, New York, 1973.

[Pad86] Carolyn A PADDOCK et Gary L EESLEY, « Transient thermoreflectance from thin metal films », *J. Appl. Phys.* 60.1 (1986), p. 285-290. URL : https://doi.org/10.1063/1.337642.

[Pér14] Jean-Philippe M PÉRAUD, Colin D LANDON et Nicolas G HADJICONSTANTINOU, « Monte Carlo methods for solving the Boltzmann transport equation », *Annual Review of Heat Transfer* 17 (2014). DOI : 10.1615/AnnualRevHeatTransfer.2014007381.

[Per87] LF PERONDI et LCM MIRANDA, « Minimal-volume photoacoustic cell measurement of thermal diffusivity : Effect of the thermoelastic sample bending », *J. Appl. Phys.* 62.7 (1987), p. 2955-2959. URL : https://doi.org/10.1063/1.339380.

[Pet94] RB PETERSON, « Direct simulation of phonon-mediated heat transfer in a Debye crystal », *J. Heat Transfer* 116.4 (1994), p. 815-822. URL : https://doi.org/10.1115/1.2911452.

[PG10] Jose Antonio PASCUAL-GUTIERREZ, « On the Theory of Phonons : A Journey from their Origins to the Intricate Mechanisms of their Transport », (2010).

[Phe98] Patrick E PHELAN, « Application of diffuse mismatch theory to the prediction of thermal boundary resistance in thin-film high-Tc superconductors »,

ASME J. Heat Transfer. 120.1 (1998), p. 37-43. URL : https://doi.org/10.1115/1.2830060.

[PJ86] O PESSOA JR, CL CESAR, NA PATEL, H VARGAS, CC GHIZONI et LCM MIRANDA, « Two-beam photoacoustic phase measurement of the thermal diffusivity of solids », *J. Appl. Phys.* 59.4 (1986), p. 1316-1318. URL : https://doi.org/10.1063/1.336524.

[Reg14] KT REGNER, Alan JH MCGAUGHEY et Jonathan A MALEN, « Analytical interpretation of nondiffusive phonon transport in thermoreflectance thermal conductivity measurements », *Phys. Rev. B* 90.6 (2014), p. 064302. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.90.064302.

[Ros76] Allan ROSENCWAIG et Allen GERSHO, « Theory of the photoacoustic effect with solids », *J. Appl. Phys.* 47.1 (1976), p. 64-69. URL : https://doi.org/10.1063/1.322296.

[Rou15] Justin ROUXEL, « Conception et réalisation de cellules photoacoustiques miniaturisées pour la détection de traces de gaz ». Thèse de doct. 2015.

[Rou83] G ROUSSET, F LEPOUTRE et L BERTRAND, « Influence of thermoelastic bending on photoacoustic experiments related to measurements of thermal diffusivity of metals », *J. Appl. Phys.* 54.5 (1983), p. 2383-2391. URL : https://doi.org/10.1063/1.332352.

[Sal06] Agustin SALAZAR, « Energy propagation of thermal waves », *Eur. J. Phys.* 27.6 (2006), p. 1349. URL : https://doi.org/10.1088%2F0143-0807%2F27%2F6%2F009.

[Sal11] Agustín SALAZAR, Raquel FUENTE, Estibaliz APINANIZ, Arantza MENDIOROZ et R CELORRIO, « Simultaneous measurement of thermal diffusivity and optical absorption coefficient using photothermal radiometry. II Multilayered solids », *J. Appl. Phys.* 110.3 (2011), p. 033516. URL : https://doi.org/10.1063/1.3614525.

[Sal98] A SALAZAR, A SANCHEZ-LAVEGA et JM TERRON, « Effective thermal diffusivity of layered materials measured by modulated photothermal techniques », *J. Appl. phys.* 84.6 (1998), p. 3031-3041. URL : https://doi.org/10.1063/1.368457.

[Sch08] Aaron J SCHMIDT, Xiaoyuan CHEN et Gang CHEN, « Pulse accumulation, radial heat conduction, and anisotropic thermal conductivity in pump-probe transient thermoreflectance », *Rev. Sci. Instrum.* 79.11 (2008), p. 114902. URL : https://doi.org/10.1063/1.3006335.

[Šoš16] Zlatan ŠOŠKIĆ, Snežana ĆIRIĆ-KOSTIĆ et Slobodanka GALOVIĆ, « An extension to the methodology for characterization of thermal properties of thin solid samples by photoacoustic techniques », *Int. J. Therm. Sci.* 109 (2016), p. 217-230. DOI : 10.1016/j.ijthermalsci.2016.06.005.

[Spi67] Murray R SPIEGEL, *Applied differential equations*. Rapp. tech. 1967.

[Sri90] Gyaneshwar P SRIVASTAVA, *The physics of phonons*. T. 8. CRC press, 1990.

[Sto93a] RJ STONER et HJ MARIS, « Kapitza conductance and heat flow between solids at temperatures from 50 to 300 K », *Phys. Rev. B* 48.22 (1993), p. 16373. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.48.16373.

[Sto93b] RJ STONER et HJ MARIS, « Kinetic formula for estimating resistive phonon lifetimes », *Phys. Rev. B.* 47.18 (1993), p. 11826. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.47.11826.

[Swa87] ET SWARTZ et RO POHL, « Thermal resistance at interfaces », *Appl. Phys. Lett.* 51.26 (1987), p. 2200-2202. URL : https://doi.org/10.1063/1.98939.

[Swa89] Eric T SWARTZ et Robert O POHL, « Thermal boundary resistance », *Rev. Mod. Phys.* 61.3 (1989), p. 605. URL : https://doi.org/10.1103/RevModPhys.61.605.

[Tar16] Andallib TARIQ et Mohammad ASIF, « Experimental investigation of thermal contact conductance for nominally flat metallic contact », *Int. J. Heat. Mass. Transfer.* 52.2 (2016), p. 291-307. URL : https://doi.org/10.1007/s00231-015-1551-1.

[Ter09a] Konstantinos TERMENTZIDIS, Patrice CHANTRENNE et Pawel KEBLINSKI, « Nonequilibrium molecular dynamics simulation of the in-plane thermal conductivity of superlattices with rough interfaces », *Phys. Rev. B* 79.21 (2009), p. 214307. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.79.214307.

[Ter09b] Damian TERRIS, Karl JOULAIN, Denis LEMONNIER, David LACROIX et Patrice CHANTRENNE, « Prediction of the thermal conductivity anisotropy of Si nanofilms. Results of several numerical methods », *Int. J. Therm. Sci.* 48.8 (2009), p. 1467-1476. URL : https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2009.01.005.

[Tor05] Shuichi TORII et Wen-Jei YANG, « Heat transfer mechanisms in thin film with laser heat source », *Int. J. Heat Mass Transfer* 48.3-4 (2005), p. 537-544. URL : https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2004.09.011.

[Ven00] Rama VENKATASUBRAMANIAN, « Lattice thermal conductivity reduction and phonon localizationlike behavior in superlattice structures », *Phys. Rev. B* 61.4 (2000), p. 3091. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.61.3091.

[Ven01] Rama VENKATASUBRAMANIAN, Edward SIIVOLA, Thomas COLPITTS et Brooks O'QUINN, « Thin-film thermoelectric devices with high room-temperature figures of merit », *Nature* 413.6856 (2001), p. 597. URL : https://doi.org/10.1038/35098012.

[Vol99] Sebastian G VOLZ et Gang CHEN, « Molecular dynamics simulation of thermal conductivity of silicon nanowires », *Appl. Phys. Lett.* 75.14 (1999), p. 2056-2058. URL : https://doi.org/10.1063/1.124914.

[VP12] C VALES-PINZON, J ORDONEZ-MIRANDA et JJ ALVARADO-GIL, « Photothermal characterization of the thermal properties of materials using four characteristic modulation frequencies in two-layer systems », *J. Appl. Phys.* 112.6 (2012), p. 064909. URL : https://doi.org/10.1063/1.4754552.

[Wan01] Xinwei WANG, Hanping HU et Xianfan XU, « Photo-acoustic measurement of thermal conductivity of thin films and bulk materials », *J. Heat Transfer* 123.1 (2001), p. 138-144. DOI : 10.1115/1.1337652.

[Wan07] Liqiu WANG, Xuesheng ZHOU et Xiaohao WEI, *Heat conduction : mathematical models and analytical solutions*. Springer Science & Business Media, 2007.

[Wan13] Xinwei WANG, Baratunde A COLA, Thomas L BOUGHER, Stephen L HODSON, Timothy S FISHER et Xianfan XU, « Photoacoustic technique for thermal conductivity and thermal interface measurements », *Annual Review of Heat Transfer* 16 (2013).

[Won11] Basil T WONG, Mathieu FRANCOEUR et M Pinar MENGÜÇ, « A Monte Carlo simulation for phonon transport within silicon structures at nanoscales with heat generation », *Int. J. Heat Mass Transfer* 54.9-10 (2011), p. 1825-1838. URL : https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2010.10.039.

[Xia17] Yaoqi XIAN, Siping ZHAI, Peng YUAN, Ping ZHANG et Daoguo YANG, « Experimental Characterization Methods for Thermal Contact Resistance : A Review », *Appl. Therm. Eng.* 130 (2017), p. 1530-1548. URL : https://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2017.10.163.

[Xia18] Yaoqi XIAN, Ping ZHANG, Siping ZHAI, Peng YUAN et Daoguo YANG, « Experimental characterization methods for thermal contact resistance : a review », *Appl. Therm. Eng.* 130 (2018), p. 1530-1548. URL : https://doi.org/10.1016/j.applthermaleng.2017.10.163.

[Xu07] Yibin XU, Haitao WANG, Yoshihisa TANAKA, Masato SHIMONO et Masayoshi YAMAZAKI, « Measurement of interfacial thermal resistance by periodic heating and a thermo-reflectance technique », *Mater. Trans.* 48.2 (2007), p. 148-150. URL : https://doi.org/10.2320/matertrans.48.148.

[Xu14] Mingtian XU, « Slip boundary condition of heat flux in Knudsen layers », *Proceedings of the Royal Society A : Mathematical, Physical and Engineering Sciences* 470.2161 (2014), p. 20130578. URL : https://doi.org/10.1098/rspa.2013.0578.

[Yan04] Ronggui YANG et Gang CHEN, « Thermal conductivity modeling of periodic two-dimensional nanocomposites », *Phys. Rev. B* 69.19 (2004), p. 195316. URL : https://doi.org/10.1103/PhysRevB.69.195316.

[Yan10] Fan YANG, Teruyuki IKEDA, G Jeffrey SNYDER et Chris DAMES, « Effective thermal conductivity of polycrystalline materials with randomly oriented superlattice grains », *J. Appl. Phys.* 108.3 (2010), p. 034310. URL : https://doi.org/10.1063/1.3457334.

[Yan15] Nuo YANG et al., « Thermal interface conductance between aluminum and silicon by molecular dynamics simulations », *J. Comput. Theor. Nanosci.* 12.2 (2015), p. 168-174. URL : https://doi.org/10.1166/jctn.2015.3710.

[Yao87] Takafumi YAO, « Thermal properties of AlAs/GaAs superlattices », *Appl. Phys. Lett.* 51.22 (1987), p. 1798-1800. URL : https://doi.org/10.1063/1.98526.

[Yu05] P.Y. YU et M. CARDONA, *Fundamentals of semiconductors*. Physics et materials properties. Springer, 2005. DOI : 10.1007/978-3-642-00710-1.

[Zha13] Min-Kai ZHANG, Bing-Yang CAO et Yin-Cheng GUO, « Numerical studies on dispersion of thermal waves », *Int. J. Heat Mass Transfer* 67 (2013), p. 1072-1082. URL : https://doi.org/10.1016/j.ijheatmasstransfer.2013.08.102.

[Zhu10] Jie ZHU, Dawei TANG, Wei WANG, Jun LIU, Kristopher W HOLUB et Ronggui YANG, « Ultrafast thermoreflectance techniques for measuring thermal conductivity and interface thermal conductance of thin films », *J. Appl. Phys.* 108.9 (2010), p. 094315. URL : https://doi.org/10.1063/1.3504213.

[Zim60] J. M. ZIMAN, *Electrons and phonons : the theory of transport phenomena in solids*. Oxford university press, 1960.

Annexe A

Calcul de la conductivité thermique à partir du modèle cinétique

Dans cette annexe, nous détaillons le calcul de la conductivité thermique à partir du modèle cinétique. En particulier, la démonstration de l'équation (1.28) est apportée.
Lorsque le transport de chaleur est diffusif et on se place au régime stationnaire, le flux de chaleur conductif q est régi par la loi de Fourier :

$$q = -\kappa \frac{dT}{dz}. \tag{A.1}$$

q est donc la puissance transmise par unité de surface. Les phonons subissent des collisions avant de traverser l'échantillon et ne se propagent pas en ligne droite.
Le flux de chaleur est défini comme étant la moyenne du produit de la densité d'énergie et de la composante du vecteur vitesse selon l'axe $\vec{e_z}$ sur tous les endroits où le phonon aurait pu subir une collision. Tous les phonons qui traversent le point z_0 le font depuis une distance égale au lpm, l, selon un angle θ et la direction $\vec{e_z}$ [Figure A.1].

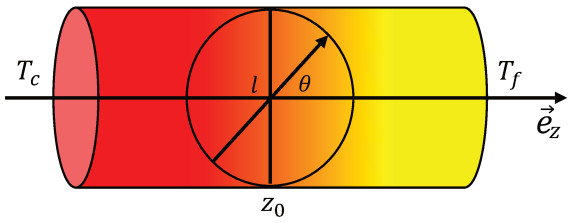

FIGURE A.1 – Déplacement d'un phonon autour d'une position z_0 dans un barreau soumis à une différence de température $\Delta T = T_c - T_f$.

$$\begin{aligned} q &= < v_z E\left(z_0 - l\cos\theta\right) >_\theta \\ &= \int_{4\pi} v_z E\left(z_0 - l\cos\theta\right) \frac{d\Omega}{4\pi} = \frac{1}{4\pi} \int_0^{2\pi} d\phi \int_0^{\pi} v\cos\theta\sin\theta E\left(z_0 - l\cos\theta\right) d\theta \end{aligned} \tag{A.2}$$

où $v_z = vcos\theta$ la composante de la vitesse de groupe suivant l'axe z et E l'énergie d'un phonon. De plus, en utilisant un développement limité d'ordre 1, on a :

$$E\left(z_0 - l\cos\theta\right) = E\left(z_0\right) - l\cos\theta\frac{\partial E}{\partial z} = E\left(z_0\right) - l\cos\theta\frac{\partial T}{\partial z}\frac{\partial E}{\partial T}, \tag{A.3}$$

soit :

$$q = \frac{1}{2}C_V vl\frac{\partial T}{\partial z}\int_0^{\pi}\cos^2\theta\sin\theta d\theta = -\left(\frac{1}{3}C_V vl\right)\frac{\partial T}{\partial z}. \tag{A.4}$$

D'après les équations (A.1) et (A.4), on en déduit l'expression finale de la conductivité thermique :

$$\kappa = \frac{1}{3}C_V vl = \frac{1}{3}C_V v^2\tau. \tag{A.5}$$

Annexe B

La loi de Fourier en régime stationnaire

Nous rappelons que dans les milieux massifs, la conduction thermique est contrôlée par la loi de Fourier. En régime stationnaire, cette loi s'écrit sous la forme :

$$q = -\kappa . \overrightarrow{\nabla} T, \tag{B.1}$$

où

$$\overrightarrow{\nabla} = \begin{bmatrix} \frac{\partial}{\partial x} \\ \frac{\partial}{\partial y} \\ \frac{\partial}{\partial z} \end{bmatrix}. \tag{B.2}$$

Dans le cas monodimensionnel, la relation (B.1) se réduit à :

$$q = -\kappa \frac{dT}{dz}. \tag{B.3}$$

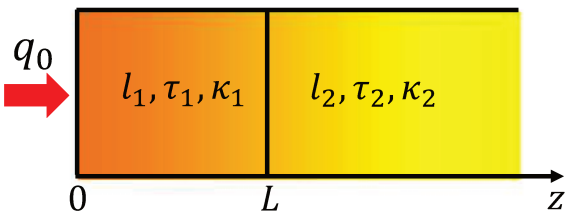

FIGURE B.1 – Couche d'épaisseur L déposée sur un substrat semi-infini. l_i, τ_i et κ_i $(j = 1, 2)$ désignent le LPM, le temps de relaxation et la conductivité thermique de la couche i, respectivement. Un flux thermique stationnaire est appliqué en $z = 0$.

En absence d'une source interne et en se plaçant dans le régime stationnaire, on a :

$$\frac{\partial^2 T}{\partial z^2} = 0. \tag{B.4}$$

La solution de (B.4) est donnée par :

$$T(z) = Az + B. \tag{B.5}$$

Or, la température en $z = 0$ est T_0, ce qui conduit à $B = T_0$.

D'après la relation (B.3), on peut écrire :

$$q_0 = -\kappa_1 \frac{dT}{dz} = -\kappa_1 A \Rightarrow A = -\frac{q_0}{\kappa_1}, \tag{B.6}$$

Nous rappelons que la conductivité thermique est obtenue en appliquant le théorie cinétique $\kappa_1 = \frac{1}{3}\rho_1 c_1 v_1 l_1$ (voir l'annexe A).

Donc, la solution de (B.1) appliquée à la couche d'épaisseur finie [Figure B.1] peut se mettre sous la forme :

$$T_0 - T_1(x) = \frac{3q_0}{\rho_1 c_1 v_1} x \quad \text{avec} \quad x = z/l_1. \tag{B.7}$$

En procédant de la même façon que dans le cas d'une couche d'épaisseur finie, on trouve directement pour le substrat :

$$T_2(z) = Cz + D. \tag{B.8}$$

Sachant que le flux de chaleur en régime stationnaire est toujours constant quelle que soit la position z :

$$-\kappa_1 \left(\frac{\partial T_1}{\partial z}\right)_{\forall z} = -\kappa_2 \left(\frac{\partial T_2}{\partial z}\right)_{\forall z} = q_0. \tag{B.9}$$

il vient :

$$C = -\frac{q_0}{\kappa_2}. \tag{B.10}$$

Si le contact entre les deux couches n'est pas parfait, ce qui est le cas en pratique, le profil de température est discontinu au niveau de l'interface. Cela exige qu'il existe une

résistance thermique d'interface, donc on peut écrire :

$$q_0 R = T_1(z = L) - T_2(z = 0), \tag{B.11}$$

où R peut être estimé par le modèle DMM [Che98] :

$$R = 2\left(\frac{1}{\rho_1 c_1 v_1} + \frac{1}{\rho_2 c_2 v_2}\right). \tag{B.12}$$

Selon les relations (B.7), (B.8) et (B.11), la constante D est donnée par l'expression :

$$D = T_0 - \frac{3q_0\lambda}{\rho_1 c_1 v_1} - q_0 R \text{ avec } \lambda = L/l_1. \tag{B.13}$$

Par conséquent, le profil de température dans le substrat peut s'écrire en fonction de la résistance d'interface :

$$T_0 - T_2(x) = \frac{3q_0}{\rho_1 c_1 v_1}\left(\delta_{12} x + \lambda + \frac{\rho_1 c_1 v_1 R}{3}\right), \tag{B.14}$$

où $\delta_{12} = \rho_1 c_1 v_1 / (\rho_2 c_2 v_2)$.

Annexe C

Solution de l'équation de la chaleur en régime non-stationnaire

En absence de source interne, l'équation de la chaleur dans le cas monodimensionnel s'écrit sous la forme :

$$\frac{\partial^2 T(z,t)}{\partial z^2} - \frac{1}{\alpha}\frac{\partial T(z,t)}{\partial t} = 0, \tag{C.1}$$

où $\alpha = \kappa / (\rho c)$ est la diffusivité thermique du matériau.

On considère une configuration diélectrique constituée de deux couches [Figure. C.1], où la couche d'épaisseur finie est réchauffée à la surface en $z = 0$ à l'aide d'un faisceau laser d'intensité modulée de type : $q(z = 0, t) = q_0(1 + \cos(\omega t)) = q_0 \mathrm{Re}(1 + e^{j\omega t})$. On cherche des solutions sous la forme :

$$T(z,t) = T_{dc}(z) + \psi(z) e^{j\omega t}, \tag{C.2}$$

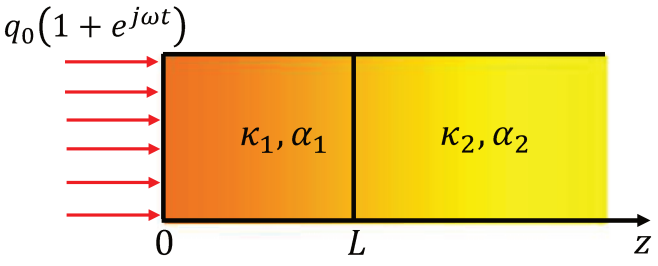

FIGURE C.1 – Couche d'épaisseur L déposée sur un substrat semi-infini. κ_i et α_i $(i = 1, 2)$ désignent la conductivité thermique et la diffusivité thermique de la couche i, respectivement. L'excitation thermique est appliquée en $z = 0$.

où T_{dc} et ψ sont respectivement les composantes stationnaire et modulée de la température.

En insérant (C.2) dans (C.1), on obtient :

$$\frac{\partial T_{dc}(z)}{dz^2} = 0, \tag{C.3a}$$

$$\frac{\partial^2 \psi(z)}{dz^2} - \frac{j\omega}{\alpha}\psi(z) = 0. \tag{C.3b}$$

La solution des équations (C.3a) et (C.3b) est donnée par (C.4a) et (C.5a), respectivement.

$$T_{ndc}(z) = A_n\,(z - d_n) + B_n \tag{C.4a}$$

$$\psi_n(z) = C_n e^{-\varrho_n(z-d_n)} + D_n e^{\varrho_n(z-d_n)}, \tag{C.4b}$$

où $\varrho_n = (1+i)\,/\mu_n$ avec $\mu_n = \sqrt{\alpha_n/\pi f}$ est la longueur de diffusion thermique, $d_1 = 0$ et $d_2 = L$. Les constantes A_n, B_n, C_n et D_n sont déterminées à partir des conditions aux bords. Dans cette annexe, on s'intéresse seulement à la partie modulée de la température $(\psi(z))$. La condition à l'infini $\psi_2\,(z \to \infty) \to 0$ exige que $D_2 = 0$. Les conditions aux bords nous permettent d'écrire :

$$\psi_1\,(L,t) - \psi_2\,(L,t) = -R\kappa_2 \left(\frac{\partial \psi_2}{\partial z}\right)_{z=L}, \tag{C.5a}$$

$$-\kappa_1 \left(\frac{\partial \psi_1}{\partial z}\right)_{z=0} = q_0, \tag{C.5b}$$

$$-\kappa_1 \left(\frac{\partial \psi_1}{\partial z}\right)_{z=L} = -\kappa_2 \left(\frac{\partial \psi_2}{\partial z}\right)_{z=L}, \tag{C.5c}$$

où R est la RTI entre les deux couches de la Figure C.1 et son expression est donnée par (B.12). Après avoir résolu le système d'équation C.5a−C.5c, on obtient :

$$C_1 = \frac{q_0}{\kappa_1\varrho_1} \frac{(1 - \varepsilon_{21} + R\kappa_2\varrho_2)\, e^{-\varrho_1 L}}{(1 + \varepsilon_{21} + R\kappa_2\varrho_2)\, e^{\varrho_1 L} - (1 - \varepsilon_{21} + R\kappa_2\varrho_2)\, e^{\varrho_1 L}}, \tag{C.6a}$$

$$D_1 = C_1 + \frac{q_0}{\kappa_1\varrho_1}, \tag{C.6b}$$

où $\varepsilon_{21} = \frac{\kappa_2\varrho_2}{\kappa_1\varrho_1} = \frac{\sqrt{\tau_2/\tau_1}}{\delta_{12}}$ et $R\kappa_2\varrho_2 = \frac{2}{3}\,(1+\delta_{12})\,\sqrt{\tau_2/\tau_1}\eta_1$.

Compte tenu des expressions C.6a−C.6b, la température modulée en surface $(z = 0)$ est

donnée par l'expression suivante :

$$\psi_1(z=0) = \frac{q_0}{\kappa_1 \varrho_1} \frac{(1+\varepsilon_{21}+R\kappa_2\varrho_2)\, e^{\varrho_1 L} + (1-\varepsilon_{21}+R\kappa_2\varrho_2)\, e^{-\varrho_1 L}}{(1+\varepsilon_{21}+R\kappa_2\varrho_2)\, e^{\varrho_1 L} - (1-\varepsilon_{21}+R\kappa_2\varrho_2)\, e^{-\varrho_1 L}}. \tag{C.7}$$

Liste de publications et de conférences

I Publications

I.1 Articles dans des revues à comité de lecture

1. Kamal Alaili, Jose Ordonez-Miranda, and Younès Ezzahri, *Effective interface thermal resistance and thermal conductivity of dielectric nanolayers*, Int. J. Therm. Sci. 131, 40 (**2018**).
   [URL : https://doi.org/10.1016/j.ijthermalsci.2018.05.024]. (Chapitre 2)
2. Kamal Alaili, Jose Ordonez-Miranda, and Younès Ezzahri, *Modulated heat conduction in a two-layer dielectric system with dynamical interface thermal resistance*, J. Appl. Phys. 124, 245101 (**2018**).
   [URL : https://doi.org/10.1063/1.5058747]. (Chapitre 3)
3. Kamal Alaili, Jose Ordonez-Miranda, and Younès Ezzahri, *Simultaneous determination of thermal diffusivity and thermal conductivity of a thin layer using double modulated thermal excitations*, J. Appl. Phys. 126, (**2019**).
   [URL : https://doi:10.1063/1.5116526]. (Chapitre 4)

I.2 Articles dans des actes de conférence à comité de lecture

1. Kamal Alaili, Jose Ordonez-Miranda, and Younès Ezzahri, *Résistance thermique d'interface entre nano-couches dièlectriques*, Micro et nano thermique, Congrès français de thermique 26ème édition du 29 Mai au 1er Juin 2018 à l'Université de Pau et des Pays de l'Adour, France.
   [URL : https://recherche.univ-pau.fr/fr/accueil/congressft.html].

II Conférences

II.1 Présentations Orales

1. Kamal Alaili, Jose Ordonez-Miranda, and Younès Ezzahri, *Effective interface thermal resistance between two dielectric materials*, **EMRS Spring Meeting**, Symposium E, 27-31 May 2019, Nice, France.
2. Kamal Alaili, Jose Ordonez-Miranda, and Younès Ezzahri, *Effective interface thermal resistance between two dielectric materials*, Nanoscale and Microscale Heat Transfer VI, Eurotherm seminar No 111, 2-7 December 2018, Levi, Lapland, Finland.

II.2 Présentations par Affiche

1. Kamal Alaili, Jose Ordonez-Miranda, and Younès Ezzahri, *Effective interface thermal resistance between two dielectric materials*, **EMRS Spring Meeting**, Symposium E, 27-31 May 2019, Nice, France.
2. Kamal Alaili, Jose Ordonez-Miranda, and Younès Ezzahri, *Résistance thermique d'interface entre nano-couches dièlectriques*, Micro et nano thermique, Congrès français de thermique 26ème édition du 29 Mai au 1er Juin 2018 à l'Université de Pau et des Pays de l'Adour, France.
   [URL : https://recherche.univ-pau.fr/fr/accueil/congressft.html].